Approche expérimentale et théorique de la conductivité thermique des milieux poreux humides—I. Expérimentation

S. AZIZI, C. MOYNE et A. DEGIOVANNI

Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, Ecole des Mines, Parc de Saurupt, F54042 Nancy Cedex, France

(Reçu le 19 Février 1988)

Résumé—Une technique expérimentale par méthode impulsionnelle est développée pour mesurer la diffusivité thermique "apparente" des milieux poreux humides. Sa validité repose sur l'écriture d'un modèle de transfert couplé chaleur-masse précédemment publié que nous rappelons brièvement. A basse température, le transfert étant essentiellement conductif, l'analyse des résultats expérimentaux s'attache à montrer l'inadaptation des modèles simples de conductivité souvent utilisés ainsi que le rôle capital joué par la répartition de l'eau (pour un milieu non consolidé). A plus haute température, quand les effets d'évaporation-condensation sont manifestes, les résultats sont comparés aux théories classiques de Krischer et De Vries. En dépit du caractère séduisant de l'analyse de De Vries permettant une réduction efficace de l'ensemble des résultats, le facteur "expérimental" de résistance à la diffusion gazeuse que l'on déduit présente des valeurs anormalement élevées. C'est à la résolution de ce paradoxe souvent signalé que sera consacrée la seconde partie de cette étude.

1. INTRODUCTION

LA DÉTERMINATION de la conductivité thermique "apparente" d'un milieu poreux humide est un problème complexe qui comprend deux aspects différents bien qu'étroitement intriqués :

(1) D'abord le problème général remontant à Maxwell de la définition de propriétés physiques macroscopiques et en particulier d'une conductivité thermique équivalente pour un milieu hétérogène composé de diverses phases (solide "s", gazeuse "g", liquide "l").

(2) Ensuite le couplage avec le transfert de masse dû aux évaporations-condensations successives de l'eau au sein du milieu, la chaleur latente de vaporisation étant prélevée par évaporation côté chaud pour être restituée par condensation côté froid.

Le premier aspect du problème a reçu une réponse définitive pour les milieux périodiques par le biais des théories d'homogénéisation [1] ou de prise de moyenne [2]. Des bornes ont été données dans le cas aléatoire [3] (pour une étude de synthèse de cette question voir [4]).

Le second aspect a été historiquement mis en évidence et analysé par Krischer [5] et par De Vries [6] et Philip et De Vries [7]. Les tentatives faites dans ces deux dernières références pour quantifier leurs résultats expérimentaux semblent démontrer une sousestimation du flux diffusif de vapeur calculé au moyen des théories classiques. Cette difficulté a donné lieu à une abondante littérature pour tenter de réconcilier théorie et expérience (par exemple refs. [8, 9]). Il nous semble aujourd'hui que les progrès dans la connaissance des mécanismes de transfert en milieu poreux, l'amélioration des techniques de mesure et sur le plan théorique l'utilisation des méthodes de prise de moyenne autorisent un réexamen de cette question.

C'est à l'aspect expérimental qu'est consacrée la première partie de cet exposé.

2. RESUME DE NOS TRAVAUX ANTERIEURS

Dans un article précédent [10], nous avons développé un modèle général de transfert simultané de chaleur et de masse en milieu poreux non saturé incluant la possibilité d'un mouvement convectif de la phase gazeuse sous l'action d'un gradient de pression totale: une description aussi minutieuse que possible des phénomènes de transport en phase gazeuse nous apparaissait nécessaire puisque les effets d'évaporation-condensation accroissant la conductivité thermique "apparente" des milieux poreux humides sont liés précisement au transfert en phase gazeuse de l'enthalpie de vaporisation de l'eau.

Sans entrer dans le détail de ce modèle rappelonsen les hypothèses principales :

(1) Le modèle est écrit pour un milieu continu équivalent au milieu poreux en supposant réalisé l'équilibre thermodynamique local (égalité des températures dans toutes les phases et pression de vapeur donnée par les lois d'équilibre).

(2) Le milieu poreux est indéformable.

(3) Dans l'écriture du bilan d'énergie thermique l'énergie de compression a été négligée. De même nous avons montré que dans les conditions rencontrées NOMENCLATURE

b c_p \mathscr{D} e f Δh_v K_g k	rayon des sphères chaleur massique à pression constante coefficient de diffusion massique air- vapeur epaisseur facteur de résistance à la diffusion gazeuse en milieu poreux enthalpie de vaporisation perméabilité du milieu à la phase gazeuse conductivité thermique "apparente" du milieu poreux	ε θ λ μ ν ρ ω _ν	fraction volumique coordonnée d'espace en géométrie sphérique (cf. Fig. A3) conductivité thermique $\cos \theta$ viscosité cinématique masse volumique fraction massique de vapeur en phase gazeuse.
M ⟨ṁ⟩	masse molaire masse d'eau qui s'évapore par unité de	Nomb Bi	res adimensionnels nombre de Biot
n _v	volume et de temps densité de flux massique de vapeur	Fo	nombre de Fourier.
P P_{vs} q q_r R R R T T ΔT t X	pression totale de la phase gazeuse pression de vapeur saturante densité de flux de chaleur densité de flux de chaleur radiale constante des gaz parfaits résistance thermique résistance thermique par unité de surface coordonnée en géométrie sphérique (cf. Fig. A3) température écart de température temps taux d'humidité (masse d'eau rapportée à la masse anhydre).	Indices a c dif exp g l s sat v 0 ⊥	s inférieurs air cylindre diffusion en phase gazeuse expérimental phase gazeuse phase liquide phase solide saturé vapeur sous effet d'évaporation-condensation milieu série milieu parallèle.
Symbol a	les grecs fraction volumique de milieu série	Indice *	supérieur sans effet d'évaporation-condensation.

