# EXPERIENCES D'ECOULEMENTS DE FLUIDES A SEUIL EN MILIEUX POREUX

Cette section est consacrée aux expériences d'injection de fluides à seuil dans des échantillons poreux qui ont été effectuées au cours de ce travail.

#### IV.1 : Fluides et Matériaux

#### IV.1.1 : Les solutions de xanthane

Comme il a été rappelé en introduction de ce manuscrit, il existe différentes dispersions présentant le comportement rhéologique d'un fluide à seuil. Parmi ces dispersions, les émulsions telles que la mayonnaise ont été utilisés dans des travaux antérieurs (Malvault 2013). Toutefois, des travaux récents ont confirmé que les solutions de xanthane sont adéquates pour les expériences de YSM (Rodríguez de Castro 2016, 2018). Pour ces raisons, ce polymère a été retenu pour caractériser les échantillons poreux durant cette étude.

Le xanthane est un polymère hydrosoluble de formule brute C35H49O29, de masse moléculaire M = 933.746 g. mol<sup>-1</sup>, et obtenu par fermentation de la bactérie *Xantomonas campestris*. Il est utilisé dans plusieurs domaines tels que l'industrie pétrolière ou encore agroalimentaire, où on le retrouve sous forme d'additif dans un grand nombre de produits pour ses propriétés émulsifiantes et épaississantes (Abidin et al. 2012). Lorsqu'il est dissout dans un solvant tel que l'eau, le xanthane donne une solution caractérisée par une forte viscosité effective aux faibles taux de cisaillement, suivie d'une décroissance rapide lorsque le taux de cisaillement augmente. Pour ces raisons, les solutions de xanthane sont considérées comme des pseudo fluides à seuil. En solution, les dimensions moyennes d'une molécule de xanthane ont un diamètre de 2nm et une longueur approximativement égale à 1µm (Mongruel et Cloitre 2003). Ces dimensions suggèrent que pour des milieux dont les macropores ont une dimension de l'ordre de 10 µm comme ceux caractérisés au cours de ce travail, il n'y a à priori aucun risque d'obturation des pores aux plus faibles débits d'injections, qui correspondent également aux plus faibles gradients de pressions à travers le milieu et aux plus faibles taux de cisaillement ý.

Par ailleurs les solutions de xanthane sont également adéquates pour les expériences de YSM en raison de sa faible thixotropie (Jones et Walters 1989), qui garantit que les propriétés du fluide sont invariantes au cours des expériences. La figure 60 illustre la structure d'une molécule de xanthane.



Figure 60: Représentation schématique d'une molécule de xanthane (Lachke 2004)

Les travaux récents en YSM ont montré que la concentration en xanthane avait une influence non négligeable sur les distributions en tailles de pores obtenues, et que plus celle-ci était élévée, plus les PSD déterminées par inversion étaient proche de celle déduite des résultats de porosimétrie par injection de mercure (Rodríguez de Castro et al., 2018). Par conséquent, au cours de cette étude, il a été décidé d'utiliser des concentrations plus élevées que celles utilisées lors des travaux précédents, c'est-à-dire supérieures ou égales à 7000 ppm.

#### IV.1.2 : Préparation des solutions de xanthan

Pour ce faire, la poudre Xanthan Gum food grade XGF FNCS (jungbunzlauer Austria AG, factory pernhofen), a été choisie car parmi les trois poudres disponibles au laboratoire elle contient le moins d'impuretés. La préparation d'une solution débute tout d'abord par le choix de sa concentration et du calcul de la masse de poudre nécessaire. Ensuite le solvant est préparée en utilisant de l'eau dé-ionisée, et en y ajoutant 0.4 g. l<sup>-1</sup> de NaN<sub>3</sub> utilisé comme bactéricide. Cette eau est ensuite filtrée sur  $0.42 \mu m$ , afin d'éliminer le maximum d'impuretés possibles. Une fois cette phase de filtration achevée, le solvant est dégazé pendant trois quarts d'heure en utilisant une pompe à vide dans le but de réduire au maximum l'air dissout dans la solution.

