Influence des caractéristiques physicochimiques d'une eau chargée en argile sur les processus de colmatage

Dans ce chapitre on travaillera avec une suspension de deux types d'argile sous conditions contrôlées de cisaillement et de salinité de la solution. Ce travail se divise en deux parties, la première sur la caractérisation des argiles et la seconde sur l'étude de l'impact de l'argile combiné à la présence (ou non) du sel NaCl sur l'évolution du débit en sortie des goutteurs.

IV.1. Stabilité colloïdale des argiles vis-à-vis du cisaillement et de la force ionique

Deux types d'argile ont été retenus pour cette étude : un mélange argilo-calcaire à base d'illite pour son abondance dans les eaux superficielles qui alimentent les systèmes d'irrigation, et une bentonite pour sa réactivité et sensibilité aux conditions physico-chimiques (telles que la concentration en sel) et aux conditions hydrodynamiques, lors de la mise en service de ces systèmes d'irrigation

IV.1.1. Minéralogie des argiles par diffraction des rayons X

Cette mesure permet de déterminer les éléments constitutifs d'un matériau. Le protocole et le principe sont détaillés dans le paragraphe (II.1.6)

• Le mélange argilo-calcaire

C'est un mélange qui se présente sous la forme d'une poudre grisâtre. L'analyse minéralogique, donnée par le diagramme (Figure IV-1), nous indique que ce mélange est issu d'un gisement argileux à base d'illite et de kaolinite, et où la proportion de calcite est également très importante.



Figure IV-1 : Minéralogie du mélange argilo-calcaire

C'est une argile « plastique » dont le nom vient de Fort Benton aux Etats-Unis. Connue parfois sous le terme générique de *terre de foulon* (qui regroupe aussi d'autres argiles absorbantes), elle est essentiellement constituée de Montmorillonite Les gisements de Bentonite sont d'origine volcanique ou hydrothermale.

Il existe deux types de bentonite :

- La Bentonite Calcique ou non gonflante qui est la plus abondante dans le monde.
- La Bentonite Sodique dite gonflante qui présente des propriétés de gonflement et de gélification.

L'ABSOCLAY® NAW est une Montmorillonite Sodique Naturelle extraite au Wyoming (USA) et traitée à l'usine de CMMP de Saint-Quentin (02).

L'analyse minéralogique de cette bentonite par diffraction X confirme l'abondance de montmorillonite sodique (Figure IV-2) de formule $(Na_{0.3}(AI,Mg)_2Si_4O_{10}(OH)_2.4H_2O)$, qui lui confère des propriétés remarquables de gonflement en présence d'eau dans l'espace interfoliaire.



Figure IV-2 : Minéralogie de la bentonite

IV.1.2. Potentiel électrique de surface mesuré par mobilité électrophorétique

Le potentiel électrocinétique, appelé aussi potentiel ZETA, a été utilisé dans ce cas d'études pour nous donner la valeur de la charge électrique de surface des particules en suspension. Cette mesure du potentiel Zêta, nous permet d'estimer l'intensité des répulsions

électrostatiques inter-particules et par conséquent, le bilan des forces s'exerçant à leur interface, favorisant ou non l'agrégation



Figure IV-3: photo du Zetamètre et de la cellule de mesure

• Charge de surface des particules

Les particules, provenant de l'érosion des sols et transportées par l'eau, ont une certaine charge de surface. Cependant l'intensité de leur charge varie en fonction de leur nature, de la salinité de l'eau, et surtout du pH. Les particules minérales sont majoritairement chargées négativement à pH voisin de la neutralité.

La charge électrique de surface induit une concentration de contre ions de la solution à la surface des particules. Ceux-ci sont répartis en une double couche (Figure IV-4) :

- La couche au contact de la surface est appelée **couche de Stern.** Son épaisseur est de l'ordre de l'Angstrœm.
- Une couche diffuse ou nuage de contre-ions s'organise autour de la couche de Stern afin de compenser totalement la charge intrinsèque de la particule, lorsque la couche de Stern ne suffit pas. Son épaisseur diminue quand la force ionique augmente.

C'est l'épaisseur de la couche diffuse qui définit la distance d'incidence des répulsions électrostatiques entre deux particules identiques. On parle de longueur de Debye. Au delà de cette distance, le potentiel électrique n'a plus d'effet sur les interactions entre les particules.

Le potentiel zêta est une grandeur mesurable expérimentalement qui permet d'estimer la charge électrique de surface d'une particule. Celui-ci est variable selon les conditions du milieu et notamment le pH qui influence directement la charge des particules, mais également en fonction de la présence de diverses éléments chimiques sous forme ionique (Na⁺, K⁺, etc.) qui modifient l'équilibre électrique du milieu.



Figure IV-4: Schéma de la double couche diffuse en surface d'une particule chargée immergée dans un électrolyte.

• Principe de la mesure

Si une particule est soumise à un champ électrique, celle-ci ce déplace à une vitesse caractéristique et proportionnelle à sa charge et à l'intensité du champ. Lors de son déplacement, la particule chargée entraîne avec elle les contre-ions de la couche de Stern, alors que le nuage ionique de la couche diffuse s'étire dans le sens opposé (Figure IV-4). L'interface entre ces deux couches est appelée plan de coupure hydrodynamique. La vitesse de déplacement de la particule sous le champ électrique est appelée mobilité électrophorétique. Elle peut être mesurée expérimentalement par analyse d'image sous microscope ou bien par diffusion de lumière. Le potentiel électrique au plan de coupure hydrodynamique est directement tiré de la mobilité électrophorétique par la loi de Henry. C'est le potentiel Zêta, exprimé en [mV].



Figure IV-5: Principe de mesure du potentiel zêta

La préparation des échantillons est faite dans des béchers agités par des barreaux magnétiques. Chaque bécher est rempli de 200ml d'eau ultrapure avec 200mg/L d'argile. On

injecte ensuite une concentration de sel, on maintient l'agitation pendant 30min le temps que la solution soit homogène. On prélève après homogénéisation un volume que l'on l'injecte dans la cellule (Figure IV-3) du Zêtamétre.

• Mélange argilo-calcaire

Le potentiel Zeta a été mesuré pour le mélange argilo-calcaire en présence de NaCl à différentes concentrations.