(aucun mouvement convectif de filtration forcé au travers du milieu, en imposant par exemple une différence de pression entre deux faces de l'échantillon), le transfert de chaleur sensible par convection est négligeable devant les termes de changement de phase.

Dans ces conditions l'équation de l'énergie s'écrit :

$$\rho_0 c_p \frac{\partial T}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{q} - \langle \dot{m} \rangle \Delta h_v \qquad (1)$$

où $\langle \dot{m} \rangle$ désigne la masse d'eau qui s'évapore par unité de temps et par unité de volume du milieu poreux en prélevant l'enthalpie Δh_v par unité de masse d'eau évaporée.

Dans cette expression (1), le vecteur densité de flux de chaleur **q** est écrit par analogie avec les milieux continus :

$$\mathbf{q} = -\lambda \nabla T. \tag{2}$$

La loi de Fourier (2) est en quelque sorte la relation de définition de la conductivité thermique λ . Ultérieurement, nous chercherons à la relier aux diverses propriétés du milieu poreux considéré mais, pour l'instant, c'est un simple paramètre phénoménologique.

En procédant de manière analogue, l'équation de conservation pour le constituant vapeur de la phase gazeuse s'écrit :

$$\rho_0 \frac{\partial X_v}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{n}_v + \langle \dot{m} \rangle \tag{3}$$

 X_v représente la masse de vapeur rapportée à la masse de solide anhydre.

La densité de flux de vapeur n_v est exprimée également par analogie avec les milieux continus comme la somme d'un terme convectif écrit à partir de la loi de Darcy pour le phase gazeuse et d'un terme diffusif fondé sur la loi de Fick. D'où :

$$\mathbf{n}_{\mathrm{v}} = -\omega_{\mathrm{v}} \frac{K_{\mathrm{g}}}{v_{\mathrm{g}}} \nabla P - \rho_{\mathrm{g}} \mathscr{D} f \nabla \omega_{\mathrm{v}}. \tag{4}$$

Dans l'expression du terme de Fick, le coefficient de diffusion binaire air-vapeur \mathcal{D} a été multiplié d'un facteur f de résistance à la diffusion traduisant la modification du terme diffusif du fait de la présence des autres phases solide et liquide et sur la physique duquel nous aurons ultérieurement à nous interroger.

En se plaçant en dehors du domaine hygroscopique, la pression de vapeur est égale à la pression de vapeur saturante. La combinaison des relations (1)-(4) conduit alors à la relation :

$$\rho_0 c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho_0 \Delta h_v \frac{\partial X_v}{\partial t} = \nabla \cdot \left(k \nabla T + \Delta h_v \omega_v \frac{K_g}{v_g} \nabla P \right)$$
(5)

avec

où

$$k = \lambda + f \lambda_{\rm dif} \tag{6}$$

$$\lambda_{\rm dif} = \frac{\mathscr{D}}{RT} \frac{\mathrm{d}p_{\rm vs}}{\mathrm{d}T} \Delta h_{\rm v} \frac{M_{\rm a}M_{\rm v}}{M}.$$
 (7)

Dans la relation (5) le terme $\rho_0 \Delta h_v (\partial X_v / \partial t)$ représente la variation d'enthalpie stockée sous forme latente dans la phase gazeuse. Une évaluation d'ordre de grandeur montre qu'il est généralement négligeable devant le terme $\rho_0 c_p (\partial T / \partial t)$. Si d'autre part l'expérience est telle que l'on puisse considérer la pression totale de la phase gazeuse comme sensiblement constante, il vient :

$$\rho_0 c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k \nabla T). \tag{8}$$

Dans le cas de la mesure de la diffusivité thermique d'un milieu poreux par méthode impulsionnelle décrite au paragraphe 3, nous avons montré dans la réf. [10] que la réduction du modèle pour le transfert thermique à l'équation (8) est pertinente. Dès lors nous pouvons utiliser cette méthode pour atteindre la conductivité thermique "apparente" k du milieu étant bien entendu que cette grandeur n'est pas la conductivité thermique "vraie" λ (introduite par la loi de Fourier) mais y est liée par la relation (6).

3. EXPERIMENTATION

3.1. Principe de la méthode impulsionnelle

Le principe de la méthode est de soumettre la face "avant" d'un échantillon plan cylindrique circulaire à une impulsion thermique de très courte durée et d'enregistrer l'évolution de la température de la face "arrière". La confrontation du thermogramme expérimental réduit $\Delta T / \Delta T_{max}$ (normant l'écart entre la température de la face arrière de l'échantillon et sa température initiale par sa valeur maximale) avec les thermogrammes théoriques réduits $\Delta T / \Delta T_{\text{max}} =$ $f(Fo, Bi_1, Bi_2, Bi_3)$ (où Fo désigne un nombre de Fourier et Bi1, Bi2, Bi3 sont les nombres de Biot associés aux échanges thermiques convectifs sur les faces "avant", "arrière" et latérales de l'échantillon) permet de déduire la diffusivité thermique "apparente" $k/\rho_0 c_p$ du milieu. Pour la technique d'identification utilisée nous renvoyons à la référence classique [11]. Quand-et c'est le cas ici-les propriétés thermophysiques varient avec la température, on peut montrer, la perturbation thermique étant très limitée en temps et en espace, que la valeur mesurée correspond pratiquement à la température maximale de la face "arrière" de l'échantillon [12] (qui est toujours très proche de la température initiale puisque ΔT_{max} est de l'ordre de 0,5 K).