La dernière étape consiste à dissoudre la masse de poudre de xanthane préalablement calculée dans des bécher de 0.5 L de solvant. Le solvant premièrement homogénéisé grâce à un agitateur mécanique (Heidolph, RZR 2041) en rotation à 500 tours/min, ce qui crée un vortex dans lequel la poudre est progressivement dispersée. Ensuite, la vitesse de rotation de l'agitateur est réduite à 200 tours/min, et la solution est laissée à l'abris de la lumière pendant 24 à 48h dans une salle maintenue à =  $20^{\circ}C \pm 1$ . Après cela, la solution de xanthane est conservée à une température  $T = 4^{\circ}C \pm 1$ . Avant chaque expérience, la solution est tout d'abord dégazée à l'aide d'une pompe à vide (Vacuum Pumps MPC Ultimate Pressure, ILMVAK GmbH). Quatre CHAPITRE IV : Expériences d'écoulements de fluides à seuil en milieux

poreux

concentrations ont été choisies, 7000, 8000, 9000 et 10000 ppm. Pour toutes ces concentrations investiguées, le pH de la solution de xanthane a été mesuré, et dans tous les cas sa valeur était d'environ 7. La figure 61 présente un échantillon d'une solution de xanthane de concentration  $C = 9 \text{ g. L}^{-1}$ .



**Figure 61 :** Échantillon de 0.5 L d'une solution de Xanthan Gum food grade XGF FNCS de concentration 9000 ppm.

# IV.1.3 : Caractérisation rhéologique des solutions de xanthane

Une fois préparées, les solutions sont caractérisées à l'aide d'un rhéomètre à contrainte contrôlée équipé d'une géométrie cône-plan (KINEXUS, France). Ces mesures consiste à imposer la contrainte de cisaillement au fluide, et à mesure le taux de déformation subi par ce dernier. L'appareil de mesure permet également de fixer la température à laquelle les mesures sont faites (20 °C dans ce cas), et d'enregistrer les valeurs de viscosité effective mesurées ( $\eta = \tau/\dot{\gamma}$ ).

Durant ces mesures, la contrainte imposée variant de 0.01 à 1000 Pa et l'intervalle pour chaque point de mesure est d'au moins une minute, pour s'assurer de la stabilité de la valeur de taux de cisaillement obtenue. Par ailleurs chaque mesure rhéologique est répétée de façon à limiter les erreurs sur l'estimation des propriétés rhéologiques du fluide. La figure 62 montre le rhéomètre cône plan utilisé pour caractériser les quatre solutions de xanthane.



**Figure 62:** Rhéomètre cône-plan (KINEXUS, France) utilisé pour caractériser les solutions de xanthane.

Les mesures rhéologiques obtenues sont ensuite approchées par un modèle de type Herschel-Bulkley (équation 2.26) en effectuant une régression au sens des moindres carrés par la formule:

$$\sum_{i} (\tau(\dot{\gamma}_i) - \tau_i)^2 \ \dot{\gamma}_i \tag{4.1}$$

où  $\tau_i(\dot{\gamma}_i)$  sont les contraintes du modèle et  $(\tau_i, \dot{\gamma}_i)$  sont les mesures expérimentales. Cette régression permet de déterminer la valeur de la contrainte seuil  $\tau_o$ , l'indice de consistance k, et l'indice de fluidité n. Les figures 63 et 64 suivantes présentent les mesures rhéologiques obtenues et approximées par le modèle d'Herschel-Bulkley pour les différentes solutions de xanthane. Comme on peut le voir sur ces figures, les rhéogrammes sont bien approximés par le modèle d'Herschel-Bulkley, même si comme il a été rappelé précédemment, le xanthane est en réalité un pseudo fluide à seuil (Song et al. 2006).



Figure 63 : Rhéologie des solutions de xanthane à 7000 et 8000 ppm.



Figure 64 : Rhéogramme des solutions de xanthane à 9000 et 10000 ppm.

La figure 65 présente les mêmes résultats en termes de viscosité effective mesurées pour les quatre solutions de xanthane. Comme on peut le voir sur cette figure 65, le plateau Newtonien présent aux faibles taux de déformation est plus élevé avec la concentration en xanthane, faisant que l'approximation par une loi rhéologique de fluide à seuil sera meilleure.





Le tableau 11 présente les propriétés rhéologiques obtenues après traitement des données pour les quatre solutions de xanthane.

