: Écoulement de la mousse à

l'échelle du pore en 3D

I.	Introduction	172
II.	Matériels et expérience	173
	A. Présentation de la ligne ID19 de l'ESRF	173
	B. Expérience	174
	1. Montage expérimental	174
	2. Conditions expérimentales	176
	C. Acquisition des images	177
III.	Résultats	180
	A. Caractéristiques microscopiques de la mousse	180
	B. Traitement des images	182
	1. Gestion des données	183
	2. Procédure de traitement des images	183
	a) Prétraitement	183
	b) Segmentation	184
	3. Calcul de la saturation des phases	185
	4. Dynamique de piégeage des bulles	187
	a) Évolution de la fraction de liquide immobile	187
	(i) Dynamique d'acquisition lente	187
	(ii) Dynamique d'acquisition rapide	191
	b) Mécanisme de piégeage de la mousse	195
IV.	Discussion	199
v.	Conclusion du quatrième chapitre	204

I. Introduction

L'écoulement d'une mousse en milieu poreux est un processus complexe dans lequel interviennent des phénomènes qui se produisent à des échelles de temps et d'espace qui varient de plusieurs ordres de grandeur. Les nombreuses études sur micro-modèles 2D en témoignent. Le piégeage et son intermittence a été mis en évidence [84] et fait toujours l'objet d'études pour mieux comprendre les mécanismes mis en jeu. Plusieurs auteurs [139–142] ont réussi à imager la mousse Bulk à l'aide de la technique de micro-tomographie X, pour étudier la structure et la statistique des bulles notamment. En revanche aucune étude n'a été dédiée à l'observation des mousses dans un milieu poreux réel ou modèle en trois dimensions et *a fortiori* sous écoulement. Dans ce chapitre, nous présentons le travail expérimental réalisé pour observer la mousse pendant son écoulement dans un milieu poreux formé de grains de silice. Cette étude réalisée en micro-tomographie X haute résolution sur la ligne ID19 du synchrotron européen de Grenoble en France est la première de ce genre dans ce domaine. Dans un premier temps, nous décrivons l'environnement expérimental spécifiquement développé pour cette étude, puis dans un deuxième temps, nous analysons les images qui en sont issues et discutons des résultats obtenus en lien avec la littérature.

II. Matériels et expérience

A. Présentation de la ligne ID19 de l'ESRF

L'ESRF est un synchrotron européen situé à Grenoble et qui est dédié à la recherche scientifique qui fédère plus de 22 pays dans le monde. Il s'agit d'une installation qui possède un anneau circulaire de 844 m de circonférence duquel dérivent 43 lignes de faisceaux, essentiellement de rayons X (cf. Figure 101).



Figure 101 : Installation européenne de rayonnement synchrotron (ESRF).

Nos expériences ont été réalisées sur la ligne ID19 de l'ESRF. Il s'agit d'une ligne de tomographie X rapide, haute résolution qui délivre un faisceau de rayon X de très grande brillance et d'énergie variable entre 6 et 120 keV. Afin d'atteindre de telles caractéristiques, le flux de rayons X est généré par un super onduleur magnétique de 1.4 T. La distance totale de la ligne fait 145 m et la source de rayons X fait 30 μ m en vertical et 120 μ m en horizontal. Cette grande distance de ligne permet d'obtenir un faisceau parallèle et cohérent. Ce dernier traverse un ensemble d'éléments optiques composés de diaphragmes, de fentes et de filtres avant d'arriver dans le guide de faisceau qui se trouve dans le local d'expérimentation. Un monochromatique. Après avoir traversé l'échantillon, les rayons X arrivent sur un scintillateur en céramique (LuAG Lutétium Aluminium Garnet) de 25 μ m d'épaisseur qui les transforme en photons de lumière visibles. Ces derniers sont projetés sur une caméra PCO Dimax composée d'un capteur de type CMOS de taille 2016 x 2016 pixels avec une taille physique de pixel qui vaut 1.1 x 1.1 μ m².

B. Expérience

1. Montage expérimental

Le montage expérimental est présenté dans la Figure 103. Dans cette expérience, la mousse a été pré-générée par co-injection du gaz et de la solution de tensioactifs à l'aide d'une cellule SANS de 6.4 cm de longueur, avant d'être injectée dans une cellule spécifiquement adaptée à l'étude des écoulements en milieux poreux par tomographie X à haute résolution. Cette cellule, qu'on appellera par la suite « Microcellule », a fait l'objet d'une demande de dépôt de brevet en 2018. Elle possède une partie mobile et une partie fixe : le milieu poreux est contenu dans la partie mobile, de manière à pouvoir effectuer une rotation continue et infinie du milieu poreux pendant les acquisitions, grâce à un système de joints tournants. La partie fixe entoure la partie mobile et comprend une embase supérieure, une embase inférieure et un corps central, le corps central reliant les embases supérieures et inférieures, positionnées à chacune des extrémités du corps central. Les embases supérieure et inférieure comprennent les entrées/sorties de fluide, l'entrée étant dans l'une des embases et la sortie dans l'autre embase, de manière à ce que le fluide se dirige d'une embase vers l'autre, via des moyens de circulation de fluide compris à la fois dans la partie fixe et dans la partie mobile. Ainsi, le fluide entre dans une embase de la partie fixe, puis pénètre dans la partie mobile, se dirige à travers la partie mobile, dans une direction longitudinale, vers la deuxième embase et ressort de cette deuxième embase par la sortie, contenue dans la deuxième embase. Lorsqu'il passe dans la partie mobile, le fluide traverse le milieu poreux, contenu dans la partie mobile (cf. Figure 102.a).

La partie mobile consiste en un tube en PEEK (grande transmission des rayons X), de 10.15 cm de longueur et de 2 mm de diamètre interne. Nous avons choisi ce diamètre pour pourvoir imager la largeur de la cellule totale et la contenir dans le champ de vue du détecteur. La partie mobile est libre en rotation, par rapport à la partie fixe, autour de son axe longitudinal. Ainsi, des radiographies X peuvent être acquises à différentes positions angulaires, sans arrêter la rotation, ni la circulation des fluides (cf. Figure 102.b).



Figure 102 : (a) Schéma de circulation des fluides et (b) schéma du fonctionnement de la microcellule lors des acquisitions tomographiques.