Figure IV-6 : Effet du NaCl sur la charge surfacique du mélange argilo-calcaire

Lorsque la concentration en sel augmente jusque 0,01 M, le potentiel zêta des particules augmente de -20 à -45 mV. Puis pour des concentrations en sel supérieures, il diminue de nouveau jusque -20 mV. Cette évolution non monotone est certainement due à la nature minérale hétérogène de l'échantillon et/ou à son agrégation.

• La bentonite

Le protocole est le même que celui suivi pour le mélange argilo-calcaire



Figure IV-7: Effet de la force ionique sur la charge surfacique de la bentonite

Eq IV-1

Pour des concentrations en sel inférieures à 5 10^{-2} M, le potentiel Zêta de la bentonite est de l'ordre de -35 mV (Figure IV-7). A 5 10^{-2} M, il chute brutalement à – 45 mV. Ceci est certainement dû à un début d'agrégation bord/face des feuillets de montmorillonite, qui tend à consommer leur surface latérale chargée négativement. Au delà de cette concentration, lorsque la concentration en sel atteint 5 10^{-1} M, le potentiel zêta se neutralise vers -25 mV. Ceci est certainement dû à l'agrégation plus poussée des particules qui tend à diminuer leur mobilité.

IV.1.3. Effet couplé de la force ionique et du cisaillement sur agrégation des particules

Etudions la granulométrie des particules en suspension et son évolution en fonction des deux paramètres que sont la force ionique (concentration en NaCl) et le cisaillement. Ces deux paramètres peuvent provoquer l'agglomération des particules en augmentant la probabilité de chocs et l'efficacité de collage. A l'inverse le cisaillement peut aussi provoquer une fragmentation des agrégats lorsqu'ils augmentent de taille. Nous avons donc cherché à caractériser l'impact du cisaillement sur la granulométrie des agrégats en suspension. Pour ce faire, nous avons soumis des échantillons à différentes contraintes de cisaillement dans un réacteur Taylor-Couette.

IV.1.3.1 Principe du réacteur de Taylor-Couette

Un réacteur de type Taylor-Couette est constitué de deux cylindres concentriques avec un cylindre interne entraîné en rotation et un cylindre externe fixe (Figure IV-8). L'espace annulaire défini par les deux cylindres est appelé entrefer (e).

$$e = R_2 - R_1$$

Figure IV-8 : Schéma d'un réacteur de type Taylor-Couette

Les écoulements dans la cellule de Couette ont été largement étudiés par le passé (Coles, 1965, Frenstermacher et al. 1979, Katoaka, 1986, Coughlin et Marcus 1992, Tagg, 1994, Wereley et Lueptow, 1998). Ces travaux ont permis d'identifier différents régimes et d'en étudier les transitions. Ces différents régimes rencontrés dans des réacteurs de Taylor-Couette sont généralement recensés par ordre croissant de vitesse de rotation pour laquelle ils sont observés. Les études avec ce type de réacteur sont limitées aux écoulements créés par le mouvement rotatif du cylindre interne.



Pour caractériser l'écoulement au sein de ce réacteur, on définit un nombre adimensionnel, le nombre de Taylor-Couette. Ce nombre permet de caractériser la transition turbulente de l'écoulement d'un fluide contenu dans l'espace annulaire des deux cylindres. Le nombre de Taylor (Ta) est lié au rapport de la force centrifuge et des forces visqueuses :

> $Ta = \left(\frac{R_1 \Omega (R_2 - R_1)}{v}\right)^2$ Eq IV-2

Avec

- $R_1 = 0,2m$. (rayon du cylindre interne) -
- $R_2 = 0.115m$ (rayon du cylindre externe)
- Ω : vitesse de rotation du cylindre interne [s⁻¹]
- v : viscosité cinématique du fluide $[m^2s^{-1}]$

Il existe 3 types d'écoulement dans le réacteur Taylor-Couette

- 1. à Ta = Ta_c = 1712 l'écoulement est de type laminaire 2. à Ta = 1.27 Ta_c ($1.712 \times 10^{+3} <$ Ta $< 6.85 \times 10^{+4}$) l'écoulement devient de type Vortex Flow
- 3. à Ta= 40 Ta_c (Ta> $6.85 \times 10^{+4}$) l'écoulement est turbulent.

Les équations ci dessous permettent de calculer le nombre de Reynolds (Re), la dissipation (ɛ) et le cisaillement (G) qui sera directement lié à la vitesse de rotation du réacteur Couette

$$\operatorname{Re} = \frac{\Omega R_1 (R_2 - R_1)}{V}$$
 Eq IV-3

$$\varepsilon = \left(\frac{1.25 * 10^{-3} * R_i^4 \Omega^{-3}}{R_e^2 - R_i^2}\right)$$

$$G = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\nu}}$$

Eq IV-5

Ν	Ω(rad/s)	Та	Re	ε	G (s-1)
1	0,10471976	2,47E+04	1,57E+02	4,45E-08	0,211
3	0,31415927	2,22E+05	4,71E+02	1,20E-06	1,096
5	0,52359878	6,17E+05	7,85E+02	5,56E-06	2,359
10	1,04719755	2,47E+06	1,57E+03	4,45E-05	6,672
15	1,57079633	5,55E+06	2,36E+03	1,50E-04	12,257
20	2,0943951	9,87E+06	3,14E+03	3,56E-04	18,870
25	2,61799388	1,54E+07	3,93E+03	6,95E-04	26,372
30	3,14159265	2,22E+07	4,71E+03	1,20E-03	34,667
35	3,66519143	3,02E+07	5,50E+03	1,91E-03	43,685
40	4,1887902	3,95E+07	6,28E+03	2,85E-03	53,373
45	4,71238898	5,00E+07	7,07E+03	4,06E-03	63,687
50	5,23598776	6,17E+07	7,85E+03	5,56E-03	74,591
55	5,75958653	7,46E+07	8,64E+03	7,41E-03	86,055
60	6,28318531	8,88E+07	9,42E+03	9,61E-03	98,053
65	6,80678408	1,04E+08	1,02E+04	1,22E-02	110,561
70	7,33038286	1,21E+08	1,10E+04	1,53E-02	123,561
75	7,85398163	1,39E+08	1,18E+04	1,88E-02	137,033
80	8,37758041	1,58E+08	1,26E+04	2,28E-02	150,962
85	8,90117919	1,78E+08	1,34E+04	2,73E-02	165,334
90	9,42477796	2,00E+08	1,41E+04	3,24E-02	180,134
95	9,94837674	2,23E+08	1,49E+04	3,82E-02	195,352
100	10,4719755	2,47E+08	1,57E+04	4,45E-02	210,976
110	11,5191731	2,99E+08	1,73E+04	5,92E-02	243,401

Tableau IV-1 : Valeurs de cisaillement en fonction de la vitesse de rotation du réacteur Couette-Taylor.