3.2. Le montage expérimental (Fig. 1)

L'échantillon (diamètre 30 mm, épaisseur e = 10mm) est placé dans une enceinte étanche à double paroi dans laquelle circule un fluide régulé en température par un bain thermostaté. La partie supérieure de l'enceinte présente une fenêtre permettant de soumettre la face "avant" de l'échantillon éventuellement noircie avec une fine pellicule de peinture mate au rayonnement thermique d'une lampe à éclats. Elle fournit une énergie maximale de 1000 J ajustable donnant une densité de flux absorbée par l'échantillon sensiblement uniforme de l'ordre de 2 à 3 J cm⁻². La durée de l'impulsion entre 1 et 10 ms est suffisamment brève pour l'assimiler à un Dirac d'énergie. Après l'impulsion, un écran est mis en place pour empêcher tout rayonnement parasite des parties chauffées sur l'échantillon.

Le système de mesure de la température de la face "arrière" de l'échantillon est constitué de deux doigts cylindriques en cuivre sur lesquels sont brasées deux plaquettes semi-conductrices en tellurure de bismuth de forme prismatique dopées P et N. Les doigts sont logés dans des cavités cylindriques aménagées dans deux blocs isothermes en laiton isolés électriquement l'un de l'autre et en équilibre thermique avec l'ambiance de l'enceinte. Grâce à des ressorts chacun des doigts appuie sur la face "arrière" de l'échantillon qui (revêtue d'une mince couche de peinture d'argent s'il est isolant électrique) assure lui même la jonction électrique. Ce thermocouple possède l'avantage d'un haut pouvoir thermoélectrique (de l'ordre de 400 μ V K⁻¹ aux températures considérées). La faible conductivité thermique du tellurure de bismuth (0.9 W m⁻¹ K⁻¹) permet une très bonne mesure des températures de surface en régime transitoire. En particulier le temps de réponse est extrêmement faible de l'ordre de 100 μ s. La température du bloc de laiton est mesurée par une résistance de platine.

La variation de température de la face "arrière" ne dépasse pas 0,5 K. Le signal après amplification est enregistré sur un enregistreur potentiométrique.

3.3. Cas des matériaux non consolidés : influence des parois latérales et du fond métallique

Dans le cas des matériaux non consolidés, il est évidemment nécessaire de les disposer dans un godet dont les faces latérales sont réalisées en téflon (matériau isolant) et le fond en acier inoxydable (clinquant d'épaisseur 1/10 mm).

Pour éviter de prendre en considération le transfert thermique au travers des faces latérales, un cache est disposé de façon à n'éclairer que 90% environ de la



-

FIG. 1. Schéma de principe de la méthode flash.

face "avant". Les effets de fuite latérale conductifs et convectifs sont alors pris en compte par le biais du coefficient de transfert convectif externe.

Un second problème est d'évaluer l'erreur introduite par la présence du fond d'acier sur la face "arrière" de l'échantillon. L'expérience acquise sur l'importance relative des différents coefficients d'échange externes démontre que, sans altérer la précision avec laquelle est obtenue la diffusivité thermique, il suffit de ne considérer qu'un seul nombre de Biot et donc uniquement des pertes sur les faces "avant" et "arrière" pour la technique d'identification adoptée [13]. Ce raisonnement autorise à restreindre les calculs au seul cas monodimensionnel. Le calcul en transformée de Laplace avec utilisation de la méthode des quadripôles et retour numérique en espace réel est tout spécialement adapté à ce genre de problème [14].

Conformément à l'intuition, pour les cas réalistes considérés où la résistance thermique du clinquant d'acier est toujours très faible devant la résistance thermique de l'échantillon, le clinquant d'acier se comporte comme une capacité thermique pure et donc en particulier sa conductivité thermique n'a aucune influence sur le terme correctif.

En revanche, le transfert externe influence quelque peu la correction à effectuer que l'on définit comme étant :

$$Correction = \frac{a(\text{milieu}) - a(\text{milieu} + \text{clinquant})}{a(\text{milieu} + \text{clinquant})}.$$
 (9)

Une manière pratique de chiffrer les pertes est de considérer le temps théorique $t^*_{5/6}$ tel que $\Delta T/\Delta T_{\text{max}} = 5/6$.

En représentant en ordonnée le produit

$$\text{Correction} \times \frac{(\rho c_p e)_{\text{milieu}}}{(\rho c_p e)_{\text{clinguant}}}$$

pour une gamme réaliste de nombres de Biot $(0 \le Bi \le 1)$, on obtient une formule de correction sensiblement unique (Fig. 2). A partir des thermogrammes expérimentaux, on détermine alors $t_{5/6}^*$



FIG. 2. Correction due au fond métallique en fonction de $t_{5/6}^*$.

ce qui permet d'appliquer au résultat la correction qui n'excède jamais ici 3%.

