Matériaux modèles

Dans le but de mieux comprendre l'origine du comportement rhéologique de la boue de forage, et particulièrement l'origine des effets thixotropes, nous avons formulé un matériau modèle sur la base de la formulation du fluide de forage réel. Au-delà des considérations rhéologiques liées à nos problématiques, nous voulons ici généraliser notre étude au cas des fluides thixotropes. Dans ce cadre, nous avons tout d'abord cherché à définir une formulation stable nous permettant de retrouver puis de décrire les effets thixotropes de la boue de forage. Puis nous avons poursuivi par une étude de la structuration dans le régime solide, de la transition liquide / solide et enfin du régime liquide du matériau.

4.1 Rhéologie exploratoire des systèmes modèles

Dans le but de définir une formulation stable pour l'étude de nos systèmes modèles, nous avons étudié dans un premier temps les propriétés rhéologiques d'émulsions inverses mélangées à des particules d'argile organophile. Puis nous avons fait varier les concentrations des différents constituants (rapport eau/huile, argile et surfactant) pour déterminer les concentrations où le matériau modèle présenterait le comportement rhéologique recherché dans une large gamme de concentration en gouttelettes et dans des conditions optimales de stabilité (faible sédimentation) et de reproductibilité des matériaux (protocole identique pour tout les matériaux modèles, taille de goutte de l'ordre du micromètre).

4.1.1 Propriétés rhéologiques des systèmes modèles

Pour cela, nous avons formulé un premier fluide modèle ayant une concentration en phase dispersée de 30%, une concentration en argile de 2% et une concentration en surfactant de 1%. Nous avons alors utilisé le protocole de formulation définit au chapitre 2.

Ce fluide a alors été testé en rhéométrie conventionnelle (rhéomètre Bohlin CVOR200) en réalisant des séries de fluages suivant un protocole défini (voir chapitre 2). On a alors regardé l'évolution de la viscosité apparente au cours du temps pour différentes contraintes appliquées (Figure 41-1).

Sur la figure 41-1, nous observons que le comportement rhéologique est différent suivant la contrainte imposée. Comme pour le matériau réel, nous obtenons une bifurcation de viscosité. Lorsque l'on applique une contrainte inférieure à une contrainte critique, la viscosité augmente de plusieurs décades mais le matériau continue de s'écouler sur le temps expérimental considéré, alors que pour une contrainte appliquée supérieur à la valeur critique,

la viscosité temps vers une valeur finie dépendante du niveau de contrainte imposée, le matériau s'écoule en régime permanent.

Ici, nous retrouvons donc dans un premier temps une partie du comportement rhéologique des fluides de forage à base d'huile, sous la forme de propriétés thixotropes. Nous pouvons alors affirmer que notre matériau modèle peut, moyennant quelques précisions sur la formulation, représenter le comportement rhéologique des systèmes plus complexes que sont les boues de forage à l'huile.



Figure 41-1 : Evolution de la viscosité apparente sur 2400s pour différentes contraintes imposées.

On peut cependant remarquer que même si le comportement du fluide modèle a des propriétés thixotropes similaires au matériau réel, il reste différent au niveau notamment de la cinétique de la bifurcation et également au niveau des premiers instants de l'écoulement. En effet, nous pouvons voir que la bifurcation intervient pour une contrainte critique entre 4 et 5 Pa et après environ 100s d'écoulement. Pour le matériau réel la contrainte critique était inférieure à 2.85Pa et la bifurcation démarrait après une phase d'écoulement de 300s où le fluide se comportait comme un simple fluide en loi de puissance. Nous pouvons cependant nous intéresser à l'existence d'un gradient de vitesse critique, ce que nous souhaitions également obtenir par cette formulation. Nous regardons alors l'évolution temporelle du rhéogramme apparent reconstruit à partir des mesures en fluages en prenant à différents temps et pour les différentes contraintes imposées les gradients de vitesse correspondant (Figure 41-2).

Sur cette figure on peut tout d'abord voir que l'on ne retrouve pas le comportement en loi de puissance pour les premiers instants de l'écoulement. Le comportement rhéologique est tout de suite marqué par une rupture de pente sur la courbe d'écoulement à 16s. Au cours du temps, ce phénomène s'accentue et on identifie alors un gradient de vitesse critique pour de très faibles cisaillements.



Figure 41-2 : Evolution temporelle du rhéogramme apparent pour le système modèle avec $\phi = 30\%$. Données issues de la figure 41-1.

La formulation simplifiée ne représente donc pas de manière exacte tous les phénomènes identifiés et étudiés pour le matériau réel mais possède les principales caractéristiques rhéologiques pour notre étude : seuil d'écoulement, bifurcation de viscosité (thixotropie).

4.1.2 Influence de la fraction volumique en phase dispersée

Nous allons maintenant nous intéresser à l'influence de la concentration en gouttelettes sur les propriétés rhéologiques globales des systèmes modèles. Pour cela, nous formulons un matériau ayant des concentrations en argile et en surfactant identiques au matériau précédent mais nous augmentons la fraction volumique en phase dispersée jusqu'à 60%. Nous réalisons des mesures identiques en fluage et nous regardons la viscosité apparente au cours du temps pour différentes contraintes appliquées (Figure 41-3).

Nous retrouvons le même comportement rhéologique global avec une bifurcation de viscosité cependant moins marquée. On peut noter que la contrainte critique du matériau a augmenté passant de 4.5 à 11 Pa. La bifurcation de viscosité débute ici à un temps supérieur de 900s au temps du système modèle avec 30% de gouttes (100s), les propriétés thixotropes ont donc été modifiées par l'ajout de gouttelettes.