La suspension de 200 mg/l d'argile est préparée dans un volume de 5l. L'agitation est assurée par un agitateur à pales. Après 30 minutes d'agitation on prélève un volume de 2l pour remplir le réacteur Taylor-Couette. Les cisaillements au sein du labyrinthe d'un goutteur de type GR (II.1.2) sont de l'ordre de 1000 s⁻¹ (II.1.2.2). Nous ne pouvons pas reproduire un tel cisaillement avec le réacteur Couette. Nous avons donc mesuré la cinétique d'agglomération pour une gamme de cisaillement accessible à différentes concentrations en sel, de sorte à extrapoler ces résultats pour estimer la taille moyenne des agrégats dans les systèmes d'irrigation testés. On lance l'analyse granulométrique à raison de 3s pour chaque mesure. Après 10 mesures on injecte la concentration de sel voulue dans le réacteur.





IV.1.3.2 Mélange argilo-calcaire

La distribution de taille des particules du mélange argilo-calcaire dans l'eau s'étale de 200 nm à 20 μ m, avec une valeur médiane D50 située à 4 μ m (Figure IV-10)



Figure IV-10 : Distribution volumique de la taille des particules du mélange argilo-calcaire sans adjonction de sel.



Figure IV-11 : Effet de la force ionique sur la taille des particules du mélange argilo-calcaire

L'ajout de sel NaCl sur cette suspension initiale n'a aucun effet sur l'évolution temporelle de la taille des particules. Celle-ci reste inchangée même après 2heures. La stabilité du mélange argilo-calcaire en suspension révèle donc son insensibilité à la concentration en contre-ions monovalents dans la gamme étudiée.

IV.1.3.3 La bentonite

Les mesures de la suspension de bentonite obtenues en absence de sel sous différents cisaillements $G(s^{-1})$ (Figure IV-13) montrent que le diamètre médian des particules (D50) est insensible aux variations du cisaillement. Le D50 reste de l'ordre de 5 µm quel que soit le

cisaillement. Cette valeur correspond donc à la taille élémentaire des particules constituant l'argile.



Figure IV-12 : Distribution volumique de la taille des particules de bentonite, en fonction du cisaillement, sans adjonction de sel.

Une fois la taille (D50) des particules de bentonite vérifiée, on s'intéresse à l'influence de la force ionique sur la coagulation des particules argileuses en fonction du cisaillement. En présence de sel NaCl à 10^{-3} M, la distribution de taille reste centrée autour de 5 µm, quelle que soit le cisaillement. La coagulation de l'argile n'a donc pas lieu, en revanche, à 10^{-2} M de NaCl, le D50 augmente (Figure IV-13) de près 300 % de sa valeur initiale lorsque le cisaillement augmente de 20 à 125 s^{-1} . Une concentration critique de coagulation est donc atteinte, et ce lien entre la taille et le cisaillement témoigne d'une cinétique d'agrégation limitée au moins par la fréquence de collision des particules.



Figure IV-13 : Taille médiane D50 des particules de bentonite en fonction du cisaillement et de la concentration en sel. Chaque mesure est enregistrée après 36 minutes de stabilisation.

IV.1.4. Effets de la concentration en sel et du cisaillement sur la cinétique d'agrégation de la bentonite

Trois concentrations en sel NaCl $(10^{-3}, 10^{-2}, \text{ et } 10^{-1} \text{ M})$ et trois valeurs de cisaillements (20, 60, 210 s⁻¹) ont été imposées sur la suspension de bentonite, afin d'étudier leurs effets respectifs sur la cinétique d'agrégation par coagulation de celle-ci. Les résultats sont présentés en figures IV-11 avec l'évolution de la taille médiane des agrégats D50 en fonction du temps, mesurée par diffraction laser en sortie directe du réacteur Couette.

Il se confirme, comme vu en figure IV-10, que quel que soit le cisaillement, la concentration en sel 10-3 M est insuffisante pour favoriser l'agrégation de la suspension par coagulation. En revanche, en présence de NaCl à10-2M, une augmentation de la taille des agrégats est observée, selon une cinétique croissante avec le cisaillement. Ce comportement est typique du régime d'agrégation lente RLA (reaction limited aggregation), où seulement une faible fraction des collisions inter particules entraine leur collage. Dans ce cas l'agrégation dépend essentiellement de la fréquence de collision. Sous ce régime, la taille des agrégats formés au bout de 30 minutes ne semble pas particulièrement corrélée au cisaillement du système, oscillant entre 10 et 20 microns. En revanche, la taille stabilisée au plateau est atteinte d'autant plus vite que le cisaillement est important. En présence de NaCl à 10⁻¹ M, une cinétique d'agrégation rapide est observée, permettant la formation d'agrégats plus gros de 20 à 40 microns, dont la taille diminue quand le cisaillement augmente. Dans ces conditions, le cisaillement n'a plus seulement pour effet de favoriser les collisions inter particules, et donc l'agrégation : il est aussi à l'origine d'une tendance inverse, en compétition avec le mécanisme d'agrégation, le fractionnement des agrégats formés lorsque leur cohésion interne est insuffisante pour supporter leur grande taille. Ce comportement est typique d'un régime d'agrégation DLA (diffusion limited aggregation), avec des cinétiques rapides et corrélées à la fréquence de collision.