3.4. Les matériaux utilisés

Trois matériaux ont été principalement étudiés : un béton léger de type "Ytong", un lit de billes de verre et un composite de type C-SiC (carbone-céramique). Ce choix est guidé par la volonté de tester des milieux capillaires poreux de morphologie radicalement différente, notamment en ce qui concerne leur porosité et leur caractère consolidé ou non. La chaleur massique anhydre c_{p_s} a été mesurée sur une large gamme de température par le laboratoire de Chimie Minérale de l'INSA de Lyon. La chaleur volumique pour un taux d'humidité X donné (masse d'eau rapportée à la masse anhydre de l'échantillon) est calculée alors par simple application de la loi des mélanges :

$$\rho_0 c_p = \rho_0 (c_{p_*} + c_{p_1} X). \tag{10}$$

Le Tableau 1 récapitule l'ensemble des données physiques relatives aux trois matériaux.

4. RESULTATS EXPERIMENTAUX

4.1. Conductivité anhydre des matériaux en fonction de la température

La Fig. 3 donne la conductivité thermique du béton léger et du lit de billes de verre anhydres en fonction de la température (5°C $\leq T \leq 85$ °C). En dépit d'une très légère augmentation avec la température, sa valeur peut être considérée comme sensiblement con-

Tableau 1. Données physiques relatives aux matériaux anhydres $(T = 20^{\circ}C)$

	Béton léger Ytong	Lit de billes de verre	Matériau composite C-SiC
$\rho_0 (\mathrm{kg}\mathrm{m}^{-3})$	500	1500	1700
3	0,80	0,40	0,18
$c_{p_{\star}}$ (J kg ⁻¹ K ⁻¹)	800	920	770
$\lambda_0 (W m^{-1} K^{-1})$	0,125	0,200	3,5



FIG. 3. Variation de la conductivité thermique des milieux anhydres λ_0 en fonction de la température T: (a) béton léger; (b) lit de billes de verre.

stante (par rapport aux variations en fonction de l'humidité).

4.2. Conductivité thermique des milieux poreux humides en absence d'effet d'évaporation–condensation

Les Figs. 4 et 5 donnent respectivement la variation de la conductivité thermique du béton léger et du lit de billes de verre en fonction de leur taux d'humidité aux températures de 5 et 20°C. Le fait que les courbes expérimentales soient confondues est cohérent avec la variation de la conductivité thermique d'origine diffusive λ_{dif} en fonction de la température (Fig. 6). Il y a toutefois lieu de remarquer que même à 5°C le rapport λ_{dir}/λ_g vaut environ 1,1 alors qu'à 20°C il vaut 2,5. La confusion des deux courbes est donc liée non seulement au peu d'importance quantitative des effets



FIG. 4. Conductivité thermique λ_0 du béton léger à basse température (T = 5 et 20°C) en fonction du taux d'humidité X.



Différentes configurations de l'humidité



FIG. 5. Conductivité thermique λ_0 du lit de billes à basse température (T = 5 et 20°C) en fonction du taux d'humidité X: points expérimentaux et modèle théorique.

d'évaporation-condensation par rapport au transport conductif mais également dans le cas des milieux non consolidés au fait que l'essentiel du transfert au contact entre deux particules est assuré par la phase liquide qui s'y localise préférentiellement.

A des fins pratiques, il est souvent commode de

disposer d'une expression mathématique permettant de décrire la courbe $\lambda_0(X)$. Dans le cas du béton léger (Fig. 4), l'allure sensiblement linéaire de la courbe incline à s'interroger sur la pertinence d'un modèle "parallèle" (milieu dont les phases sont disposées parallèlement au vecteur densité de flux de chaleur) de



FIG. 6. Variation de la conductivité thermique de l'air λ_{air} de l'eau λ_{eau} et d'origine diffusive λ_{dir} en fonction de la température T.

conductivité λ_{\perp} ou suivant la forme générale proposée par Krischer de la mise en série d'un modèle parallèle et d'un modèle série (les phases sont alors organisées perpendiculairement au vecteur densité de flux de chaleur de conductivité λ_{\perp} [5]). Soit :

$$\lambda_0 = \frac{1}{\frac{\alpha}{\lambda_\perp} + \frac{1 - \alpha}{\lambda_{\ell}}}$$
(11)

avec

et

$$\lambda_{/\!\!/} = \varepsilon_{\rm g} \lambda_{\rm g} + \varepsilon_{\rm l} \lambda_{\rm l} + \varepsilon_{\rm s} \lambda_{\rm s} \tag{12}$$

$$\lambda_{\perp} = \frac{1}{\frac{\varepsilon_{g}}{\lambda_{g}} + \frac{\varepsilon_{1}}{\lambda_{1}} + \frac{\varepsilon_{s}}{\lambda_{s}}}.$$
 (13)

Le premier modèle nécessite uniquement la détermination de la conductivité thermique du solide λ_s , le second réclame en outre la détermination de la fraction volumique α ; pour cela des techniques classiques d'optimisation (algorithme de Hooke et Jeeve avec une distance du type moindre carré) sont utilisées. Le résultat représenté sur la Fig. 4 met en lumière les dangers de telles approches: même dans un but appliqué l'utilisation de modèles aussi simples ne suffit pas à rendre compte de la morphologie complexe des milieux. Ici le désaccord est vraisemblablement à chercher dans une structure poreuse du milieu à double échelle.