La cellule SANS a été utilisée comme mousseur pour cette expérience et a été placée en amont de la microcellule (cf. Figure 103). Les deux cellules ont été remplies de grains de silice de granulométrie A (112-150 μ m) (cf. Chapitre 3). L'ensemble des tubings est en éthylène propylène fluoré (FEP) transparents qui nous permet de (1) contrôler visuellement le passage des fluides et de (2) rendre le montage expérimental plus flexible et plus souple. Le reste du dispositif expérimental est similaire à celui qui a été présenté dans les chapitres 2 et 3.

Pour permettre un suivi en temps réel de l'évolution de la pression, nous avons déporté l'ordinateur de contrôle à l'extérieur de la cabine expérimentale qui est interdite d'accès durant les acquisitions. Deux capteurs absolus ont été utilisés pour mesurer les pressions amont et aval de la cellule SANS. Le capteur différentiel a été utilisé pour les mesures de pression aux bornes de la microcellule.

La solution de tensioactif utilisée est composée de SDS à 0.5% en masse avec une saumure de NaCl de 0.2% en masse. Il s'agit de la même solution de tensioactifs (sans ajout de D_2O) que celle utilisée pour les expériences SANS présentées dans le chapitre 3. Pour la saturation du milieu poreux, on utilise la saumure de NaCl à 0.2% en masse. Le gaz utilisé est de l'azote N₂ injecté à l'aide du débitmètre Brooks SLA 5850S. La pression de pore est régulée 5 bars en aval de la microcellule. Les porosités des milieux poreux ainsi que leurs perméabilités sont indiquées dans le Tableau 24, pour deux expériences réalisées à l'ESRF.



Figure 103 : Montage expérimental d'observation de mousses en milieu poreux sur la ligne ID19.

Expérience	Φ_m	K_m (D)	$arPsi_{\mu C}$	$K_{\mu C}$ (D)
1	38.4%	9.3±0.5	44.7%	17.6±0.2
2	38.7%	11.4±0.7	40.7%	8.5±0.1

Tableau 24 : Porosités et perméabilités des milieux poreux utilisés lors de l'expérience Id19 : Φ_m et K_m désignent la porosité et la perméabilité de la cellule SANS. $\Phi_{\mu C}$ et $K_{\mu C}$ désignent la porosité et la perméabilité du milieu dans la microcellule.

2. Conditions expérimentales

Les deux milieux ont été d'abord saturés en saumure, avant de générer la mousse en co-injectant le tensioactif et le gaz à un débit total fixé et à une qualité de mousse donnée. Les conditions expérimentales sont résumées dans le Tableau 25 ci-dessous. Il faut noter que les débits auxquels nous avons travaillé engendrent des vitesses interstitielles élevées à cause de la section d'entrée de la microcellule qui est très petite (0.031 cm²). Ces choix des vitesses ont été guidés par notre volonté de tester plusieurs qualités de mousse dans le temps qui a été alloué à ces expériences. A ces débits d'injection et avec une taille de pore d'une centaine de microns de diamètre en moyenne, on s'attend à un écoulement d'une grande vitesse linéaire, de l'ordre de 20 pores par seconde. Or pour pouvoir suivre des phénomènes dynamiques et éviter des phénomènes d'artefacts, il faut respecter la règle suivante [139] :

Chapitre IV : Écoulement de la mousse à l'échelle du pore en 3D

$$t_{scan} < \frac{taille \ de \ pixel}{V_{int}}$$
 (IV.1)

Où t_{scan} correspond au temps d'acquisition d'une tomographie et V_{int} la vitesse interstitielle du fluide. De cette relation, on déduit qu'avec les vitesses auxquelles nous avons travaillé, il aurait fallu un temps de scan inférieure à 0.3 ms pour une taille de pixel de 1.1 µm et inférieur à 0.6 ms pour une taille de pixel de 0.55 µm. Nous montrerons qu'il est quand même possible d'exploiter les images, car la mousse dans les milieux poreux est formée d'une partie mobile et d'une partie piégée, et que cette dernière peut être imagée à l'aide d'une résolution temporelle d'une seconde ou plus.

Nous avons réalisé deux expériences dont les paramètres sont listés dans le Tableau 25 ci-dessous.

Numéro d'expérience	Q_g (mL/h)	Q_l (mL/h)	Q_t (mL/h)	f_g	V_{int_t} (mm/s)
	4.6	4.6	9.2	0.5	1.81
	6.4	2.7	9.2	0.7	1.81
	8.2	0.9	9.2	0.9	1.81
1	6.4	2.7	9.2	0.7	1.81
1	7.7	3.3	11.0	0.7	2.17
	8.3	3.6	11.9	0.7	2.35
	6.4	2.7	9.2	0.7	1.81
	8.2	0.9	9.2	0.9	1.81
	5.9	2.5	8.4	0.7	1.83
	7.5	0.8	8.4	0.9	1.82
2	6.7	1.7	8.4	0.8	1.82
	4.2	4.2	8.4	0.5	2.38
	3.4	2.1	5.5	0.62	1.20

Tableau 25 : Conditions expérimentales de co-injection du tensioactif et du gaz pourles expériences d'écoulement de mousses sur ID19.

C. Acquisition des images

Chaque volume 3D est caractérisé par un nombre de projections, un temps d'exposition par projection, une taille de champ de vue et une taille de pixel. Ces paramètres

peuvent être choisis indépendamment les uns des autres, mais influencent la fréquence d'acquisition des images et la rapidité de stockage des données. Une image 3D est acquise pendant une rotation de 180°.

Nous avons pu travailler dans deux configurations différentes à l'aide de deux systèmes de lentilles qui permettent d'avoir deux types d'agrandissement : un premier qui permet d'obtenir une taille de pixel finale de 1.1 μ m et un second qui permet d'avoir une taille de pixel de 0.55 μ m. Deux tailles d'images ont été visées : 1008 x 1008 et 2016 x 2016. Une acquisition 1008 x 1008 avec une taille de pixel de 1.1 μ m permet d'avoir un champ de vue de 1.1 mm. La taille du volume reconstruit est la même dans les 3 directions *x*, *y et z*. On obtient ainsi un cube pour chaque image 3D.