Figure IV-14 : Effet de la concentration de sel sur l'évolution temporelle du D50 pour les valeurs de cisaillement de G=20s⁻¹(a), G=60s⁻¹ (b) et G=210s⁻¹(c)

Sur la Figure IV-14, on distingue deux effets qui s'articulent entre eux, l'effet de concentration en sel et l'effet du cisaillement.

- <u>L'effet de la concentration en sel</u> : on remarque que plus on augmente la force ionique plus on obtient une cinétique de coagulation bien visible due à la quantité d'ions apportée à la solution qui se fixent sur la surface des argiles. La tendance observée sur les trois figures (a, b, et c) est identique pour chacune des concentrations en sel $(10^{-1}, 10^{-2}, 10^{-3} \text{ M})$. Concernant la plus forte concentration (10^{-1} M) on remarque une augmentation rapide des diamètres des particules jusqu'à un point d'équilibre au-delà duquel la taille des particules ne varie plus. Il est possible de définir à partir de ces graphiques une vitesse d'agrégation en µm/s, qui correspond à la pente maximale de la courbe, pour les concentrations de 10^{-1} M et 10^{-2} M. Pour la courbe à 10^{-3} M, on remarque une absence du phénomène de coagulation aux différentes valeurs de cisaillement. L'effet du cisaillement : cet effet est visible non pas sur la tendance de la
- <u>L'effet du cisaillement</u>: cet effet est visible non pas sur la tendance de la courbe comme on l'a vu pour la concentration en sel mais sur la vitesse pour atteindre le plateau de stabilisation. Pour un cisaillement de 210 s⁻¹ (c) le plateau est atteint après 3min pour la concentration de 10⁻¹M et 24 min pour la concentration de 10⁻² M. Pour 10⁻³ M, on observe une absence de cinétique de coagulation due à la faible force ionique fournie dans la solution.

La Figure IV-15 nous indique que la vitesse de coagulation croît avec la concentration en sel et le cisaillement appliqués à la solution. Ce qu'on observe sur les trois courbes c'est un équilibre entre la force ionique présente dans la solution et la force de cisaillement appliquée, c'est-à-dire une concentration suffisante pour former des agrégats et un cisaillement assez fort pour les former en augmentant la probabilité de choc et assez doux pour ne pas les casser.



Figure IV-15: la cinétique d'agréation exprimée en échelle logarithmique en fonction du cisaillement à 10⁻¹, 10⁻² et 10⁻³ M de NaCl.

IV.1.5. Approche numérique de la cinétique d'agrégation

Les présents résultats obtenus dans le paragraphe ci-dessus peuvent être comparés à l'approche numérique de la simulation de l'agrégation des particules à du modèle développé par Thill (A.Thill et al., 2001). L'idée est de comparer l'évolution de la taille des agrégats avec celle que fournit le modèle pour un cisaillement donné. Cependant, pour prédire l'évolution temporelle il faut également introduire l'efficacité de collage entre les particules (α) et la dimension fractale (d_f) des structures d'agrégat. Ces valeurs ont été estimées de manière itérative en comparant les courbes numériques et expérimentales de l'évolution du

D50 pour chaque cisaillement et concentration en sel $(10^{-1} \text{ et } 10^{-2} \text{ M})$ Figure IV-16 ; Pour la concentration de 10^{-3} M vu l'absence du phénomène d'agglomération, cette analyse n'a pas été effectuée. (Figure IV-14).

En l'absence d'approche expérimentale complète, explorant toute la gamme des cisaillements jusqu'à 2.10^{+3} s⁻¹, nous avons utilisé le modèle de Thill aux faibles cisaillements (20, 60 et 210 s⁻¹) pour ensuite extrapoler sur de grandes valeurs. Cette approche ne permet de fournir qu'une valeur indicative des phénomènes que l'on pourra rencontrer dans le labyrinthe des goutteurs. Les différents paramètres exploités sont synthétisés sur le Tableau IV-2.

α: efficacité de collage entre les particules

d_f : la dimension fractale.

 D_{max} : la taille des particules au-delà de laquelle tous les agrégats sont fragmenter (en μ m) D_{max1} : la taille des particules lorsqu'elles commencent à se fragmenter sous l'effet du cisaillement (en μ m).

La dimension fractale croit avec l'augmentation du cisaillement. Cette croissance est logique car le cisaillement favorise la probabilité de chocs entre les particules et par conséquent l'accroissement de leur taille

	G(s ⁻¹)	α	d _f	D _{max}	D _{max1}
	20		1,5	15	25
10 ⁻² M	60	0,025	1,8	18	35
	210		2,1	15	25
	20		1,6	15	55
10 ⁻¹ M	60	0,6	2,1	18	42
	210		2,32	10	30

Tableau IV-2: Paramètres d'entrées dans le code de Thill pour 10⁻¹ M et 10⁻² M NaCl



Figure IV-16 : Calibrage du model de Thill sur les résultats du Taylor-Couette à 10⁻¹ M (a) et 10⁻² M (b) NaCl

On observe sur les courbes de la Figure IV-16, une augmentation de la cinétique d'agrégation qui a une efficacité de collage plus importante à 10^{-1} M de NaCl (α =0,6) que à $10^{-2^{\circ}}$ M,(α =°0,025) du fait de l'augmentation de la force ionique de la solution et la probabilité de chocs entre les particules, qui favorise leur collage. On remarque aussi (Tableau IV-2) que la valeur de la dimension fractale D_f augmente avec la valeur du taux de cisaillement.

Suite à ce calage du modèle de Thill sur nos données expérimentales, ce modèle peut être utilisé pour nous donner une indication de ce que pourrait l'agrégation pour des taux de cisaillement très importants.



Figure IV-17 : Extrapolation de taille de floc pour G = 1000 s⁻¹

L'extrapolation de la taille des particules pour un cisaillement de $10^3 s^{-1}$ se fait à partir des équations des courbes de tendance (Figure IV-17). Pour la concentration de 10^{-1} M, on obtient un D(50) qui vaut $13\mu m$; pour une concentration 10^{-2} M on obtient un diamètre de $15\mu m$ pour le même cisaillement.