Figure 41-3 : Evolution temporelle de la viscosité apparente pour différentes contraintes appliquées sur le système avec $\phi = 60\%$.

Les courbes d'écoulement apparentes (figure 41-4) sont également différentes. Aux hauts gradients de vitesse on ne retrouve pas le comportement unique que nous avions sur la figure 41-2 pour le système avec une fraction volumique en phase dispersée de 30%. Nous observons également l'existence d'un gradient de vitesse critique pour cette concentration.



Figure 41-4 : Evolution temporelle du rhéogramme apparent pour le système avec $\phi = 60\%$. Données issues de la figure 41-3.

Il faut cependant garder à l'esprit que nous réalisons ici des mesures apparentes qui ne reflètent pas la probable complexité de l'écoulement dans la géométrie de Couette à cylindres

coaxiaux. Nous savons ici que les propriétés thixotropes sont modifiées lorsque l'on augmente le nombre de gouttes dispersées dans le système.

4.1.3 Influence de la concentration en argile

Nous allons étudier l'influence de la concentration en argile dans la phase continue sur les propriétés rhéologiques des fluides modèles.

Nous réalisons des expériences similaires que précédentes (fluages) sur deux systèmes dont les fractions volumiques en gouttelettes et en surfactant sont fixes, mais avec une fraction volumique en argile qui varie de 2% (Figure 41-5 a.) à 3% (Figure 41-5 c.).



Figure 41-5 : Viscosité apparente en fonction du temps pour différentes contraintes imposées et différents systèmes de concentration en phase dispersée $\phi = 50\%$, a. avec 2% d'argile, c. avec 3% d'argile. Evolution de la courbe d'écoulement apparente issue des fluages, b. avec 2% d'argile, d. avec 3% d'argile.

La modification de la concentration en argile ne modifie pas intrinsèquement le comportement rhéologique du fluide. Nous pouvons noter cependant que la bifurcation de viscosité intervient plus tard pour le matériau le plus chargé en particules argileuses (Figure 41-5 a. et c.). Les rhéogrammes apparents ont également le même aspect. La rupture de pente se situe à un niveau similaire mais le comportement aux hauts gradients de vitesse semble

différent. Aux hauts gradients de vitesse ($\dot{\gamma} \ge 1s^{-1}$), la courbe d'écoulement apparente du matériau avec 2% d'argile organophile a un comportement identique durant toute l'expérience (Figure 41-5 b.), alors que pour la concentration plus élevée (3%), la courbe d'écoulement apparent du matériau semble se décaler vers les faibles gradients de vitesse. Ce dernier point a été observé sur la figure 33-2 pour le matériau réel.

D'une manière générale, on peut supposer que si les particules d'argiles interagissent avec les gouttes de l'émulsion inverse (voir chapitre 6), elles sont en excès par rapport aux gouttes pour des concentrations relativement faibles (inférieures à 0.5% du volume d'huile) du fait de leur rapport de forme (voir chapitre 2). Du coup, il est logique de ne pas voir de grande modification entre les deux concentrations testées ici (1 et 3% d'argile par rapport au volume d'huile). De la même manière, lorsque l'on fait varier la fraction volumique en gouttelettes, pour des gouttes de dimensions identiques, dans la phase continue contenant un excès d'argile pouvant interagir, le nombre de ces particules libres dans l'huile va diminuer quand la concentration en phase dispersée va augmenter et inversement.

Il nous faut donc une concentration minimum permettant d'avoir à peu près le même nombre d'interactions entre gouttes lorsque le nombre de celles-ci augmente. Ce qui nous permettrait d'étudier l'influence de la concentration en gouttes sur les propriétés thixotropes par exemple.

Ici, il nous semble raisonnable de fixer la concentration en argile à 3% du volume d'huile pour étudier plus en avant les propriétés thixotropes de ces fluides en lien avec notre problématique.

4.1.4 Influence de la concentration en surfactant

La concentration en surfactant influence peu la rhéologie des systèmes modèles si elle n'est pas excessive. Elle joue par contre un grand rôle sur la stabilité de l'émulsion mais également sur les interactions particules d'argile organophile / gouttes (voir chapitre 6).

Comme pour la concentration en argile nous avons tout intérêt à fixer la concentration en surfactant à une valeur assez élevée pour pouvoir formuler des émulsions concentrées jusqu'à 70% en phase dispersée avec un rayon de gouttes de l'ordre du micromètre. Nous choisissons alors de fixer la concentration en surfactant à 2% du volume d'huile formulé.

4.1.5 Bilan formulation

Dans un premier temps, nous avons vu que la formulation simplifiée que nous proposons permet d'obtenir les propriétés thixotropes intrinsèques de la boue de forage pétrolier étudiée dans le chapitre précédent. Nous observons une bifurcation de viscosité autour d'une contrainte critique à laquelle nous associons un gradient de vitesse critique relevé lors de la construction des rhéogrammes apparents. L'étude de l'effet des différents constituants de nos matériaux modèles préliminaires montre qu'il est raisonnable de fixer la concentration en argile et en surfactant respectivement à 3% et 2% du volume d'huile dans le matériau.

Dans la suite, nous étudierons donc des systèmes modèles ayant une phase continue avec des molécules de surfactant et des particules d'argile en excès avant ajout de la phase dispersée (voir le protocole de formulation au chapitre 2), ce qui nous permet de faire varier la fraction volumique en phase dispersée entre 10% et 70%. Au-delà de ces valeurs le protocole de formulation ne peut être validé les appareils ne le permettant pas et la taille des gouttes pourrait alors être complètement modifiée.