Dans le cas du lit de billes de verre, la meilleure définition géométrique du milieu en dépit du caractère aléatoire de l'empilement encourage la recherche d'une solution analytique (cf. Annexe). Le problème est résolu sur une cellule-unité cylindrique à base carrée limitée par deux plans isothermes, les surfaces latérales étant isolées (Fig. A2). La solution est exacte dans la phase solide mais fait l'hypothèse de lignes de flux parallèles aux génératrices du cylindre dans les phases fluides. Pour un empilement de type cubique simple ($\varepsilon = 0,476$), les résultats sont représentés sur la Fig. 5 suivant différentes configurations de la phase liquide au voisinage des points de contact. L'analyse des courbes montre l'importance capitale de la manière de disposer la phase liquide et un accord au moins qualitatif avec les résultats expérimentaux si l'on adopte la configuration réaliste b.

4.3. Conductivité thermique "apparente" des milieux poreux humides

L'ensemble des résultats donnant la variation de la conductivité thermique "apparente" en fonction du taux d'humidité pour différentes températures $(5^{\circ}C \leq T \leq 85^{\circ}C)$ est représenté sur la Fig. 7. L'influence des effets d'évaporation-condensation est particulièrement marquée. Les valeurs extrêmes correspondant au milieu anhydre (c'est-à-dire saturé par de l'air) et au milieu saturé en eau sont à peu près indépendantes de la température, ce qui est en accord avec le fait que les conductivités thermiques du gaz, du solide et du liquide sont peu sensibles à la température. Entre ces deux valeurs la conductivité "apparente" k augmente de façon monotone pour $T \leq 50^{\circ}$ C mais passe par un maximum pour $T \ge 65^{\circ}$ C. Cette constatation a déjà été faite par Krischer. La décroissance de la conductivité aux fortes teneurs en eau est expliquée schématiquement parce qu'au-delà de 60°C la conductivité thermique d'origine diffusive (λ_{dif}) est supérieure à la conductivité thermique de l'eau (λ_1) et qu'en ajoutant de l'eau au milieu, on substitue à la phase gazeuse de "conductivité" ($\lambda_{g} + \lambda_{dif} \simeq \lambda_{dif}$) la phase liquide de moindre conductivité. Conformément à la remarque de De Vries, la valeur maximale de k correspond à la transition entre les domaines funiculaire et pendulaire pour la phase liquide ($\bar{X} \simeq 2.5\%$ pour le lit de billes de verre, $\bar{X} \simeq$ 40% pour le béton léger). Ce résultat se comprend dans la mesure où seule la continuité macroscopique du liquide dans le milieu garantit qu'il n'existe plus de zones sèches de plus faible conductivité.

4.4. Facteur f_{exp} de De Vries

Dans l'analyse des résultats, en revenant à l'équation (6), De Vries propose de déterminer "le facteur de résistance à la diffusion" f en faisant l'hypothèse que la conductivité thermique "vraie" λ est toujours celle du milieu mesurée à basse température λ_0 sans effet d'évaporation-condensation. Cette approximation, illégitime ainsi que nous le montrerons dans la partie II de cet article, trouve son origine dans l'impossibilité expérimentale d'atteindre la conductivité thermique "vraie" λ sauf évidemment lorsqu'elle se confond avec la conductivité thermique "apparente" k. En procédant de cette manière, le facteur "experimental" de De Vries f_{exp} est défini par la relation :



FIG. 7. Conductivité thermique apparente k en fonction de la température T et de l'humidité X: (a) béton léger; (b) lit de billes de verre; (c) composite C-SiC.

$$k = \lambda_0 + f_{\exp} \lambda_{dif}.$$
 (14)

Son évolution en fonction du taux d'humidité X pour les trois matériaux étudiés est représentée sur la Fig. 8. En dépit de la dispersion inhérente aux imprécisions des mesures expérimentales, la relation

 $f_{\exp}(X)$ pour un produit donné peut être considérée comme sensiblement unique et indépendante de la température. Un lissage du type

$$f_{\exp}(X) = AX^n - BX^2 + CX^3$$
(15)
en imposant



FIG. 8. Facteur expérimental de résistance à la diffusion de De Vries f_{exp} en fonction du taux d'humidité X pour diverses température T: (a) béton léger; (b) lit de billes de verre; (c) composite C-SiC.

$$f_{\exp}(0) = f_{\exp}(X_{\text{sat}}) = 0$$
 (16)

et en pondérant chaque point par la valeur de λ_{dif} à sa température conduit aux courbes en trait continu de la Fig. 8. Une manière d'apprécier la qualité du résultat est alors d'utiliser cette relation pour recalculer les valeurs de k à partir de la relation (14). Les courbes obtenues en trait continu sur la Fig. 7 démontrent que cette manière de procéder est très satisfaisante et fournit une méthode pratique de détermination de kconnaissant $\lambda(X)$ à basse température (problème de conduction pure) et $f_{exp}(X)$.