Concentration	Equation e la courbe de tendance	D50 (μ m) à G=10 ⁺³ s ⁻¹
10 ⁻¹ M	$D(50) = -6.5119 Ln(\tau) + 58.874$	15µm
10 ⁻² M	$D(50) = -1.5965 Ln(\tau) + 24.614$	13µm

Tableau IV-3 : Extrapolation des tailles de particule à G=10⁺³s⁻¹ à partir des courbes de tendance

Pour de faibles concentrations en sel, le cisaillement a peu d'impact sur la taille finale D_{max} (Figure IV-17). Par contre pour des concentrations plus fortes le cisaillement va avoir tendance à diminuer ou à augmenter le D50. Dans le cas de 10^{-1} M les agrégats formés sont plus gros qu'à 10^{-2} M. Le fait d'augmenter le cisaillement, aboutit à une plus grande fragmentation des agrégats, alors que pour 10^{-2} M il favorise leur agglomération

Malgré ces tendances contradictoire, à l'agrégation d'une part à 10-2 M de NaCl, et à la fragmentation d'autre part à 10-1 M de NaCl, il semblent qu'on tende vers une même taille d'équilibre lorsque le cisaillement augmente (Figure IV-17) qui est de : $D50 \approx 20 \mu m$. Cependant, en l'absence d'expérience menée à $G \approx 10^3 s^{-1}$, nous ne sommes pas en mesure

d'affirmer que l'augmentation de G ne va pas provoquer la rupture des agrégats et donc une diminution du Dmax.

IV.2. Étude du colmatage des goutteurs en laboratoire

IV.2.1. Méthodes pour caractériser la cinétique de colmatage des goutteurs à long terme

Pour déterminer quels sont les facteurs qui induisent le bouchage des goutteurs, des expériences ont été menées au sein du laboratoire du CEMAGREF. Ces expériences consistent à tester les deux argiles déjà caractérisées (IV.1) et leur capacité à colmater les goutteurs en faisant variant la force ionique de la solution, la température ou la quantité d'argile présente dans la solution, sur une durée de 20 jours minimum.

La démarche vise à comprendre les phénomènes de colmatage sous conditions. contrôlées (taille et type de particules, charges ioniques, température) de façon à identifier les divers processus en jeu, en particulier les conditions hydrauliques (vitesse de l'écoulement, taux de cisaillement et temps de repos), ainsi que leurs interactions.

Le montage (Figure IV-18) est composé de :

- six lignes de goutteurs type GR à cheminement long avec un débit de 2 l/h. Sous chaque ligne, des gouttières permettent de récupérer l'eau qui s'en écoule et de la réinjecter dans le réservoir. Cette manœuvre a pour but de travailler à concentration constante et de garder un volume constant dans les réservoirs.
- six réservoirs de 50 L remplis avec de l'eau potable filtrée à 3 µm dans lesquels l'agitation de l'eau est assurée en circuit fermé, une pompe alimente chacune des lignes à partir de l'eau du réservoir ; chaque réservoir possède deux pompes, l'une qui alimente les goutteurs et l'autre pour agiter la suspension de bentonite.

Une suspension qui alimente les lignes de goutteurs est une eau chargée (mélange argilo-calcaire, ou bentonite) à 200 mg/l. Ce mélange est préalablement préparé dans un bécher d'un litre à 8g/L et homogénéisé par agitation magnétique avant d'être diluée dans les 40 L d'eau claire contenue dans chaque réservoir. La pompe qui joue le rôle d'agitateur est mise en marche pour homogénéiser le mélange. Après cinq minutes la pompe d'alimentation est mise en marche pour alimenter les goutteurs. La température de la solution est maintenue inférieure à 23°C par un échangeur de chaleur plongé dans le réservoir. La pression dans les lignes est maintenue à 1 bar. Le débit de chaque goutteur est mesuré quotidiennement, par pesée de la suspension recueillie sous le goutteur pendant 5 minutes. Le débit massique est converti en débit volumique.

Au cours de cette expérience, les paramètres qu'on a fait varier afin d'étudier leur effet potentiel sur le colmatage des goutteurs sont :

Mélange argilo-calcaire :

• le temps de fonctionnement sur les six lignes. Deux lignes fonctionnent une heure par jour et les quatre autres, huit heures par jour ;

• la température de la solution : Une seule ligne fonctionne huit heures par jour à une température inférieure à 23°C, puis à 40°C entre le 8eme et le 9eme jour.

Bentonite :

Etant donnée l'absence d'effet du sel NaCl sur la dispersion colloïdale du mélange argilo-calcaire, les expériences de suivi du débit à différentes concentrations en sel NaCl ont été menées uniquement avec la bentonite. Les tests ont été effectués avec des concentrations en NaCl de $0, 10^{-3}$ et 10^{-2} M

Les deux tableaux ci-dessous résument le schéma expérimental pour les deux types d'argile.

Melange arglio-calcaire :	
Lignes 1 et 2	1 h/j
Lignes 3, 4, 5 et 6	8 h/j
Bentonite :	
Ligne 1	0 M/l NaCl
Ligne 2	10 ⁻³ M/l NaCl
Ligne 3	10 ⁻² M/l NaCl

 Tableau IV-4 : Récapitulatif du protocole expérimental





Figure IV-18 : Banc d'essai pour le mélange argilo-calcaire

IV.2.2. Influence de la charge en particules sur les débits à court terme

Nous avons cherché à mettre en évidence l'impact de la quantité d'argile présente dans une solution, sur le débit des goutteurs. Pour ce faire, des capteurs de masse HBM® de type SP4C3-MR (Figure IV-19) ont été mis en place pour suivre en continu l'évolution du débit. Ce suivi instantané permet de déceler des variations très faibles de débit par rapport au débit mesuré en eau claire.



Figure IV-19 : Capteur de masse SP4C3-MR

Les capteurs sont reliés à une station d'acquisition (spider8®). La cadence d'acquisition est d'une mesure par seconde. La sensibilité de mesure des capteurs est de 2 pour 10000. Les mesures sont enregistrées en continu. L'eau recueillie est reversée périodiquement dans le réservoir, afin d'y maintenir un niveau constant.

La préparation de la suspension eau+mélange argilo-calcaire, est identique aux protocoles précédents (IV.2.1). On a testé sur 8h et sur une seule ligne neuve l'impacte de la charge de la suspension sur les débits des goutteurs. Cette charge varie de 0.1 jusqu'à 1g/L avec un pas de 0.1. On effectue les mesures suivantes :

Des mesure en eau claire sont faites préalablement sur la ligne, afin d'avoir un référence de débit des goutteurs.