Dans le cadre de nos expériences, nous avons travaillé avec une lumière blanche filtrée pour produire une lumière dite « pink » optimisée pour notre échantillon autour d'une énergie de 35 keV. Pour cela, nous avons utilisé un élément d'insertion appelé U17.6 (U pour *undulator*) avec un entrefer des aimants (*gap*) de 11.5 mm et des filtres composés d'aluminium de 5.6 mm d'épaisseur. La distance échantillon-caméra variait entre 80 et 130 mm selon la taille de l'image.

Pour la 1^{ère} expérience, nous avons choisi de réaliser des acquisitions avec un temps d'exposition de 1ms par projections avec 1000 projections, ce qui permet d'avoir une image 3D en 1 s. Pour la 2^{ème} expérience, nous avons choisi un temps d'exposition de 2 ms par projection pour 1000 projections pour les images 1008 x 1008 pixels² et 1 ms par projection pour 2000 projections pour les images 2016 x 2016 pixels². Ainsi toutes les images ont été acquises en 2 s pour cette deuxième expérience. L'augmentation du temps d'acquisition a montré une amélioration significative de la qualité des images.

Par ailleurs, nous avons testé deux séquences d'acquisitions différentes :

- Une séquence standard qui correspond à l'acquisition d'une image 3D, stockée dans la mémoire RAM de la caméra avant d'être directement téléchargée sur le serveur. Ce mode permet de réaliser des acquisitions d'images environ toutes les minutes.
- Une séquence continue qui correspond à une acquisition continue d'images 3D toutes les secondes (ou toutes les 2 secondes) sans vider la RAM de la caméra. La mémoire de la caméra étant finie, le nombre d'images acquises en continu dépend

de la taille physique qu'elles occupent en mémoire. On peut par exemple acquérir jusqu'à 24 images continues de taille 1008 x 1008 pixels². Par contre, une fois la mémoire RAM remplie, il faut attendre le déchargement des images pendant douze à 20 minutes. Il est impossible de réaliser des acquisitions pendant ce déchargement.

A l'issue d'une acquisition, les radiographies sont stockées sous format edf (pour *ESRF Data Format*. Pour la reconstruction des images, on utilise un algorithme développée par l'ESRF (PyHST2) [143]. Pour gagner du temps sur le transfert des données depuis les serveurs de l'ESRF, les images ont été récupérées en format 16 bits sans aucune correction des anneaux (*ring artefacts*) pendant la reconstruction. Malgré cela, la récupération totale de toutes les images a nécessité plusieurs semaines à cause du volume important de données acquises.

III. Résultats

A. Caractéristiques microscopiques de la mousse

Une description qualitative des images en fonction de la position de la cellule (entrée de la cellule, milieu et sortie) et de la qualité de mousse est donnée en Annexe M. Les images montrent que le passage de la qualité de mousse de f_g 0.5 à f_g 0.7 engendre une diminution de la fraction liquide et une diminution de la taille de bulle à iso position dans la cellule. On note aussi que la fraction liquide diminue clairement entre l'entrée et la sortie de la cellule. Cette diminution s'accompagne d'une diminution de la taille des bulles de l'entrée vers la sortie.

Sur les Figure 104.a et Figure 104.b, on compare le milieu entièrement saturé en liquide avec le milieu contenant une mousse de qualité f_g de 0.7 pendant le régime transitoire. Les images représentent une coupe longitudinale¹² de chaque volume. Sur l'image du milieu saturé dont l'histogramme est représenté sur la Figure 105.a, on distingue de manière très nette les deux phases (liquide en bleu + solide en jaune). Le liquide apparaît à un niveau de gris proche de 100, tandis que la phase minérale (la plus absorbante) se situe à un niveau de gris de 175 environ. De la même manière, sur l'image de la mousse dont l'histogramme est représenté sur la Figure 105.b, on arrive à bien distinguer les trois phases (liquide + solide + gaz). Les phases liquide et solide apparaît à un niveau de gris proches de 100 et 175 respectivement, et la phase gaz apparait à un niveau de gris plus bas vers 50.

 $^{^{12}}$ Les coupes longitudinales correspondent aux plans (x,z) ou (y,z) et les coupes axiales correspondent au plan (x,y)



Figure 104 : Coupes longitudinales des micro-tomographies X du milieu saturé en saumure (a) et du milieu rempli de mousse à une qualité de mousse de 0.7 (b). L'échelle est indiquée en µm. Les grains sont en jaune, le liquide en bleu et les bulles en rouge.



Figure 105 : Histogrammes du milieu saturé en saumure (a) et du milieu rempli de mousse (b).

La phase liquide représente la phase minoritaire, en bon accord avec la définition d'une mousse. Un zoom sur l'image de la mousse (cf. Figure 106.b et c) permet de visualiser des bords de Plateau dont on peut deviner le prolongement vers les lamelles. La résolution spatiale ne permet pas de détecter les lamelles dont l'épaisseur est inférieure ou de l'ordre de 200 nm [118]. Dans ce milieu poreux¹³, la mousse observée est formée de plusieurs bulles

¹³ D'autres images de la mousse dans le milieu poreux sont données à titre illustratif en Annexe N.

jointives comme dans une mousse *Bulk* (cf. Figure 106.b et c). Dans le milieu poreux cependant, des trains de bulles s'écoulent et sont contraints par la géométrie des canaux du réseau poreux (Figure 106.a et Figure 106.b). On dénombre plusieurs bulles par pore.





B. Traitement des images

Pour aller plus loin dans l'interprétation et la quantification des images il faut leur appliquer un traitement destiné à éliminer les bruits et à séparer les phases. Nous présentons dans ce paragraphe une description des étapes de traitement des images 3D, qui ont été réalisées en collaboration avec une équipe de la direction de mathématique appliquée d'IFP Énergies Nouvelles.

1. Gestion des données

Les données acquises se mesurent en téraoctets¹⁴ et nécessitent une classification des images en fonction des paramètres de l'expérience et des paramètres d'acquisition. Nous avons créé une architecture informatique qui permette de travailler sur les données de manière continue avec un accès permanent depuis des ordinateurs de grandes capacités de mémoires physique et graphique. Pour cela, il a fallu d'abord classifier et ordonner les données dans un serveur dédié avec un espace de stockage suffisamment grand pour contenir toutes les données initiales d'images reconstruites ainsi que les images issues du traitement. Une base de données type « Mango DB » a été choisie pour héberger les données dans un format qui peut évoluer facilement dans le temps, si par exemple les métadonnées sont amenées à être enrichies. Ce type de base de données est orienté documents, répartissables sur un nombre quelconque d'ordinateurs et ne nécessite pas de schéma prédéfini des données.