Les valeurs particulièrement élevées de f_{exp} observées (voire même pour le composite de type C-SiC,

 $f_{exp} > 1$) ont donné lieu à une abondante littérature tentant d'expliquer l'apparente sous-estimation des flux de vapeur au sein d'un milieu poreux [5-8]. En fait ainsi que nous le démontrons de façon théorique, l'interprétation de f_{exp} déterminé par la méthode précédente comme étant "le facteur de résistance à la diffusion" du milieu poreux est incorrecte. Ce facteur incorpore en fait des évaporations-condensations à l'échelle locale des pores (c'est-à-dire à l'intérieur du volume élémentaire représentatif) qui ne correspondent pas à un transfert de vapeur au travers du milieu. La relation (6) n'est cependant pas à mettre en cause mais simplement c'est à la conductivité thermique λ (sensible aux évaporationscondensations) de prendre en compte ces effets.

Il n'empêche toutefois que la présentation suggérée par De Vries est efficace dans la mise enforme des résultats et l'unicité pour un milieu donné de la relation $f_{exp}(X)$ indépendante de la température est bien une réalité expérimentale (au moins pour les trois milieux étudiés) en dépit d'un manque de justification théorique jusqu'à ce jour.

5. CONCLUSION

Nous avons adapté une technique de mesure par méthode impulsionnelle permettant d'atteindre dans de bonnes conditions la conductivité thermique "apparente" k d'un matériau poreux quelconque consolidé ou pulvérulent à pression atmosphérique, pour des températures comprises entre 0 et 100°C et pour un taux d'humidité quelconque.

A l'aide d'un modèle de transfert couplé chaleurmasse, nous avons donné une signification physique précise à la conductivité "apparente" mesurée. Nous avons appliqué cette technique à un béton léger, un lit de billes de verre et un matériau composite de type C-SiC. L'analyse des résultats, notamment en ce qui concerne les variations de la conductivité thermique "apparente" k en fonction de la température et de l'humidité, sont conformes aux déductions de Krischer.

L'utilisation de l'hypothèse de De Vries supposant la conductivité thermique "vraie" λ indépendante de la température (et donc sensiblement égale à la valeur de la conductivité thermique "apparente" λ_0 à basse température où les effets d'évaporation-condensation ne sont pas manifestes) permet de calculer le facteur "expérimental" de résistance à la diffusion f_{exp} par la relation :

$$k = \lambda_0 + f_{\exp} \lambda_{dif}$$

où λ_0 et f_{exp} ne sont fonctions que du taux d'humidité et λ_{dif} que de la température.

Cette procédure pour chacun des trois matériaux étudiés se révèle efficace dans la mesure où la relation $f_{exp}(X)$ est approximativement unique (indépendante de la température). Elle permet donc à partir de la mesure de la conductivité thermique "apparente" à deux températures de déduire ses variations en fonction de la température et de l'humidité.

Néanmoins les valeurs particulièrement élevées de ce facteur "expérimental" montre qu'il ne peut être confondu avec le facteur "vrai" de résistance à la diffusion gazeuse. La deuxième partie de cet article va s'attacher de façon théorique à calculer les différentes conductivités ainsi que le facteur "vrai" de résistance à la diffusion gazeuse apparaissant dans les modèles de transferts couplés chaleur-masse de façon à résoudre cet apparent paradoxe.

REFERENCES

- E. Sanchez-Palencia, Non-homogeneous Media and Vibration Theory, Lecture Notes in Physics, Chap. 5. Springer, Berlin (1980).
- R. G. Carbonell and S. Whitaker, Heat and mass transfer in porous media. In *Fundamentals of Transport Phenomena in Porous Media* (Edited by J. Bear and M. Y. Corapcioglu), NATO ASI Series, pp. 121–198. Martinus Nijhoff, The Hague (1984).
- Z. Hashin and S. Shtrikman, A variational approach of the theory of the effective magnetic permeability of multiphase materials, J. Appl. Phys. 33(33), 3125–3131 (1962).
- 4. T. O. Farouki, Thermal properties of soils, CRREL Monograph 81-1 (1981).
- 5. O. Krischer, Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik. Springer, Berlin (1962).
- D. A. De Vries, Simultaneous transfer of heat and moisture in porous media, *Trans. Am. Geophys. Un.* 39, 909– 916 (1958).
- J. R. Philip and D. A. De Vries, Moisture movement in porous materials under temperature gradient, *Trans. Am. Geophys. Un.* 38, 222–232 (1957).
- W. A. Jury and J. Letey, Jr., Water vapor movement in soil: reconciliation of theory and experiment, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 43(5), 823–827 (1979).
- A. Cass, G. S. Campbell and T. L. Jones, Enhancement of thermal water diffusion in soil, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 48(1), 25-32 (1984).
- A. Degiovanni et C. Moyne, Conductivité thermique des milieux poreux humides: évaluation théorique et possibilité de mesure, *Int. J. Heat Mass Transfer* 30, 2225-2245 (1987).
- A. Degiovanni, Diffusivité thermique et méthode flash, Revue Gén. Thermique No. 185, 420–442 (1977).
- A. Degiovanni et Z. Soihili, Critères de non-linéarité pour la mesure de la diffusivité thermique par méthode impulsionnelle, *Revue Gén. Thermique* No. 272–273, 489-494 (1984).
- A. Degiovanni, Identification de la diffusivité thermique par l'utilisation des moments temporels partiels, *High Temp.-High Pressures* 17, 683-689 (1985).
- A. Degiovanni, Conduction dans un "mur" multicouche avec sources : extension de la notion de quadripôles, Int. J. Heat Mass Transfer 31, 553-557 (1988).
- M. N. Ozisik, *Heat Conduction*, pp. 182–185. Wiley, New York (1980).