Figure IV-20 : Schéma représentatif du principe de l'expérimentation

IV.2.3. Résultats pour le mélange argilo-calcaire

IV.2.3.1 Effet de la durée quotidienne de fonctionnement sur le colmatage par le mélange argilo-calcaire

Au cours de cette expérience, les lignes de goutteurs 1 et 2 ont été mises en fonctionnement 1h par jour, alors que les lignes 3 à 6 ont fonctionné 8 h par jour.

• Paliers de fonctionnement court (1 h/jour)

Les résultats sont représentés sur les figures suivantes. Chaque courbe correspond à un goutteur. La variation observée entre les goutteurs au temps 0 exprime l'hétérogénéité de fabrication de ces derniers.



Figure IV-21 : Evolution du débit pour chaque goutteur par rapport au débit en eau claire durant toute la période des tests, pour la ligne 1 (1h/jour)

Les goutteurs de la ligne 1 comme ceux de la ligne 2 (Figure IV-22) ne présentent aucune forme de colmatage, car on n'observe pas de chute du débit par rapport à celui mesuré en eau claire au bout des 20 jours que durait l'expérience.

Au contraire, le débit en eau chargée est légèrement supérieur à celui mesuré en eau claire. Ce décalage est constant au cours du temps et homogène sur tous les goutteurs de la ligne 1. Sous réserve que ce résultat ne soit pas biaisé par un problème de métrologie (variabilité de fonctionnement des pompes par exemple), deux hypothèses permettent d'expliquer ce phénomène :

- 1. L'eau chargée à 200 mg/L de mélange argilo calcaire présente une rhéologie différente, plus fluide elle favorise l'écoulement dans le labyrinthe.
- 2. Les particules déposées dans le labyrinthe des goutteurs tendent à lisser les aspérités, ce qui contraint la circulation de l'eau selon un circuit moins perturbé. Ce phénomène est d'autant plus probable que l'augmentation de débit apparaît avec un jour de délai en moyenne.



Figure IV-22 : Evolution du débit pour chaque goutteur par rapport au débit en eau claire durant toute la période des tests, pour la ligne 2 (1h/jour)

La Figure IV-23 nous montre que la variation des débits des goutteurs en fonction du débit mesuré en eau claire (Ec) augmente de 5%. Cette hausse est maintenue ensuite durant toute la période des expériences. Les deux lignes gardent une très bonne homogénéité malgré la qualité de l'eau.



Figure IV-23 : Evolution temporelle du Ec pour les lignes 1 et 2 fonctionnant 1h/jour

• Paliers de fonctionnement longs (8h/jour)

Sur les 4 lignes restantes, on a appliqué le même protocole de prélèvement que celui utilisé pour les deux lignes avec un fonctionnement de 8h par jour. Les résultats (Figure IV-24) montrent que la plupart des goutteurs ont un débit légèrement plus important que celui observé en utilisant de l'eau claire. Néanmoins on observe certains jours que des goutteurs délivrent un débit moindre comme dans le cas de la ligne 3-goutteur 6 ou la ligne 4-goutteurs 7 et 6 ou même un colmatage quasi-total du goutteur 4 de la ligne 6. Ce colmatage apparaît donc de façon aléatoire, quelle que soit la ligne ou la position du goutteur. Il est néanmoins

réversible car on remarque ensuite un retour du débit à sa valeur initiale. On peut faire l'hypothèse que des particules ou des amas obstruaient le labyrinthe du goutteur et ont été évacués du fait des variations de pression lors de la mise en route du système.



Figure IV-24 : Evolution du débit pour chaque goutteur par rapport au débit en eau claire durant toute la période des tests, pour les lignes 3, 4, 5 et 6 (8h/jour)

Le comportement des goutteurs dans cet essai reste similaire à celui des essais sur 1h/jour. La Figure IV-24 montre que le débit moyen des 6 lignes reste au-dessus du débit nominal de 5% environ. Toutefois des périodes de débit plus faibles sont observées mais ne durent pas, on ne peut donc pas affirmer qu'un colmatage s'est mis en place.

Pour les lignes 3, 4, 5 et 6, on atteint une valeur du Ec qui vaut 7% (Figure IV-26) avec des fluctuations pour au final retrouver le même coefficient qu'au premier jour.



Figure IV-25 Evolution temporelle du débit moyen sur les lignes 3, 4, 5 et 6 (8h/jour)



Figure IV-26 : Evolution temporelle de Ec sur les lignes 3, 4, 5 et 6 (8h/jour).

IV.2.3.2 Influence de la température sur le colmatage

Sur une vingtaine de jours de fonctionnement à raison de 8h par jour, l'augmentation de la température de l'eau de 23°C à 40°C a provoqué le colmatage quasi-instantané et irréversible des trois goutteurs 1, 3 et 10 (Figure IV-27).



Figure IV-27 : Evolution temporelle du débit des goutteurs

Pour caractériser l'homogénéité de la ligne, dans le cas d'un colmatage d'un ou de plusieurs goutteurs, le calcul du coefficient d'uniformité n'est plus pertinent, dans ce cas, on calcule le nombre de goutteurs dont le débit a diminué de 30% ou plus par rapport au débit de référence Q_0 (l'eau claire).



Figure IV-28 : Nombre de goutteurs dont le débit est supérieur à 70% du débit en eau claire (Q₀)



Figure IV-29 : Evolution temporelle du débit moyen

L'observation des trois goutteurs colmatés au microscope révèle une obstruction presque totale de la grille d'entrée et un bouchon au niveau du labyrinthe ; ce bouchon a l'aspect d'un biofilm comme illustré. Figure IV-30Mis à part ces trois goutteurs et un quatrième qui est partiellement colmaté, la ligne a fonctionné parfaitement pendant toute la durée de l'essai. L'absence de colmatage physique n'est pas étonnant, vu le caractère inerte du mélange argilocalcaire, qui est peu soumis aux phénomènes d'agrégation ; par contre, avec des températures plus élevées, on crée des conditions favorables au développement des biofilms (Figure IV-30) qui tendent à piéger les particules et à colmater le système.