2. Procédure de traitement des images

La procédure de traitement d'images a nécessité plusieurs mois de travail pour structurer l'archivage de nos images et ensuite pour définir un processus semi-automatisé de calculs à l'aide d'algorithmes de traitement d'images développés en *Python*. Ces algorithmes permettent notamment de séparer les différentes phases (liquide, solide et gaz) présentes dans le volume. La procédure de traitement des images se décompose essentiellement en deux étapes : Le pré-traitement et la segmentation.

a) Prétraitement

Cette étape se décompose en deux sous-étapes :

- La première concerne le dé-bruitage des images. Nous avons observé que les rapports signal sur bruit pour chaque coupe axiale et selon l'axe Z ne sont pas constants. Pour chaque coupe (X, Y) on corrige les inhomogénéités en réalisant un lissage pour réduire l'écart-type entre les valeurs de pixels voisins. Puis on réduit les surcroits d'intensité entre les différents plans (X, Y) en divisant chaque plan

 $^{^{14}}$ 1To = 1000Go

(X, Y) par l'image de la somme de toutes les coupes projetées selon l'axe des Z(cf. Figure 108.b).

 La deuxième sous-étape concerne le filtrage pour augmenter le rapport signal sur bruit. Pour cela, nous avons utilisé un filtre Bilatéral 3D [144], qui a montré les meilleures performances en nettoyage de l'image et en temps de calcul (cf. Figure 108.c).

b) Segmentation

L'étape de segmentation consiste à travailler sur les images corrigées puis filtrées et à séparer chaque phase sur l'histogramme (cf. Figure 107) : gaz, liquide et solide. On utilise pour cela un algorithme de recherche de la variance maximum interclasse, ou MVI (pour *Maximum Variance Interclass*). Cette méthode permet de trouver à partir de l'histogramme, la meilleure valeur possible décrivant les pics de chacune des trois phases et retourne la moyenne et la variance de chaque classe. Ces derniers, sont utilisés pour labelliser chaque voxel avec un indice qui est associé à une phase unique : bulles de gaz (2), liquide (4) et solide (6). Pour finir, on applique la méthode de segmentation par ligne de partage des eaux (ou *Watershed*) qui simule une inondation de phases à partir d'un relief topographique de l'image contenant les voxels labellisés (cf. Figure 108.d) [145]. L'étape de quantification des différentes phases sur l'image 3D est réalisée à partir de l'image segmentée. On obtient 3 indices qui sont associés à chaque phase : solide (6), liquide (4) et gaz (2).



Figure 107 : Méthode de segmentation à l'aide de l'algorithme MVI (Maximum Variance Interclass).



Figure 108 : Coupe axiale d'une image (a) acquise, (b) corrigée, (b) filtrée et (d) segmentée.

3. Calcul de la saturation des phases

Les images que nous avons acquises représentent la dynamique d'écoulement de la mousse à différents instants avec une résolution temporelle de 1 seconde. La co-injection de la solution de tensioactifs et du gaz est réalisée à une vitesse interstitielle totale (liquide + gaz) qui est très grande (1.8 mm/s). Seules les images (ou les parties de l'image) où le temps de résidence des bulles est plus grand que le temps d'acquisition de cette image, nous permettront de déceler de manière nette la phase liquide et les bulles qui composent la mousse. Ainsi, dans un même volume, on peut avoir des parties où les bulles de gaz se distinguent bien (bulles de formes arrondies) et d'autres parties où le gaz semble remplir le pore presque en totalité et que l'on interprète comme l'enveloppe de bulles et du liquide en mouvement rapide dans ce pore (cf. Figure 109.a et b). Dans ce dernier cas, la structure de la mousse n'est pas observable. Par ailleurs, on décrit la somme des saturations de toutes les phases présentes dans le réseau poreux à l'aide de la formule suivante :

$$S_{q}^{t} + S_{q}^{f} + S_{l}^{t} + S_{l}^{f} = 1$$
 (IV.2)

Où S_g^t et S_g^f représentent les saturations de gaz piégé (t pour « trapped ») et en écoulement (f pour « flowing ») respectivement, et S_l^t et S_l^f représentent les saturations du liquide piégé et du liquide en écoulement respectivement. Rappelons que la saturation d'une phase est définie par le volume d'une phase rapporté au volume poreux dans l'image considéré.

Le liquide et le gaz en mouvement se confondent en une seule phase ayant un niveau de gris proche de celui du gaz. Toutefois, le liquide visible sur les images est majoritairement localisé dans (1) les zones piégées, celles dont le temps de résidence est supérieur à la seconde, et dans (2) les espaces interstitiels très fins entre les grains. Ainsi, la localisation de la phase dite « immobile » (car associée aux bulles piégées) peut aider au repérage de la mousse piégée et sa quantification peut donc servir de critère pour évaluer le niveau de piégeage de la mousse. Nous reviendrons sur ce point plus en détails par la suite. En regroupant toutes les phases contenues dans la phase segmentée représentant le gaz, on réécrit l'équation (IV.2) selon :

$$S_{\alpha} + S_l^t = 1 \tag{IV.3}$$

Où

$$S_{\alpha} = S_{a}^{t} + S_{a}^{f} + S_{l}^{f} \tag{IV.4}$$



Figure 109 : Coupe axiale de deux tomographies représentant (a) la mousse piégée et (b) la mousse en mouvement, avec séparation des phases gaz ou gaz +eau en mouvement (orange), liquide (bleu) et solide (violet).