ANNEXE. CONDUCTIVITE D'UN EMPILEMENT REGULIER DE SPHERES

Modèle géométrique

Le solide, représenté par un empilement régulier de sphères (cubique simple) est baigné par un ou plusieurs fluides (Fig. A1).

Par raison de symétrie, nous travaillons sur une cellule



Modète cubique simple

FIG. A1. Modèle d'empilement des billes.







FIG. A2. Cellule-unité.

élémentaire (cylindre à base carrée) limitée par deux isothermes et un tube de flux (Fig. A2).

Nous faisons deux hypothèses :

(a) la conductivité du solide est constante;

(b) dans l'espace des pores rempli par un ou deux fluides (air et eau) les lignes de flux sont parallèles (et par conséquent les isothermes sont planes).

Enfin, pour enlever la singularité au point de contact, nous ajoutons fictivement une fine couche de fluide (modèle sans contact). Nous obtenons la solution pour le contact ponctuel comme limite du cas précédent en faisant tendre l'épaisseur e de la couche vers zéro.

Ainsi, la cellule élémentaire se décompose en deux tubes de flux :

(a) un cylindre à base circulaire entourant la sphère de conductivité équivalente λ_c ;

(b) le fluide extérieur à ce cylindre de conductivité λ_{t} .

La résistance thermique de la cellule élémentaire peut donc s'écrire (Fig. A2) :

$$\frac{1}{\Re} = \frac{1}{\Re_{\rm c}} + \frac{1}{\Re_{\rm f}} \tag{A1}$$

avec

 $\begin{cases} \mathscr{R}_c = \text{résistance du cylindre entourant la sphère} \\ \mathscr{R}_t = \text{résistance du fluide extérieur.} \end{cases}$



En appelant b le rayon de la sphère et e l'épaisseur de la couche supplémentaire de fluide, on a :

$$\int \frac{1}{\Re_{\rm f}} = \frac{b^2 (4-\pi)\lambda_{\rm f}}{b+e} \tag{A2}$$

$$\left|\frac{1}{\Re_{\rm c}} = \frac{\pi b^2 \lambda_{\rm c}}{b+e}\right|$$
(A3)

soit la conductivité "vraie" de notre système :

$$\lambda_0 = (1 - \pi/4)\lambda_f + (\pi/4)\lambda_c. \tag{A4}$$

Un calcul analytique va nous permettre de calculer λ_c .

Calcul de λ_c

On résout l'équation de la chaleur dans le cylindre de révolution contenant une demi-sphère et limité par deux isothermes planes et un tube de flux (Fig. A3).

(1) Dans la phase solide, le système s'écrit en coordonnées sphériques (r et $\mu = \cos \theta$):

$$\frac{\partial^2 T_s}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial T_s}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial \mu} \left[(1 - \mu^2) \frac{\partial T_s}{\partial \mu} \right] = 0 \qquad (A5)$$

avec les conditions aux limites :

$$T_s = 0 \qquad \text{en } \mu = 0 \qquad (A6)$$

$$q_r = -\lambda_s \frac{\partial T_s}{\partial r}$$
 en $r = b$ (A7)

où q_r désigne la densité de flux radiale en r = b.

La solution est obtenue en séparant les variables, soit avec la condition (A6) (condition à la limite du premier type en $\mu = 0$) [15]:

$$T_{s}(r,\mu) = \sum_{n=1,3,5,...}^{\infty} A_{n}r^{n}P_{n}(\mu)$$
 (A8)

avec

$$P_n(\mu) = \frac{1}{2^n n!} \frac{\mathrm{d}^n (\mu^2 - 1)^n}{\mathrm{d} \mu^n} \quad \text{(polynômes de Legendre).}$$
(A8bis)

La condition (A7) permet de calculer A_n en utilisant les propriétés d'orthogonalité des polynômes de Legendre, soit :

$$A_n = -\frac{2n+1}{\lambda_n n b^{n-1}} \int_0^1 q_r(u) P_n(u) \,\mathrm{d} u. \tag{A9}$$

La température dans le solide est alors donnée par :

$$T_{s}(r,\mu) = -\frac{b}{\lambda_{s}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{4n+3}{2n+1} {\binom{r}{b}}^{2n+1} P_{2n+1}(\mu) \\ \times \int_{0}^{1} q_{r}(\mu) P_{2n+1}(\mu) \, d\mu. \quad (A10)$$

(2) Dans le milieu fluide, le transfert étant supposé unidirectionnel, le problème est élémentaire et sa solution fait



2315

FIG. A3. Résolution du problème dans la cellule-unité.

apparaître la résistance thermique du milieu fluide par unité l'équation (A12) devient : de surface \mathcal{R}_{f} :

$$T_{\rm s}(b,\mu) - T_0 = \mathscr{R}_{\rm f} q_r(\mu) \tag{A11}$$

avec

$$\mathscr{R}_{\rm f} = \frac{b(1-\mu)+e}{\mu\lambda_{\rm f}}.$$
 (A11bis)

En remplaçant $T_s(b,\mu)$ par son expression (A10), l'équation (A11) devient :

$$q_{r}(\mu) + \frac{b\mu\lambda_{f}}{[b(1-\mu)+e]\lambda_{s}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{4n+3}{2n+1} P_{2n+1}(\mu)$$
$$\times \int_{0}^{1} q_{r}(u) P_{2n+1}(u) \, \mathrm{d}u = -\frac{T_{0}\lambda_{f}\mu}{b(1-\mu)+e}. \quad (A12)$$

(3) L'équation (A12) permet de calculer $q_r(\mu)$; c'est une équation intégrale à noyau dégénéré.