4.2 Régime solide

Maintenant que nous avons fixé nos formulations dans les termes décrits au chapitre 2, nous commençons à étudier nos systèmes modèles dans le régime solide en mesurant leur module élastique sous déformation et fréquence constante.

4.2.1 Elasticité du matériau

Après avoir précisaillé le système modèle étudié, nous appliquons une déformation et une fréquence constante de valeur respective égale à 1% et 1Hz. Nous mesurons alors l'évolution du module élastique au cours du temps pour nos systèmes modèles à différentes fractions volumique en gouttelettes. Le protocole est décrit au chapitre 2.



Figure 42-1 : Evolution temporelle du module élastique pour les différentes concentrations en gouttelettes.

La figure 42-2 montre le résultat des mesures effectuées pour les différentes fractions volumiques formulées. Le module élastique de chaque matériau augmente avec le temps, ce qui est comme nous l'avons vu précédemment la marque des effets thixotropes et donc de l'évolution de la structure au cours du temps dans le domaine solide. Un autre fait remarquable est l'augmentation de la valeur initiale de G' avec ϕ . Nous observons donc une

augmentation des propriétés mécaniques. Ces courbes indiquent donc que la structure des différents matériaux étudiés évolue avec la fraction volumique en phase dispersée : plus il y a de gouttelettes de saumure dans la phase dispersée, plus la structure est mécaniquement rigide. Ce qui est le signe qu'elle devient de plus en plus complexe (voir chapitre 6).

4.2.2 Effet de l'argile

Pour regarder l'influence de l'argile sur les propriétés mécaniques, nous comparons les modules élastiques de l'émulsion concentrée à 70% avec et sans argile. Nous appliquons le protocole décrit au chapitre 2 sur nos deux matériaux et nous normalisons nos mesures par leurs valeurs respectives à 40s.



Figure 42-2 : Modules élastiques normalisés par leur valeurs à 40s pour une émulsion 70/30 avec et sans argile organophile.

La figue 42-2 montre le résultat de l'application d'une déformation et d'une fréquence identiques suivant le même protocole pour nos deux matériaux. Nous pouvons voir que les variations de module élastique sont différentes suivant le matériau. En effet, nous mesurons une élévation de G' d'environ 7% pour l'émulsion sans argile, alors que le module élastique de l'émulsion avec argile augmente de 76% sur le même temps. Ce résultat met en évidence que l'argile induit des modifications structurelles qui augmentent les propriétés mécaniques. Nous discutons plus en détails de ce résultat au chapitre 6.

4.2.3 Généralisation et temps caractéristique

Les courbes de la figure 42-1 présentent des évolutions similaires avec ϕ . Nous proposons maintenant une remise à l'échelle dans le but de déterminer si le comportement rhéologique observé pour une formulation peut être généralisé à toutes les autres.

Nous avons vu que le module élastique augmentait avec la fraction volumique en phase dispersée. Nous essayons une simple remise à l'échelle suivant l'évolution des propriétés mécaniques initiales avec $G'(t,\phi)/G'_0(\phi)=f(t)$, et $G'_0(\phi)$, la valeur initiale du module élastique.



Figure 42-3 : Evolution des modules élastiques pour différents \u03c6 après remise à l'échelle par leurs valeurs initiales respectives.

La figure 42-3 montre le résultat de cette remise à l'échelle. Nous constatons que cette dernière ne permet pas d'obtenir une courbe maîtresse, les courbes restent bien distinctes. Nous voyons ici que les propriétés mécaniques ne sont pas les seules à être modifiées. En effet, la cinétique d'évolution de la structuration est également modifiée par la présence de plus en plus de gouttelettes dans le système. Ceci semble tout à fait concorder avec une hypothèse de modification de la structure par les particules d'argiles et les gouttelettes. En effet d'après notre formulation, nous intégrons de plus en plus de gouttes les formulations. La cinétique de cette modification structurelle est donc modifiée par l'ajout de nouvelles configurations structurelles, sous la forme de gouttelettes.

Nous reprenons alors notre mise à l'échelle en incluant un paramètre supplémentaire pour prendre en compte les effets temporels. Nous introduisons $\theta(\phi)$ tel que :

$$\frac{\mathbf{G}'(\mathbf{t},\boldsymbol{\phi})}{\mathbf{G}'_{0}(\boldsymbol{\phi})} = f\left(\frac{t}{\theta(\boldsymbol{\phi})}\right)$$

$$4.10$$



Figure 42-4 : Courbe maîtresse obtenue en utilisant l'équation 3.23.

Nous obtenons maintenant, sur la figure 42-4, une courbe maîtresse avec un bon recouvrement entre les différentes courbes expérimentales. Cette courbe maîtresse généralise le comportement de toutes nos formulations et $t/\theta(\phi)$ représente l'état structurel de notre matériau au temps t. On peut voir ici que le matériau le plus concentré ($\phi = 70\%$) se structure plus lentement que les matériaux de plus faibles concentrations. A $t/\theta(\phi) = 10$ correspond un état structurel identique pour toutes nos formulations. On remarque alors que le temps nécessaire à l'émulsion la plus concentrée pour atteindre cet état est beaucoup plus grand que celui de l'émulsion la moins concentrée. La structuration est beaucoup plus lente dans le cas des émulsions les plus concentrées que pour les fluides à faibles ϕ . Ceci peut s'expliquer par le fait que plus la fraction volumique en phase dispersée est grande, moins les particules d'argile vont interagir dans le matériau et pouvoir modifier de cette façon la structure interne. La structuration est alors ralentie lorsque ϕ augmente.