4. Dynamique de piégeage des bulles

Le piégeage d'une mousse présente une dynamique particulière où les bulles apparaissent puis disparaissent de manière intermittente. Nous avons analysé cette dynamique sur une échelle de temps de la seconde à l'heure sur quelques séries de tomographies et nous l'illustrons pour deux d'entre elles correspondant aux 2 séquences définies auparavant :

- Une série de 27 tomographies acquises en mode standard (séquence lente) où les tomographies sont séparées d'environ 1min30s dans le temps.
- Quatre séries de 21 tomographies, acquises en continu (2 secondes d'acquisition toutes les 2 secondes pendant 42 secondes). Les 4 séries sont espacées d'environ 12 minutes l'une de l'autre, temps qui correspond au temps de déchargement de la caméra.

a) Évolution de la fraction de liquide «immobile»

(i) Dynamique d'acquisition lente

La Figure 110 présente les variations de la saturation de liquide « immobile » et du gradient de pression total $\left(\frac{\Delta P}{L}\right)$ aux bornes de la cellule en fonction du temps, lors du régime transitoire de la qualité de mousse $f_g = 0.7$ pour l'expérience N°1. Tout d'abord, on remarque que la saturation S_l^t varie légèrement autour d'un plateau proche d'une saturation moyenne de 0.12 entre 640 et 680 min. Pendant ce laps de temps, neuf acquisitions tomographiques ont été réalisées. Ensuite on observe une grande oscillation désignée par les lettres (a), (b), (c) et (d). Puis la saturation S_{l}^{t} commence à nouveau à varier autour de 0.12. Une reconstruction du volume aux différents instants (a), (b), (c) et (d) est représentée sur la Figure 111. Sur cette dernière, les grains sont représentés avec une couleur gris foncée, les bulles en gris clair et la phase liquide en bleu. La mousse présente des aspects différents d'une image à l'autre. On remarque que, conformément au profil de saturation, la quantité de liquide augmente pour l'image (b) et diminue fortement pour l'image (c). Les autres images (a) et (d) présentent des saturations liquides intermédiaires. Notons aussi que l'aspect géométrique des bulles est différent d'une image à l'autre. On remarque en particulier que les bulles sont plus sphériques, entourées d'une quantité importante de liquide pour l'image (b). En revanche, l'image (c) présente de grandes poches de « gaz » qui remplissent plusieurs pores en même temps. Les images (a) et (d) sont intermédiaires entre ces 2 cas de figures, la (a) étant plus proche de la (d).

En revanche, il est difficile de relier directement les mesures de saturation de liquide « immobile » et de la pression¹⁵ même si les deux semblent être inversement corrélés sur la Figure 110. En effet, la saturation est mesurée sur un volume qui représente 0.2% du volume poreux total aux bornes desquelles les mesures de pression sont réalisées.

Pour visualiser indépendamment la phase d'eau « immobile », nous avons extrait cette phase par segmentation puis reconstruit le volume correspondant en marquant de couleurs différentes les clusters non connectés, à la résolution observée. L'eau immobile apparait comme un réseau plus ou moins fin et plus ou moins connecté. Les volumes correspondants sont présentés sur la Figure 112. Plus la connectivité est grande, moins il y a de couleurs différentes. Il est intéressant de noter que pour l'acquisition (b), correspondant au piégeage maximum, la couleur est uniforme et le réseau est très épais. Les Figure 112.a et d présentent une connectivité intermédiaire avec deux ou trois couleurs dominantes et une épaisseur de liquide intermédiaire, tandis que la Figure 112.c présente la plus faible connectivité du réseau liquide dans le milieu poreux avec un grand nombre de clusters isolés. Là encore, il faut noter que la résolution est insuffisante pour voir les films mouillants le long des parois de pores. Les clusters identifiés sur la Figure 112.c sont donc probablement reliés par ces films minces de mouillage et qui ne sont pas visibles. Les différentes couleurs marquent donc l'éloignement des clusters, les uns des autres. On note aussi une quantité d'eau moindre pour ce volume (cf. Figure 111.c) en accord avec les valeurs moyennes mesurées sur l'image segmentée. Ainsi, lors de la phase de piégeage, les zones d'eau immobiles sont plus larges et mieux connectées les unes aux autres.

¹⁵ Notons que les capteurs de pression offrent une grande stabilité d'affichage de 1 mbar et une incertitude sur la mesure estimée à 8 mbar



Figure 110 : Variation du gradient de pression total et de la saturation de liquide « immobile » estimée sur un volume de (495 x 495 x 554 μ m³) en fonction du temps. Chaque point rouge correspond à une acquisition tomographique. La courbe du gradient de pression en fonction du temps pour toute l'expérience est montrée dans l'encart en haut à gauche, et le rond permet de situer les acquisitions dessus.



Figure 111 : Phénomène d'intermittence observé pour des acquisitions tomographiques successives : (a) 682 min, (b) 684 min, (c) 685.5 min et (d) 688 min. Les temps correspondent aux temps indiqués sur la Figure 110. Les grains sont représentés en gris foncé, le gaz ou gaz +eau en mouvement en blanc et le liquide en bleu.



Figure 112 : Extraction de la connectivité du réseau liquide pour les tomographies successives : (a) 682 min, (b) 684 min, (c) 685.5 min et (d) 688 min. Les temps correspondent aux temps indiqués sur la Figure 110. Plus les couleurs sont différentes, moins il y'a de connectivité dans le réseau liquide.

(ii) Dynamique d'acquisition rapide

Afin de vérifier et comprendre les phénomènes de piégeage décrits dans le paragraphe précédent, nous avons refait une expérience à l'ESRF avec le même milieu poreux et pour la même qualité de mousse ($f_g = 0.7$), injectée directement après la saturation du milieu poreux en saumure. La Figure 113 représente la variation du gradient de pression aux bornes de la cellule en fonction du temps pendant l'écoulement de la mousse. Sur cette figure, nous remarquons une grande oscillation de pression à un moment proche de l'état stationnaire (cf. encart en bas à gauche sur la Figure 113). Nous avons réalisé autour de cette oscillation, quatre séries d'acquisitions tomographiques continues, où chaque série est composée de 21

tomographies de 2 secondes toutes les 2 secondes. Les séries sont acquises à un intervalle de temps d'environ 12 min.



Figure 113 : Gradient de pression total en fonction du temps et repérage des temps d'acquisition des quatre séries (A), (B), (C) et (D) d'acquisitions continues.