En posant :

-

$$\begin{cases} \gamma = -\frac{\lambda_{\rm f}}{\lambda_{\rm s}} \\ f(\mu) = -\frac{T_0 \lambda_{\rm f} \mu}{b(1-\mu)+e} \\ \alpha_i(\mu) = \frac{\mu b}{b(1-\mu)+e} \frac{4i-1}{2i-1} P_{2i-1}(\mu) \\ \beta_i(\mu) = P_{2i-1}(\mu) \end{cases}$$

$$q_r(\mu) - \gamma \int_0^1 \left[\sum_{i=1}^\infty \alpha_i(\mu) \beta_i(u) \right] q_r(u) \, \mathrm{d}u = f(\mu) \quad (A13)$$

dont la solution (en se limitant aux p premiers termes de la série) est :

$$q_r(\mu) = \gamma \sum_{i=1}^p X_i \alpha_i(\mu) + f(\mu)$$
(A14)

où les X_i sont solutions du système linéaire :

$$\{[I] - \gamma[A]\}[X] = [F]$$
 (A15)

$$A_{ij} = \int_0^1 \beta_i(u) \alpha_j(u) \, \mathrm{d}u$$
$$F_i = \int_0^1 \beta_i(u) f(u) \, \mathrm{d}u$$
$$[I] = \text{matrice unité.}$$

Connaissant $q_r(\mu)$, il est aisé de remonter à la conductivité thermique équivalente du tube de flux :

$$\mathscr{R}_{c} = \frac{T_{0}}{2\pi b^{2} \int_{0}^{1} q_{r}(\mu) \,\mathrm{d}\mu} \tag{A16}$$

soit

$$\lambda_{\rm c} = \frac{2(b+e)}{T_0} \int_0^1 q_r(\mu) \, \mathrm{d}\mu.$$
 (A17)

EXPERIMENTAL AND THEORETICAL APPROACH OF THE THERMAL CONDUCTIVITY OF WET POROUS MEDIA-I. EXPERIMENTS

Abstract—An experimental technique by the pulse method is developed in order to measure the apparent thermal diffusivity of wet porous media. Its validity lies on the examination of a simultaneous heat and mass transfer model which has been previously published and will be briefly recalled. At low temperature, the transfer being mainly conductive, the analysis of the experimental results proves the inadequacy of simple conductivity models as well as the essential role of the water distribution (for unconsolidated media). At higher temperature when the evaporation-condensation mechanisms appear, the results are compared with Krischer and De Vries' classical theories. Though De Vries' theory is very attractive as it allows us to resume the whole set of experimental results, the resistance factor to the gaseous diffusion which is deduced happens to take too high values. The second part of this study will be devoted to solving this paradox.

EXPERIMENTELLE UND THEORETISCHE BESTIMMUNG DER WÄRMELEITFÄHIGKEIT FEUCHTER, PORÖSER STOFFE---I. EXPERIMENT

Zusammenfassung-Es wurde ein experimentelles Verfahren entwickelt, un die scheinbare Temperaturleitfähigkeit von feuchten, porösen Medien zu messen. Seine Gültigkeit wird mittels eines Modells für den gleichzeitigen Wärme- und Stofftransport überprüft, das bereits veröffentlicht ist; es wird hier nochmals kurz erläutert. Bei geringen Temperaturen, wenn Wärme hauptsächlich durch Wärmeleitung transportiert wird, zeigen die experimentellen Ergebnisse die Unzulänglichkeit einfacher Wärme-leitungsmodelle und ebenso die wichtige Rolle der Wasserverteilung (für Schüttungen). Bei höheren Temperaturen, wenn Verdampfungs- und Kondensationsvorgänge auftreten, werden die Ergebnisse mit den klassischen Theorien mit Krischer und De Vries verglichen. Obwohl die Theorie von De Vries attraktiv ist, da sich mit ihr alle experimentellen Daten zusammenfassen lassen, ergibt sich mit ihr für die Gasphase ein zu hoher Diffusions-Widerstandsfaktor. Im zweiten Teil dieser Präsentation wird dieses Paradoxon gelöst.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЙ И ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ МЕТОДЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ ВЛАЖНЫХ ПОРИСТЫХ СРЕД—І. ЭКСПЕРИМЕНТ

Аннотация — Разработан экспериментальный импульсный метод измерения кажущейся температуропроводности влажных пористых сред. Корректность метода подтверждается на основе анализа ранее предложенной модели совместного тепло- и массопереноса. Анализ результатов экспериментов при низкой температуре, когда перенос происходит в основном за счет теплопроводности, показыает непригодность простых моделей теплопроводности и важную роль распределения воды (в рыхлых средах). При более высоких температурах, когда происходят процессы испарения и конденсации, данные сравниваются с результатами классических теорий Кришера и де Вриза. Хотя теория де Вриза позволяет обобщать всю совокупность экспериментальных данных, получаемые значения коэффициента сопротивления диффузии газа оказываются сильно завышенными. Выяснению этого парадокса посвящена вторая часть этой работы.