4.2.4 Discussion

Nous avons vu que les temps de structuration étaient fonction de ϕ et que l'état structurel de chaque matériau pouvait être représenté par t/ $\theta(\phi)$. On peut alors considérer $\theta(\phi)$ comme un temps caractéristique de structuration au repos. En traçant les évolutions des deux paramètres de remise à l'échelle par rapport à la fraction volumique en gouttelettes, nous pouvons montrer que le paramètre le plus pertinent pour décrire le régime solide est ce temps caractéristique de structuration au repos (Figure 42-5).



Figure 42-5 : Paramètres de la remise à l'échelle suivant l'équation 3.23 en fonction de la fraction volumique en phase dispersée φ.

Le vieillissement de nos système modèles représentés par la création et l'évolution d'un réseau structurel domine donc les effets mécaniques purs marqués par le paramètre de remise à l'échelle $G_0(\phi)$. Le temps caractéristique de structuration augmente fortement pour les fortes fractions volumiques en gouttes. Il semble probable que l'espacement entre les gouttes soit alors à l'origine de cette rapide structuration pour les faibles ϕ . Ici, nous voyons bien que l'évolution de la structure a pour origine la combinaison entre la fraction volumique en gouttelettes et celle en particules d'argiles dans la phase continue huile.

4.3 Transition liquide/solide

Intéressons nous maintenant à la transition liquide / solide dans les matériaux modèles dont la formulation est détaillée au chapitre 2. Nous avons tout d'abord étudié cette transition par des mesures en fluage par rhéométrie conventionnelle, puis par des mesures de profils de vitesse en vélocimétrie IRM.

4.3.1 Rhéométrie conventionnelle

Dans un premier temps et comme pour le matériau réel, nous réalisons des fluages systématiques sur l'ensemble de nos matériaux modèles. Pour cela nous appliquons le protocole détaillé au chapitre 2.



Figure 43-1 : Evolution sur 300s de la déformation en fonction des différentes contraintes appliquées (fluages). a. $\phi = 20\%$, b. $\phi = 30\%$., c. $\phi = 40\%$, d. $\phi = 50\%$, e. $\phi = 60\%$ et f. $\phi = 70\%$ La ligne en pointillés correspond à la droite de pente 1.

Les résultats obtenus pour $\phi = 20\%$ montrent que pour des contraintes appliquées entre 8 et 20 Pa, la pente finale des courbes est égale à 1, le matériau s'écoule et est en régime permanent. Pour les plus faibles contraintes, entre 0.1 et 3 Pa, la pente finale des courbes est quasiment nulle, le matériau est à l'arrêt. Entre 3 et 8 Pa, nous sommes dans la transition liquide / solide de notre matériau modèle. Cette dernière semble d'ores et déjà complexe puisque la pente des courbes dans cette gamme de contrainte ne reste pas stable pendant le temps expérimental. Pour ces valeurs intermédiaires et contrairement au matériau réel, il n'est pas évident de déterminer avec précision la contrainte seuil où le matériau passe de l'écoulement à l'arrêt, du liquide au solide. On retrouve ce comportement pour toutes les fractions volumiques en phase dispersée mais pour différents niveaux de contraintes appliquées. En effet nous pouvons extraire les trois comportements décrits précédemment sur les courbes de la figure 43-1 a.. Ce type de comportement peut donc être généralisé pour toute la gamme de concentration étudiée comme nous pouvons le voir sur les différents résultats présentés sur la figure 43-1. Nous remarquons également une autre différence entre le matériau réel et le matériau modèle

Nous remarquons également une autre différence entre le matériau réel et le matériau modèle au niveau des premiers instants de l'écoulement. En effet, pour le matériau réel les deux cents premières secondes montrent une faible évolution de la viscosité (Figure 33-1) comme si la structuration du matériau était ralentie. Les matériaux modèles présentent une évolution forte de la déformation et donc de la viscosité sur cette période.

4.3.2 Vélocimétrie IRM

i. Mesure de la transition

Nous avons vu précédemment que les résultats de fluages systématiques sur les systèmes modèles ne permettaient pas de conclure sur la valeur de la contrainte seuil où la transition liquide / solide intervient. Nous utilisons maintenant la vélocimétrie IRM pour mesurer plus en détails le passage de l'écoulement à l'arrêt du matériau.

Nous réalisons donc des mesures de profils de vitesse pour une vitesse de rotation imposée de 15 tr/min sur le système modèle le plus concentré.



Figure 43-2 : Profils de vitesse pour le matériau modèle avec ϕ =70%, pour une vitesse imposée de 15 tr/min a. en échelle linéaire, b. en échelle semi-logarithmique.

Les profils en échelle linéaire faisant apparaître ce phénomène sans précision (Figure 43-2 a.), nous reportons les données dans une échelle semi–logarithmique (Figure 43-2 b.). Les mesures montrent une localisation progressive du cisaillement dans l'entrefer avec initialement la coexistence des deux phases liquide et solide. Ce résultat peut être généralisé à

l'ensemble de nos systèmes modèles dans la gamme de concentration en phase dispersée considérée.