Figure IV-30 : Photographie du colmatage dans le labyrinthe (a et a') et dans la grille d'entrée (b et b'), pour les goutteurs numéro 3 et 8 et sur le

IV.2.3.3 Influence de la charge en particules sur les débits dans les goutteurs

Les résultats obtenus sont présentés dans la Figure IV-31. Au cours de nombreux essais à différentes concentrations, ils montrent une légère augmentation (<2%) du débit immédiatement après injection de particules et durant toute la période d'essai. Cette augmentation intervient dans des proportions moindres que ce qu'on a pu observer sur les premiers essais (environ 5%).



Figure IV-31 : Suivi des débits par pesées en continu sur le mélange argilo-calcaire

Les résultats observés ici ainsi que certains des précédents posent un certain nombre de questions :

- sur l'expérimentation elle-même :
 - est-on sûr de la stabilité de la pression?,
 - o peut-il y avoir un effet de la température sur le comportement de la solution?,
 - quelle est l'influence du temps de fonctionnement sur la mise en place de ce phénomène ?
 - o peut-il y avoir un effet de la vitesse d'écoulement dans la ligne ?
- sur la nature des phénomènes qui peuvent entrer en jeu :
 - y aurait-il un effet des particules sur la modification de la viscosité de la suspension et l'hydrodynamique de l'écoulement?,
 - les particules pourraient-elles colmater les micro-aspérités du goutteur (effet électrostatique des parois, négligé dans les simulations numériques, et modifier les frottements aux interfaces eau-parois ?

Les réponses à ces questions n'ont pu être apportées dans le cadre du présent travail et feront l'objet de travaux futurs mixant expérimentation (avec observation des particules en nombre, taille et forme) et calcul numérique.

IV.2.4. Résultat pour la bentonite

La bentonite, dont la cinétique d'agrégation en fonction du cisaillement et de la concentration en sel NaCl a été mesurée en chapitre (IV.1), montre une stabilité colloïdale beaucoup plus sensible à la force ionique que le mélange argilo-calcaire. L'effet de son agrégation sur le colmatage des goutteurs a donc été étudié en utilisant une eau chargée en bentonite et dopée à différentes concentrations de NaCl.



Figure IV-32 : Schéma du système utilisé pour les tests de colmatage

IV.2.4.1 Comparaison de différentes concentrations en NaCl

(a) Sans sel

Les tests ont été faits sur cette ligne avec le mélange eau claire+bentonite, sans injection de sel NaCl

La Figure IV-33 montre qu'un colmatage se produit sur certains goutteurs dès les premiers jours d'irrigation avec une eau chargée en bentonite, même en absence de sel. Sur les dix goutteurs testés pour cette ligne, on remarque que le goutteur n°8 a subi plusieurs colmatages réversibles depuis le premier jour, puis irréversible à partir du 27ème jour. Les goutteurs n°1,2,3, et 5 se sont colmatés directement de manière irréversible à partir des jours 3, 17, 36 et 39 respectivement. Le goutteur 6 s'est colmaté progressivement dans le temps. Enfin, les trois autres goutteurs se sont maintenus à un débit à peu près constant pendant toute la durée du test. Le colmatage semble être indépendant de la position du goutteur, aussi bien en ce qui concerne son intensité que sa réversibilité. Il se fait donc de manière aléatoire le long de la ligne. De plus, contrairement à ce qui a été observé pour le mélange argilo-calcaire, le débit moyen des goutteurs est toujours inférieur à celui que l'on observait en eau claire.



Figure IV-33 : Evolution du débit pour chaque goutteur par rapport au débit en eau claire durant toute la période des tests, pour [NaCl]= 0 M (8h/jour)



Figure IV-34 : Evolution du débit moyen de la ligne dans le temps (charge particulaire de l'eau = 0.2g/L* ; [NaCl] = 0M)

Le débit moyen des dix goutteurs qui fonctionnent juste avec un mélange d'eau du robinet filtrée à 3 μ m et de 200 mg/l de bentonite, chute progressivement durant toute la période de test (Figure IV-34), malgré quelques augmentations ponctuelles liées au décolmatage de certains goutteurs ou une variation de pression dans le refoulement de la pompe qui influe sur la vitesse dans la rampe ainsi que dans le labyrinthe. La FigureIV-35 indique une diminution de 60% du débit moyen des 10 goutteurs par rapport à l'état initial c'est-à-dire juste avec de l'eau claire sans bentonite.



FigureIV-35 : L'évolution temporelle du %Ec par rapport au débit en eau claire



G5



G8

(a)



G10



Figure IV-36 : Vue sous microscope de l'état du labyrinthe pour le cas sans sel sur les gouteurs colmatés (a) et non-colmatés (b)

L'expérience d'irrigation avec une eau chargée en bentonite sans sel est très intéressante au point de vue du comportement de la bentonite, car elle a permis de colmater six goutteurs sur les dix, malgré la stabilité de cette argile dans ces conditions. L'observation des gouteurs colmatés sous microscope (Figure IV-34) montre la formation de gel combiné à des particules qui obstrue les labyrinthes. La formation de ce gel est certainement due à l'alternance de fonctionnement de la ligne, dans laquelle pendant les périodes de repos, l'eau s'écoule et la concentration en bentonite augmente au-delà de sa transition sol/gel (Abend, 1999).

(b) À 10⁻³ mol/l de NaCl

La ligne 2 est composée de dix goutteurs alimentés par un mélange d'eau filtrée à 3 μ m, chargée de 200 mg/l de bentonite et dopée en NaCl à 10⁻³ mol/l . La présence de sel monovalent dans la solution a pour effet de favoriser la coagulation des argiles et de former des agrégats ; ce phénomène d'agrégation est différent selon le régime d'écoulement, caractérisé par les contraintes de cisaillement (IV.1.3).

La Figure IV-38, indique que la présence de sel à faible concentration (10^{-3} mol/l) influe considérablement sur l'intensité du colmatage car on remarque :

- que les débits en général sont inférieurs à celui de l'eau claire
- que le goutteur 2 se colmate complètement et irréversiblement à partir du 8ème jour
- que le débit du goutteur n°5 chute de 50% au 38ème jour puis revient rapidement à sa valeur initiale.
- que finalement 90% des goutteurs sont définitivement colmatés au bout de 40 jours de tests.