Des images qui illustrent une tomographie de chaque série sont données sur la Figure 114. Sur cette figure, on remarque que la quantité de bulles piégées augmente pour la série (A), diminue pour la série (B), augmente encore à nouveau pour la série (C) et enfin diminue pour la dernière série (D). Un calcul de la saturation S_l^t sur toutes les images de chacune de ces quatre séries a été réalisé et le profil de saturation en fonction du temps est représenté sur les Figure 116. (A), (B), (C) et (D). On constate que les mesures de saturation de liquide « immobile » restent stables ou oscillent sur une faible amplitude à l'échelle de la seconde (cf. courbes en rouge sur la Figure 116). On peut remarquer que S_l^t oscille autour de 0.15 pour la série (A), 0.05 pour la série (B), 0.3 pour la série (C) et autour de 0.1 pour la série (D). Ainsi, le maximum de piégeage correspondant à la fraction liquide « immobile » la plus élevée est observé pour la série (C) et le minimum pour la série (B) ce que confirment les images d'extraction de la phase liquide sur la Figure 115.

Notons que cette séquence d'images que nous venons d'analyser et qui étaient particulièrement de bonnes qualités avec un rapport signal sur bruit élevé en comparaison avec d'autres images de la même expérience, est observée pour une grande fluctuation de la pression. Cette dernière est plus accentuée que les fluctuations de pression observées plus loin dans le temps, à l'état stationnaire (cf. encart en bas à gauche sur la Figure 113). Toutefois, plusieurs auteurs[84] confirment que la dynamique de la mousse dans les milieux poreux engendrent des fluctuations de pression qui rendent compte des effets de fluctuations des vitesses d'écoulement des bulles dans les différents canaux du réseau poreux.



Figure 114 : Dynamique de piégeage observée sur des séries continues (A), (B), (C) et
(D) espacées de plusieurs minutes dans le temps. Les numéros correspondent aux acquisitions citées sur la Figure 116. Les grains sont représentés en gris foncé, le gaz ou gaz + eau en mouvement en blanc et le liquide en bleu.



Figure 115 : Extraction du réseau liquide (en bleu) pour les tomographies (A-15), (B-5), (C-9) et (D-0) correspondants aux séries (A), (B), (C) et (D). Sur ces images, les grains ont été enlevés et seulement les bulles de gaz et le liquide sont visualisés.



Figure 116 : Variation du gradient de pression total et de la saturation de gaz estimée sur un volume de (495 x 495 x 554 µm3) en fonction du temps pour quatre séries successives de tomographies continues. Chaque tomographie est acquise pendant 2 s. Une illustration pour chaque série est donnée dans la Figure 114.

b) Mécanisme de piégeage de la mousse

Nous reprenons ici la série de 4 tomographies parmi les 30 acquises toutes les minutes (dynamique d'acquisition lente) pour nous intéresser aux mécanismes de piégeage. Le passage direct d'un stade de fort piégeage à un stade de dé-piégeage total nous a encouragés à aller plus loin dans la description des répartitions locales des fluides et de leur évolution dans le temps. Nous avons en particulier remarqué qu'au stade de dé-piégeage total de la mousse dans la zone observée (cf. Figure 111.c), il restait seulement une très faible quantité de liquide interstitiel entre les grains. Nous avons pris cet état comme référence et analysé les différences entre cet état et les 3 autres.

Nous présentons sur les Figure 117 et Figure 118 l'évolution des phases eau (bleu clair) et gaz (bleu marine) pour les tomographies (a), (b), (c) et (d) acquises avec une dynamique d'acquisition lente (cf. III.B.4.a)(i)). Dans ces images le liquide interstitiel entre les grains apparait en jaune car présent dans tous les volumes. On remarque clairement que le liquide interstitiel reste inchangé, piégé dans les très petits interstices inter-gains. Le liquide

interstitiel représente la saturation irréductible en eau qu'on observe dans les phénomènes de drainage du liquide par le gaz, et qu'on appelle *connate water saturation* en anglais ou S_{wc} . C'est à dire la plus petite saturation en eau que l'on peut atteindre par drainage (cf. Annexe B).

Le fort piégeage de la mousse qui intervient en (b) et qui se caractérise par l'apparition d'un grand nombre de bulles à l'arrêt sur la Figure 118.b est corrélé à la forte saturation locale en eau. Les images (a) et (d) sur les Figure 117 et Figure 118 représentent les acquisitions pour lesquelles la saturation liquide est représentative d'un piégeage intermédiaire (cf. courbe en rouge sur la Figure 110) et l'image (c) correspond au piégeage minimum. On remarque par comparaison des images (a), (b), (d) à (c) que le piégeage de la mousse est associé au phénomène d'imbibition. On voit les films d'eau (bleu clair sur les images) croitre depuis le liquide interstitiel inter-grains (en jaune sur les images) et s'étendre le long des parois de pores et dans le squelette liquide de la mousse pour former une enveloppe autour des bulles et les forcer à s'immobiliser voire à se reconfigurer dans le pore. Ainsi les petites constrictions de pores qui sont facilement saturées d'eau par imbibition peuvent jouer le rôle d'obstacle ou de canaux de confinement des bulles à l'intérieur d'un pore sur le court terme. A l'échelle locale, le changement de la quantité liquide « immobile » sur les images de la Figure 117 et Figure 118 laisse penser que le phénomène de piégeage intermittent de la mousse s'apparente à des cycles rapides d'imbibition et de drainage.



Figure 117 : Evolution de la phase liquide pour les images (a), (b), (c) piégeage minimum et (d) : coupe 300. Le grain est représenté en rouge, le gaz en bleu foncé, le liquide interstitiel en jaune et l'eau imbibée en bleu clair. Les flèches représentent le phénomène d'imbibition depuis le liquide interstitiel.



Figure 118 : Evolution de la phase liquide pour les images (a), (b), (c) et (d) : coupe 500. Le grain est représenté en rouge, le gaz en bleu foncé, le liquide interstitiel en jaune et l'eau imbibée en bleu clair. Les flèches représentent le phénomène d'imbibition depuis le liquide interstitiel.