Durant l'écoulement transitoire, la distance cisaillée passe de 1.6 cm à 0.7 cm pendant un temps d'environ 10^3 s. Entre ces deux distances, la partie initialement en écoulement s'arrête progressivement alors que la contrainte varie entre 19.37 Pa et 27.5 Pa. La structuration dans la zone s'arrêtant entraîne une divergence de la viscosité qui conduit ce matériau à être considéré comme un solide. Ici nous mesurons donc directement la transition liquide / solide de notre matériau.

Nous avons également appliqué ce protocole sur l'ensemble de nos matériaux modèles. Les résultats de ces expériences sont présentés sur la figure 43-3.



Figure 43-3 : Profils de vitesse (semi-logarithmique) pour φ entre 20 et 60 %, respectivement de a. à e., la figure f. représente les profils de vitesse du régime permanent des différents fluides. Vitesse imposée, 20tr/min.

Au terme du régime transitoire, après environ 10^3 s, l'écoulement atteint un régime permanent avec une partie liquide et une partie solide (Figure 43-3 f.). On peut observer sur les profils de

vitesse correspondant une très forte localisation du cisaillement au niveau de l'interface liquide / solide. De plus, on remarque sur la figure 43-3 f. représentant les profils de vitesse dans le régime permanent que la taille de la zone cisaillée augmente avec la concentration en gouttes dans la suspension. Cependant cette zone de transition est difficile à positionner avec précision. Nous prendrons donc dans la suite la position dans l'entrefer de la dernière mesure nous montrant l'apparence d'un arrêt comme lieu de la transition liquide / solide.

Aussi, en reportant cette position en fonction du temps pour un de nos matériaux modèles dans un premier temps (Figure 43-4 a.), nous pouvons remonter à la vitesse de déplacement du front de « solidification » qui correspond à la valeur absolue de la pente pour les différentes positions de la courbe figure 43-4 a.. On obtient ainsi la figure 43-4 b. où l'on voit finalement la cinétique de structuration sous cisaillement du matériau modèle de concentration $\phi = 70\%$.



Figure 43-4 : a. Données expérimentales de la position de l'interface solide / liquide lissée par une fonction exponentielle décroissante b. Vitesse du front de la zone solide en fonction du temps.

La cinétique de structuration du matériau modèle avec $\phi = 70\%$ a une évolution rapide aux temps courts (t < 400s), puis plus lente après.

Nous pouvons suivre un protocole identique pour toutes nos formulations à partir des figures 43-4 a. à 43-4 e., et ainsi comparer les cinétiques de structuration sous cisaillement pour l'ensemble de nos matériaux modèles (Figure 43-5).



Figure 43-5 : Cinétique de structuration pour les différentes formulations.

Nous pouvons voir sur la figure 43-5 l'évolution de la cinétique de structuration sous cisaillement pour l'ensemble de nos formulations. Ce résultat montre que pour les faibles concentrations, la vitesse de l'interface liquide / solide au sein de l'entrefer de notre géométrie Couette est beaucoup plus élevée que pour les concentrations supérieures ou égales à 40%. Il est remarquable de voir ici que la cinétique de structuration ne varie quasiment pas pour une large gamme de concentrations, de 40 à 70%. A ces concentrations, il semble que l'on atteigne une fraction volumique équivalente due à la présence de nombreuses plaquettes d'argile organophile dans la phase continue.

ii. Comportement critique

Intéressons nous maintenant à l'évolution de la courbe d'écoulement locale. Comme nous l'avons fait pour le matériau réel, nous reconstruisons le rhéogramme local. Sur la figure 43-6 nous pouvons voir l'évolution de ce dernier pour le matériau avec une fraction volumique en gouttelettes de 70%.



Figure 43-6 : Evolution temporelle du rhéogramme local.

Nous observons que le comportement rhéologique est modifié au cours du temps. En effet la première mesure fait apparaître des valeurs critiques d'écoulement de 18.4 Pa pour la contrainte et de 0.24 s⁻¹ pour le gradient de vitesse. Nous observons alors dans la suite de l'écoulement et durant le régime transitoire que la gamme de gradient de vitesse pouvant être atteinte se réduit progressivement jusqu'au régime permanent. Lorsque l'on compare le rhéogramme local à 30s et celui à 1050 s (Figure 43-7), nous pouvons voir le changement abrupt dans le comportement rhéologique de ce fluide.



Figure 43-7 : Comparaison entre le rhéogramme local initial et celui du régime permanent. Mise en évidence du gradient de vitesse critique.

Dans le régime permanent, nous pouvons voir la discontinuité de l'écoulement qui est marqué comme pour le fluide réel par l'existence d'un gradient de vitesse critique $\dot{\gamma}_c$ ayant pour valeur 1.56 s⁻¹.

iii. Discussion

La transition liquide / solide est abrupte et induit un comportement original au niveau de l'interface solide / liquide. Ce phénomène a probablement une origine structurelle dans le sens où le matériau se bloque complètement lorsque le gradient de vitesse local au sein de l'entrefer atteint une valeur inférieure à celle du gradient de vitesse critique. L'état critique au niveau de la transition correspond à une certaine configuration structurelle qui ne permet plus au fluide de s'écouler. Cette configuration est différente pour chaque matériau et est donc liée aux nombres de gouttes et au nombre de particules d'argiles en solution. Nous reviendrons sur ce phénomène dans le chapitre 6.

4.4 Régime liquide

Nous allons maintenant nous intéresser au comportement rhéologique de nos matériaux modèles dans le régime liquide et tout d'abord regarder les effets dus à l'argile organophile présente dans la phase continue.