Figure-IV-37 : Evolution du débit pour chaque goutteur par rapport au débit en eau claire durant toute la période des tests, pour [NaCl]= 10⁻³M (8h/jour)

Le débit moyen des dix goutteurs a une valeur initiale aux alentours de 2 l/h (Figure IV-38), mais chute fortement à une valeur presque nulle au bout de 40 jours.



Figure IV-38 : L'évolution temporelle du débit moyen pour la concentration de 10⁻³ M zn NaCl

La chute du débit correspondante par rapport au débit initial (eau filtrée + 200 mg/l de bentonite) est de 90% (Figure IV-38), ce qui rend la rampe complètement inutilisable.



Figure IV-39 : L'évolution temporelle du %Ec pour la concentration de 10⁻³ M zn NaCl



101

CemOA : archive ouverte d'Irstea / Cemagref



Figure IV-40 : Vue sous microscope de l'état du labyrinthe pour le cas 0.001M NaCl, sur les goutteurs colmatés (a) et non-colmaté (b)

L'observation des goutteurs au microscope (Figure IV-40) montre un développement important de gel probablement encore d'argile, et un dépôt de matière fibreuse. Le gel est distribué de manière apparemment arbitraire dans le labyrinthe, En revanche, les fibres apparaissent dans les zones ou la vitesse est nulle. Leur origine est peut être issue de matériaux détachés du filtre.

(c) à 0.01 mol/l de NaCl

La troisième ligne est composée aussi de dix goutteurs alimentés par un mélange d'eau du robinet filtrée à 3μ m, chargée de 200 mg/l de bentonite et enrichie en NaCl à 10^{-2} mol/l. La Figure IV-41 montre que la plupart des goutteurs de la ligne conserve un débit supérieur au débit nominal défini par le constructeur (2 l/h), et inférieur à celui de l'eau claire, sauf pour quelques goutteurs comme le n°3 qui s'est colmaté de façon irréversible dès le 2ème jour, et le goutteur n°7 qui se bouche brusquement (il passe de 2.2 l/h à 0 l/h) dès le 5ème jour, mais retrouve un débit normal après 33 jours de colmatage. Le goutteur n°1 a vu ses débit diminuer périodiquement durant la période de test.



Figure IV-41 : Evolution du débit pour chaque goutteur par rapport au débit en eau claire durant toute la période des tests, pour [NaCl]= 10⁻²M (8h/jour)

Le débit moyen des dix goutteurs (

Figure IV-42) diminue surtout au cours des premiers jours pour être inférieur à 2 l/h et il varie entre 1.6 et 1.7 l/h. La légère augmentation observée en fin de période de test, est due au décolmatage du goutteur n°f7 (Figure IV-41).



Figure IV-42 : L'évolution temporelle du débit moyen pour la concentration de 10⁻²M zn NaCl

Le débit moyen diminue progressivement au cours du test, jusqu'à 30% de moins que le débit en eau claire (Figure IV-43), mais remonte à 17% quand le goutteur n°7 se décolmate. Le coefficient d'uniformité chute fortement dès qu'un goutteur se bouche complètement, ce qui nous amène à dire que la ligne présente une hétérogénéité et qu'elle n'assure pas l'irrigation à un point où l'émetteur est obstrué.



Figure IV-43 : évolution temporelle du %Ec par rapport à la moyenne du débit mesurée en eau claire



(a)



Figure IV-44 : Vue sous microscope de l'état du labyrinthe pour le cas 0.01M NaCl, sur les goutteurs colmatés (a) et non-colmaté (b

L'observation des goutteurs colmatés après 40 jours de fonctionnement au microscope montre des dépôts à l'aspect sableux d'une part, une prolifération biologique de type biofilm d'autre part, et encore sur certains goutteurs la matière fibreuse. Malgré le manque de caractérisation

de ces dépôts, on remarque ici que l'absence de gel de bentonite se corrèle avec meilleur débit de la ligne au cours du temps. On peut donc supposer que c'est le gel minéral qui contrôle majoritairement le colmatage des goutteurs. Son absence à la concentration en NaCl (10⁻² mol/L) s'explique par le mécanisme d'agrégation de l'argile par coagulation, qui donne lieu à des agrégats de structure plus dense (gel attractif) que le gel typiquement obtenu à faible force ionique et forte concentration particulaire (gel répulsif). De plus, dans le cas de la concentration en sel 10⁻² M, la bentonite est normalement déjà partiellement agrégée dans le bac d'alimentation de la ligne. Son transfert via l'eau d'irrigation à travers la ligne et ses goutteurs est certainement différent de celui des particules parfaitement dispersées. Par exemple, il est très probable que les agrégats soient soumis à la sédimentation dans la ligne, et tendent à se déposer au fond de celle-ci, plutôt qu'à circuler en boucle avec la solution.

IV.2.5. Bilan sur les trois lignes :

La Figure IV-45 ainsi que le Tableau IV-5, nous montre l'état des 3 lignes en fin d'expérimentation. On remarque qu'elles ne sont pas en mesure de répondre aux besoins, car les 2 lignes alimentées par une solution sans sel et une à 0.001M NaCl sont complètement inexploitables au point de vue irrigation puisqu'elles distribuent l'eau de manière très hétérogène et celle de 0.01 M frôle la limite des 30% au dessous de la valeur prise en eau claire, malgré une remontée de la variation au dernier jour du test, due à un décolmatage.



Figure IV-45 : La variation du débit dans le temps pour les 3 concentrations de sel.

	Sans sel	10 ⁻³ M NaCl	10 ⁻² M NaCl
Goutteur colmaté	6	9	1
Goutteur non-colmaté	4	1	9
N° Goutteur	1, 2, 3, 5, 8, 10	1, 2, 3, 4, 6, 7, 8, 9, 10	3

Tableau IV-5 : Récapitulatif des résultats sur les trois lignes tester à différents concentration en sel.

CemOA : archive ouverte d'Irstea / Cemagref

Conclusion et Perspectives