IV. Discussion

La fraction de gaz piégée par les lamelles stationnaires représente une fraction de l'espace poreux non accessible à l'écoulement des fluides. Toutefois, le liquide peut s'écouler à travers la matrice liquide que forme la mousse dans le milieu poreux [51]. Différents auteurs se sont intéressés au caractère intermittent du blocage du gaz dans le milieux poreux par la mousse [84, 146, 147]. Mast [147] a déclaré que le piégeage du gaz par la mousse changeait les chemins d'écoulement du gaz mobile, à cause d'un changement permanent de la répartition des pressions capillaires locales dans le réseau poreux. Le drainage, la rupture et la régénération de la mousse contribuerait spécifiquement à la modification de l'écoulement et à l'orientation de la mousse dans des chemins très différents. Owete et Brigham [146] rapportent aussi que l'écoulement devient temporairement bloqué à cause de la redistribution perpétuelle des phases qui forment la mousse. Si le gradient de pression devient très important pour pouvoir entrainer un train de bulles dans un pore rempli de liquide, la pression capillaire locale qui est définie par la géométrie du seuil de pore ainsi que par les pores voisins déterminera la manière dont vont s'écouler les trains de bulles et leurs distributions dans le réseau poreux. Shirley [148] a observé que les bulles sont piégées lorsque leur taille augmente, et que l'augmentation de la pression permettait de déloger les bulles en place. Hanssen [149] a observé un phénomène intéressant d'oscillation périodique des lamelles dans les seuils de pores. Ces oscillations varient en amplitude et dans le temps. Il a décrit ces oscillations comme une « respiration » des lamelles qui se transmettait à travers de larges zones où les lamelles existent. Cette « respiration » des lamelles pouvaient durer quelques minutes, s'arrêter puis reprendre. Après une heure d'écoulement, la période d'oscillation devenait courte et la période de stagnation devenait plus longue. Géraud et al., [84] ont détaillé une étude sur l'intermittence de l'écoulement de la mousse et ont montré qu'il existe une large distribution des vitesses d'écoulement des bulles de gaz dans leur micro-modèle.

Notons que tous ces travaux ont été réalisés sur des puces micro-fluidiques ou des micro-modèles de milieux poreux. Ces travaux ont permis d'avoir un aperçu sur le comportement du piégeage de la mousse et de son écoulement intermittent. Dans notre cas, les observations en trois dimensions montrent qu'il existe bien un phénomène d'intermittence entre le piégeage résultant de l'augmentation de la saturation liquide locale par imbibition et la mobilisation des bulles de gaz quand la saturation locale en eau diminue de nouveau. Dans nos séquences d'acquisition rapide, nous observons un comportement similaire à celui

rapporté par Hanssen [149] à savoir que les bulles piégées « oscillent », avancent et reculent autour d'une position moyenne pendant plusieurs tomographies consécutives. Les zones où la mousse est piégée se caractérisent par une structure de mousse complète (bords de plateau + nœuds + films liquides) avec des bulles bien distinctes dont la taille est bien en dessous de la taille du pore dans lequel elles se forment (on observe plusieurs bulles par pore).

Le liquide de la mousse est confiné entre les interfaces gaz/liquide. La loi qui impose la courbure moyenne et détermine la forme des bords de Plateau et des nœuds est la loi de Young Plateau qui exprime la différence de pression entre le liquide et le gaz selon :

$$P_g - P_l = \sigma(\frac{1}{r_{PB}} + \frac{1}{r_f})$$
 (IV.5)

Où P_g est la pression du gaz dans la bulle et P_l la pression de la phase liquide. σ la tension de surface entre le liquide et le gaz. r_{PB} et r_f définissent les rayons de courbure du bord de Plateau et du film liquide respectivement. Cette différence de pression entre les deux phases exprime aussi la pression capillaire $P_c(S_l)$ qui dépend de la saturation liquide S_l selon l'équation suivante :

$$P_c(S_l) = P_g - P_l \tag{IV.6}$$

Pour la mousse piégée observée sur les Figure 117.b et Figure 118.b, la courbure des bords de Plateau est bien plus petite que la courbure des films liquides qui présentent des surfaces plates. En plus, d'après ces images, les bulles piégées présentent un aspect sphérique. Ceci est validé visuellement si l'on regarde les Figure 117.b et Figure 118.b. Le rayon de courbure des bords de Plateau peut être ainsi comparé au premier ordre au rayon de la bulle R_b . Des équations (IV.5) et (IV.6) on peut déduire que :

$$P_c(S_l) \cong \frac{\sigma}{r_b}$$
 (IV.7)

Par ailleurs, on sait que le processus d'imbibition d'un milieu poreux induit par le déplacement d'un fluide non mouillant (gaz) par un fluide mouillant (liquide), diminue la pression capillaire avec une augmentation de la saturation liquide. Par conséquent, la taille de bulle doit augmenter d'après l'équation (IV.7) si la saturation liquide locale augmente. On fait l'hypothèse dans ce cas, que la pression capillaire est distribuée de manière isotrope sur tout

le volume considéré. Ainsi, il est probable que sur les images (c) des Figure 117 et Figure 118 sur lesquelles on n'observe pas de bulles piégées, à cause de la mobilité forte de la mousse pendant l'acquisition, les bulles auraient tendance à minimiser leur taille pour pourvoir s'écouler facilement à travers les canaux du réseau poreux. En contrepartie, le piégeage de bulles dans certains pores serait dû à leur plus grande taille et un gradient de pression local insuffisant pour les déloger. C'est-à-dire un gradient de pression inférieur à la pression capillaire développée par les interfaces de la bulle.

En réalité, ce raisonnement est un peu simplificateur car il ne tient pas compte d'une part des effets de dissipation visqueuse qui ont lieu au contact entre le réseau complexe des bords de Plateau et les grains solides, et d'autre part, il ne tient pas compte de toutes les forces capillaires résultantes de tous les films liquides qui entourent la bulle. La moyenne de ces forces capillaires dépend certainement de la taille des bulles et des tailles caractéristiques du réseau de pores et de seuils dans lesquels se trouvent ces bulles. En toute rigueur, il faut comparer la géométrie des canaux poreux aux tailles des bulles qui présentent tous les deux une distribution statistique donnée à un instant donné. Jones et al., [101] trouvent qu'il existe une taille de canal critique pour laquelle la mousse passe d'une structure de mousse en bambou à une structure de mousse poly dispersée. Dans le régime de mousse en bambou, la vitesse des bulles décroît lorsque la taille du canal augmente. En revanche, lorsque la taille du canal devient supérieure à la taille de la bulle, il se produit une transition abrupte dans le régime d'écoulement et dans la structure de la mousse où la vitesse augmente dans les canaux les plus petits. Pour rendre compte de ces observations, un schéma simplifié est donné sur la Figure 119. Dans un milieu poreux réel 3D, comme le nôtre, les deux structures de mousse peuvent coexister, et donc plusieurs tailles de bulles, tailles de canaux et vitesses d'écoulement vont influencer l'hétérogénéité de l'écoulement de la mousse et de son piégeage.