4.4.1 Effet de l'argile

i. Du fluide à seuil simple au fluide à seuil thixotrope

Nous avons vu au chapitre précédent que l'écoulement transitoire mesuré par vélocimétrie IRM avant l'arrêt du matériau est marqué par un comportement critique identifié par une discontinuité du gradient de vitesse sur la courbe d'écoulement locale. Maintenant nous nous intéressons aux effets de l'argile sur le comportement du fluide en régime liquide. Pour cela, nous comparons les courbes d'écoulement du système modèle le plus concentré (ϕ =70% et 3% d'argile organophile) et de la même émulsion sans argile. Les mesures sont réalisées via l'IRM pour obtenir des données locales sur les deux systèmes. Plusieurs vitesses de rotation ont alors été imposées pour obtenir le plus d'informations possibles et ainsi avoir les courbes d'écoulement les plus complètes. L'ensemble de ces mesures est représenté sur la figure 44-1, et montre une grande différence de comportement.



Figure 44-1: Courbe d'écoulement locale pour l'émulsion pure (cercle) et l'émulsion avec argile (carré plein). Ces courbes sont obtenues en réalisant des expériences à différentes vitesses imposées : 0.5, 15, 50 et 100 tr/min pour l'émulsion pure et 15, 50 et 100 tr/min pour l'émulsion avec argile. La ligne noire correspond au modèle d'Herschel-Bulkley appliqué sur nos données (voir texte ci dessous).

En effet, nous pouvons voir que le comportement de l'émulsion pure est comparable à celui d'un fluide à seuil simple qui peut être très bien représenté par un modèle de type Herschel-Bulkley avec $\tau_c = 7.5$ Pa, K = 6.5 Pa.s^{0.5} et n = 0.5. La courbe d'écoulement locale du système modèle est fortement différente et correspond bien à celle d'un fluide à seuil thixotrope. En ajoutant les plaquettes d'argiles organophiles nous passons donc d'un fluide à seuil simple à un fluide à seuil thixotrope.

Les comportements des deux fluides sont différents pour des gradients de vitesse inférieurs à 20 s⁻¹ alors que l'on retrouve le même comportement rhéologique pour les deux fluides au dessus de cette valeur. Ces différences de comportements ont sans doute pour origine des microstructures différentes. Dans le cas de l'émulsion sans argile, la floculation des gouttelettes et la compacité de l'émulsion entraînent le comportement observé. Pour l'émulsion avec argile, l'origine microstructurelle est différente et vraisemblablement induite par les plaquettes d'argile en solution. Ces dernières doivent avoir la capacité à former un réseau entraînant le changement de comportement pour des cisaillements inférieurs à 20 s⁻¹ et l'arrêt du matériau en dessous de $\dot{\gamma}_c$. Les deux matériaux ont donc un comportement en régime liquide similaire au dessus d'une certaine contrainte, mais l'émulsion argileuse fait apparaître une discontinuité à la valeur critique $\dot{\gamma}_c$, en dessous de laquelle nous ne pouvons obtenir d'écoulement permanent.

ii. Comportements rhéologiques locaux

Nous regardons maintenant le gradient de vitesse local en fonction du temps (Figure 44-2).



Figure 44-2 : Evolution temporelle du gradient de vitesse local en fonction de la contrainte atteinte dans l'entrefer. (Données issues de la figure 43-2)

Nous observons deux types de comportement : Au dessus d'une certaine contrainte, environ 27.65 Pa, le matériau s'écoule et atteint un régime permanent où le gradient de vitesse est constant (symboles pleins), en dessous de cette contrainte, le gradient de vitesse décroît et donc le matériau s'arrête (symboles vides). Ceci correspond bien à l'évolution des rhéogrammes locaux détaillée au chapitre 3. Nous retrouvons bien ici le phénomène de bifurcation de viscosité avec un gradient de vitesse critique en dessous duquel nous ne pouvons obtenir d'écoulement permanent. On retrouve ce comportement pour l'ensemble de nos formulations.

Regardons plus précisément l'évolution des gradients de vitesse locaux pour une contrainte donnée en dessous de la contrainte critique (symboles vides sur la figure 44-2) et étudions ainsi le régime d'écoulement critique avant le régime permanent. Ces courbes d'arrêt ont un aspect identique. Nous allons alors essayer de généraliser ce comportement original vers l'arrêt du matériau en réalisant une remise à l'échelle des courbes d'arrêt suivant l'équation $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_0 = f(t/\theta)$ avec $\dot{\gamma}_0(\tau)$ et $\theta(\tau)$ deux facteurs appropriés de remise à l'échelle pour ces courbes d'arrêt.

La figure 44-3 montre le résultat de cette remise à l'échelle. Nous obtenons avec des paramètres appropriés une courbe maîtresse représentant le comportement généralisé de l'écoulement critique en dessous de $\dot{\gamma}_c$.

Ce régime liquide est particulier mais a déjà été observé sur des suspensions diverses (moutarde, suspensions d'oxyde de titane et suspensions de bentonites) par Ovarlez et Coussot [81] où comme pour la remise à l'échelle des modules élastiques dans le domaine solide, ils obtiennent une courbe maîtresse où le module élastique et le temps sont remis à

l'échelle en utilisant des fonctions appropriées de la contrainte. De même nous proposons deux fonctions représentant l'évolution de $\dot{\gamma}_0(\tau)$ et de $\theta(\tau)$:

$$\dot{\gamma}_0(\tau) \simeq \left[(\tau - \tau_0) / (\tau_c - \tau_0) \right] \dot{\gamma}_c$$

$$4.20$$

$$\theta(\tau) \simeq \frac{k}{(\tau_c - \tau)} \tag{4.21}$$



Figure 44-3: Courbe maîtresse obtenue après remise à l'échelle par les facteurs $\dot{\gamma}_0(\tau)$ et $\theta(\tau)$. L'insert montre les valeurs des deux paramètres en fonction de la contrainte et les lignes pointillées sont le résultat du modèle empirique (équations 4.20 et 4.21) avec $\tau_0 = 17.9$ Pa , k = 1.75Pa.s , et $\tau_c = 27.5$ Pa.

Ces similarités de comportement suggèrent fortement que l'état structurel du matériau est uniquement une fonction de $\xi = t/\theta$, qui peut être considéré comme représentant l'âge physique du matériau i.e. l'état de structure durant une telle expérience. Ici il est remarquable que ces paramètres dépendent uniquement de la contrainte, ce qui contraste avec les modèles usuels dans ce domaine qui présentent une dépendance unique avec le gradient de vitesse. Ceci dit, nous avons pu voir que la cinétique de structuration i.e. vitesse du front de solidification, déterminée à partir de la vitesse de l'interface liquide / solide ne dépendait pas du gradient de vitesse mais uniquement de la position dans l'entrefer et donc uniquement de la contrainte. Nous retrouvons ici un résultat similaire.

D'après les équations 4.20 et 4.21, nous déduisons le comportement apparent de ce matériau :

$$\tau = \tau_0 + \left(\eta_0 / f(\xi)\right) \dot{\gamma}(\xi) \tag{4.22}$$

 $O\dot{u} \eta_0 = (\tau_c - \tau_0) / \dot{\gamma}_c$

Dans l'équation 6.10, le premier terme τ_0 est indépendant de l'état de la structure dans notre matériau et peut être considéré comme représentant la contrainte seuil. L'origine de celle-ci est alors le blocage des gouttes entre elles dans le réseau avec une possibilité que les particules d'argile modifient la tension interfaciale entre l'eau et l'huile. Le second terme est associé avec les effets visqueux et la structure du matériau dans la phase d'arrêt de l'écoulement.

A partir de ce résultat, nous évoquons, au chapitre 6, les origines structurelles liées à l'arrêt du matériau.

4.4.2 Influence de la fraction volumique en phase dispersée

Nous venons de voir les effets dus à l'argile sur le passage entre le comportement rhéologique d'un fluide à seuil simple et celui d'un fluide à seuil thixotrope. Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution du comportement rhéologique dans le régime liquide avec la variation de la fraction volumique en phase dispersée.

i. Rhéologie locale

Nous avons réalisé des mesures systématiques de profils de vitesse par vélocimétrie IRM pour toutes nos formulations. Dans ces mesures nous appliquons au rotor une vitesse de rotation de 15 tr/min, et nous mesurons un profil de vitesse toute les 30 s d'écoulement. Puis nous mesurons les couples correspondant pour chacun des matériaux modèles afin de déterminer la courbe d'écoulement locale d'après les équations 1.28 et 1.29. Ainsi nous construisons les courbes d'écoulements locales à $t_0 = 30$ s et à $t_1 = 1050$ s dans le régime permanent (Figure 43-4).



Figure 44-4 : Rhéogrammes locaux initiaux (à 30s) et dans le régime permanent (à 1050s) pour l'ensemble des systèmes modèles.

Comme nous l'avons déjà détaillé pour le matériau modèle avec $\phi = 70\%$, le rhéogramme local de chaque matériau modèle fait apparaître un régime transitoire entre la première mesure et le régime permanent. Ce dernier est marqué par un comportement original où apparaît systématiquement un gradient de vitesse critique qui ne semble pas évoluer de façon significative avec la concentration comme nous le montre la figure 44-5 a..



Figure 44-5 : Evolution du gradient de vitesse critique et de la contrainte seuil dans le régime permanent en fonction de la fraction volumique en gouttelettes ϕ .

Les contraintes seuil quant à elles augmentent pour des valeurs de concentrations comprises entre 40 et 70% (Figure 44-5 b.). Cette augmentation est étonnamment linéaire puisque l'on peut noter une augmentation de 15% de la valeur du seuil pour $\phi = 20\%$ pour chaque augmentation de concentration en gouttelettes de 10%.

ii. Généralisation du comportement

Revenons maintenant sur les courbes d'écoulement locales présentées sur la figure 43-4. L'ensemble des courbes après 30s d'écoulement et celles dans le régime permanent semble suivre une évolution similaire tout comme l'écart pour chaque concentration entre la première mesure (à 30s) et le régime permanent. Ceci nous pousse encore une fois à tenter de généraliser le comportement de ces fluides. Pour cela nous utilisons une remise à l'échelle basée sur l'équation 5.24 :

$$\frac{\tau}{\tau_0(\phi)} = f\left(\dot{\gamma}^* \theta(\phi)\right)$$
5.24

- -

Avec $\tau_0(\phi)$, la contrainte seuil dans le régime permanent (Figure 44-5 b.) et $\theta(\phi)$ un temps caractéristique. En appliquant ces paramètres sur les courbes de la figure 44-4 nous obtenons deux courbes maîtresses représentées sur la figure 44-6.



Figure 44-6 : Remise à l'échelle des différentes courbes d'écoulement locales en utilisant les paramètres $\tau_0(\phi)$ et $\theta(\phi)$ décrit par l'équation 5.24.