Figure 119 : Schéma expliquant le phénomène de piégeage en fonction du rapport de taille de bulle R_b sur la taille du canal d'écoulement de rayon a, pour une distribution supposée normale. La vitesse désigne ici la vitesse locale des bulles de gaz.

De plus, le piégeage est un phénomène dynamique et est mieux apprécié en sondant la structure et la vitesse des bulles sur tout le réseau poreux à une fréquence d'acquisition plus grande que la dynamique des bulles en soi. Les travaux réalisés par Géraud et al., [84] ont permis de donner une cartographie des vitesses découlements et ont comparé cette dernière à la distribution des sections des pores de leur micro-modèle. Ils trouvent que la plupart des chemins préférentiels de la mousse ont lieu à travers des séries de larges pores interconnectés. Les bulles piégées se trouvent confinées par les petites constrictions de pores qui sont facilement saturées d'eau et jouent le rôle d'obstacles ou de confinement sur le court terme. En plus, ces bulles piégées oscillent autour de leur positions respectives, ce qui rejoint les observations de Hanssen [149] discutées auparavant. Ces fluctuations dans le temps et dans l'espace des chemins préférentiels de la mousse seraient d'après Géraud et al., [84] la résultante des fluctuations des pressions capillaires ressenties par chaque bulle dont les films associés changent constamment leur concavité. Les forces capillaires seraient des forces motrices ou au contraire des forces résistives selon la variation de la concavité des films liquides. Les effets de contact et de mouillabilité entre le liquide et les grains seraient aussi des paramètres importants qui rentrent dans la description des variations des forces capillaires ressenties par la mousse.

Notons aussi que la théorie sur les écoulements de la mousse prédit que la perméabilité relative du gaz décroit lorsque le nombre de pore où le gaz est piégé augmente [150]. Jones et al., [102] affirment que la perméabilité relative du gaz et donc la mobilité du gaz diminuent lorsque la fraction de gaz piégé augmente. Cette dernière augmente aussi lorsque la qualité de la mousse ou la vitesse totale diminuent. On montre ici avec images à l'appui, qu'effectivement le piégeage revient localement à une augmentation de la saturation liquide et donc à une diminution de la perméabilité relative du gaz. En plus, on montre que le piégeage est caractérisé par une synergie entre les bulles de la mousse où le nombre de ces dernières devient grand dans un pore donné. Les limitations en champ de vue ne nous permettent pas en revanche, d'observer ce qui se passe dans d'autres régions du volume poreux aux mêmes instants. Il est probable que des chemins d'écoulement différents existent, ce qui rendrait compte des effets d'intermittence à une plus grande échelle [42] et des chemins préférentiels de la mousse à travers le milieu poreux [84]. Du point de vue du réseau poreux, le piégeage reviendrait aussi à diminuer la porosité effective du milieu à cause de ces chemins préférentiels [84]. Enfin, notons que nous avons décrits des images locales lors du régime transitoire de la mousse. Mais les régimes transitoires et stationnaires sont souvent décrits sur une échelle de temps beaucoup plus grande que l'échelle de nos observations. Ainsi, les effets d'intermittence, de piégeage et de mobilisation de la mousse à l'échelle du pore décrivent des phénomènes dynamiques locaux qui peuvent être observés aussi bien en régime transitoire qu'en régime stationnaire [84].

Ces interprétations et discussions rejoignent fortement les travaux de la littérature et apportent un nouvel éclairage grâce aux images en trois dimensions que nous avons obtenues à l'aide de la micro-tomographie-X rapide, haute résolution, pour la première fois dans le domaine des écoulements de mousses en milieux poreux.

V. Conclusion du quatrième chapitre

La technique de micro-tomographie-X haute résolution réalisée sur la ligne ID19 de l'ESRF a permis de sonder la structure de la mousse en écoulement dans un milieu poreux pour la première fois. Nous avons notamment développé une cellule spécifique qui a permis de réaliser des écoulements à haute pression dans des milieux poreux constitués de grains de silice, tout en réalisant des acquisitions d'images tomographiques continues. La seule limitation physique pour ce genre d'expériences réside dans la capacité de stockage de la mémoire de la caméra et donc dans la restriction du nombre d'images acquises en continu.

L'analyse des images recueillies pendant ces expériences a nécessité le déploiement d'un processus de traitements d'images conséquent basé sur la création d'une architecture informatique solide pour la visualisation, la gestion et le calcul sur de gros volumes de données. L'investigation sur une partie de ces données a notamment permis de :

- Révéler la structure microscopique de la mousse dans un réseau poreux 3D, en visualisant le réseau liquide formé par les bords de Plateau et les vertex ainsi que le prolongement des lamelles liquides. On retrouve dans certaines zones du milieu poreux une structure de mousse proche de la structure de la mousse b*ulk*.
- Donner une description qualitative de la mousse en fonction de la position de la cellule (entrée de la cellule, milieu et sortie) et de la qualité de mousse. Le passage de la qualité de mousse de f_g 0.5 à f_g 0.7 engendre une diminution de la fraction liquide et une diminution de la taille de bulle à iso position dans la cellule. La fraction liquide diminue clairement entre l'entrée et la sortie de la cellule. Cette diminution s'accompagne d'une diminution de la taille des bulles de l'entrée vers la sortie. Le nombre de bulles par pores est supérieur à 1.
- Calculer les saturations de phases gazeuses et liquides et d'extraire une saturation de liquide « immobile » associée aux zones de mousses piégées. Cette saturation peut servir de « marqueur » pour quantifier le piégeage et son évolution dans le temps.
- Différencier les zones de mousse en mouvement et les zones de piégeage de la mousse qui se caractérisent par une augmentation de la saturation liquide « immobile », et un grand nombre de bulles immobiles qui occupent les pores.
- Faire ressortir des effets d'imbibition et de drainage qui seraient à l'origine des effets d'intermittence du piégeage de la mousse, l'imbibition étant responsable du

piégeage local qui dépendrait alors de la topologie du réseau poreux. Les pores dont l'accès se ferait par de plus petites constrictions seraient une zone de piégeage potentielle.

- Dissocier sur les images le liquide interstitiel entre les grains qui constitue la fraction de liquide irréductible et la fraction de liquide variable et intermittente associée à la mousse.