Nous obtenons donc des comportements similaires pour toutes nos formulations dans le domaine liquide. Ce dernier est marqué dans le régime permanent par l'existence d'un gradient de vitesse critique. On retrouve ici une représentation similaire à la figure 44-1 où

nous observons le passage entre un fluide à seuil simple et un fluide à seuil thixotrope. Ici il semble donc que le comportement du matériau soit initialement celui d'un fluide à seuil simple. Le seuil est alors dû au blocage des gouttes entre elles.

De plus, les paramètres de remise à l'échelle pour chaque concentration sont identiques pour la courbe d'écoulement initiale à 30s et pour le régime permanent après 1050s d'écoulement. Ceci implique des évolutions similaires du comportement entre ces deux temps avant d'atteindre le régime permanent pour tous nos matériaux modèles. Une grande partie des deux courbes maîtresses se superpose pour les gradients de vitesse importants ce qui semble indiquer un état structurel en écoulement relativement proche.

iii. Discussion

Pour entrer plus en détails dans la description du comportement des matériaux modèles dans le régime liquide, nous traçons les paramètres $\tau_0(\phi)$ et $\theta(\phi)$ adimensionnés par leurs valeurs respectives à $\phi = 20\%$ (Figure 44-7).



Figure 44-7 : Evolution relative des paramètres de remise à l'échelle des courbes d'écoulement de la figure 44-6.

L'évolution relative des paramètres de remise à l'échelle n'est pas suffisante pour impliquer de forts changements de comportement dans le domaine liquide. En effet, il semble que lorsque le matériau s'écoule, et donc que la contrainte appliquée est suffisante pour maintenir un certain état structurel, le comportement de celui-ci n'est pas modifié par le nombre de gouttes présentes dans ce dernier. En fait, nous pouvons distinguer deux régimes : le premier correspond aux forts cisaillements et est marqué par un écoulement homogène quel que soit la formulation du fluide modèle. Le second pour de plus faibles cisaillement mais supérieurs au gradient de vitesse critique voit la formation d'une structure mais celle-ci est contrôlée et limitée par le gradient de vitesse.

4.5 Conclusion

Les systèmes modèles formulés dans le but de comprendre les principales caractéristiques rhéologiques de la boue réelle font apparaître un comportement étonnant avec la variation de la fraction volumique en phase dispersée puisque la cinétique de structuration du matériau est ralentie avec l'inclusion de plus en plus de gouttelettes de saumure. Une remise à l'échelle des modules élastiques suivant un paramètre mécanique ($G_0(\phi)$) et un paramètre exprimant le vieillissement du système nous a permis d'extraire un temps caractéristique de structuration au repos $\theta(\phi)$. Ce dernier apparaît comme le paramètre le plus pertinent pour comprendre et évaluer l'état structurel du matériau après un temps de repos.

Les matériaux modèles montrent que l'on retrouve le comportement rhéologique complexe du matériau réel à partir d'une formulation simple. Une différence est notable au niveau du régime transitoire puisque les matériaux modèles ne font pas apparaître de semi plateaux de vitesses constantes. Le régime permanent est quant à lui marqué par une discontinuité du cisaillement dans l'entrefer représentée par une forte localisation des profils de vitesse finaux. En nous basant sur l'évolution spatiale de la zone à l'arrêt, nous avons pu mesurer les cinétiques de structuration sous écoulement menant au régime permanent. Nous avons alors pu voir que cette cinétique était plus rapide pour les faibles concentrations (20 et 30%) et montrait un phénomène de saturation à partir de 40%. Ce phénomène est probablement dû à l'encombrement du système réalisé par l'intégration des particules d'argile au sein de l'émulsion inverse.

Nous avons dans un premier temps vu les effets de l'argile qui sont bien à l'origine de la thixotropie dans nos matériaux modèles puisque l'ajout de ces particules colloïdales fait passer une émulsion modèle qui a un comportement de type fluide à seuil simple à un fluide à seuil thixotrope marqué par une grande différence entre leurs courbes d'écoulement respectives aux bas gradients de vitesse. Nous avons démontré également que l'influence de l'argile était annulée sous de forts cisaillements. En regardant avec précision les évolutions temporelles des gradients de vitesse locaux en fonction de la contrainte appliquée, nous avons encore une fois mis en évidence le phénomène de bifurcation de viscosité. En dessous d'une certaine contrainte critique le matériau s'arrête progressivement. Nous avons analysé ces courbes d'arrêt pour obtenir une courbe maîtresse représentative d'un comportement unique de l'écoulement vers l'arrêt, correspondant à un régime liquide critique. Les paramètres de remise à l'échelle ont la particularité de ne dépendre que de la contrainte.

Enfin nous avons encore une fois étudié l'influence de la concentration en phase dispersée sur la rhéologie des systèmes modèles dans le régime liquide. Pour cela nous avons généralisé le comportement des différents fluides représentés par leurs courbes d'écoulement locales initiales et dans le régime permanent. De plus, nous avons expliqué l'origine de l'augmentation de la contrainte seuil par le fait que plus le système modèle sera concentré plus la structure formée sera dense et donc difficile à briser. Enfin, nous montrons en étudiant

l'évolution des paramètres de remise à l'échelle que le régime liquide de nos matériaux modèles n'est pas modifié de manière importante par l'augmentation de la fraction volumique en phase dispersée.

Ici la plupart de ces résultats semblent être couplés à un état structurel. Nous reviendrons sur certains d'entre eux en terme d'analyse structurelle au chapitre 6.