Solution	Concentration	$\tau_0 (Pa)$	k (Pa. s <sup>n</sup> )	n
	(ppm)			
1	7000	9.13	0.16	0.67
2	8000	10.18	0.177	0.65
3	9000	11.56	0.226	0.64
4	10000	11.79	0.5	0.55

**Tableau 11 :** Paramètres rhéologiques des quatre solutions de xanthane utilisées au cours des expériences.

Les figures 66, 67, 68 présentent l'évolution de ces paramètres rhéologiques avec la concentration en xanthane. On observe qu'il n'y a aucune tendance pour l'évolution de la valeur l'indice de consistance avec la concentration en xanthane. Cependant, la valeur de la contrainte seuil obtenue croît avec concentration en xanthane, quand celle de l'indice de fluidité n décroit, ce qui traduit un comportement rhéofluidifiant plus marqué lorsque la concentration de la solution augmente. Des tendances similaires ont été observées lors de la caractérisation des solutions de xanthane au cours des dernières études de YSM (Rodríguez de Castro et al., 2016 ; 2018).



**Figure 66:** Évolution de l'indice de consistance k en fonction de la concentration C en xanthane.



Figure 67: Évolution de la contrainte seuil  $\tau_0$  en fonction de la concentration C en xanthane.



Figure 68: Évolution de l'indice de fluidité, n, en fonction de la concentration C en xanthane.

## IV.2 : Milieux poreux utilisés

#### IV.2.1 : Échantillons de roches réels et synthétiques

Deux types de matériaux ont été choisis pour réaliser ces expériences de caractérisation par injection de fluides à seuil. Premièrement les échantillons de silicate frittés Aerolith 10 (ou A10) commercialisés par PALL Corporation (USA), et dont les propriétés pétrophysiques indiquées par le constructeur sont  $\varphi = 0.4$  % et K = 5 D. Deuxièmement, des échantillons de grès de Bentheimer, qui contrairement au A10 est une roche naturelle. Ce grès a été choisi car

il est très étudié dans le domaine de la pétrophysique, et nous disposons de distributions en taille des pores de ce matériau provenant d'expériences de MIP et fournies par la compagnie pétrolière SHELL. Les perméabilités du grès de Bentheimer varient de 2.8 à 3.2 D, et leur porosité généralement autour de 23%. Pour ces deux matériaux poreux, différents échantillons ont été utilisés et leurs propriétés pétrophysiques seront présentées ci-après. La figure 69 présente des échantillons de A10 et de Bentheimer caractérisés lors de cette étude.



**Figure 69 :** Différence de texture entre un échantillon provenant d'un grès Bentheimer (gauche) et un échantillon de silicate fritté A10 (droite).

#### IV.2.2 : Préparation des échantillons de milieux poreux

Tous les échantillons utilisés lors de cette étude ont une forme cylindrique. Leur préparation nécessite tout d'abord deux plaques métalliques circulaires d'injection entre lesquelles l'échantillon sera placé. Pour éviter toute contamination possible de l'échantillon avec par des ions fer, une fine couche de téflon est appliquée sur ces deux plaques métalliques. Après avoir mesuré les dimensions de l'échantillon, il est placé entre les deux plaques métalliques, et une couche de résine Epoxy est appliquée pour le fixer à celles-ci et sur sa surface. Le durcissement de la résine nécessite au moins 24h. Cette étape est suivie par une vérification de l'étanchéité de l'ensemble en injectant du CO<sub>2</sub> sous pression dans l'échantillon tout en aspergeant la résine d'époxy à l'aide d'un détecteur de fuite Eco Leak Finder. Cette solution moussante produit des bulles aux endroits où il y'a des fuites. Celles-ci peuvent ensuite être colmatées en ajoutant une couche supplémentaire d'époxy. Une fois l'étanchéité du milieu assurée, deux trous sont percés proche de l'entrée et la sortie de l'échantillon, et les connections nécessaires aux capteurs de pressions sont installées. Ensuite trois couches de fibre de verre sont appliquées pour renforcer la résistance mécanique de l'échantillon et éviter toute rupture de la couche de résine sous l'effet de la pression au cours des expériences. Cette étape de préparation nécessite également une durée de 24h avant que des couches de résine d'époxy supplémentaires ne soient placées autour CHAPITRE IV : Expériences d'écoulements de fluides à seuil en milieux

des connections. La figure 70 présente un échantillon de Bentheimer à deux stades de sa préparation.



Figure 70: Phase initiale et finale de la préparation d'un échantillon.

#### IV.2.3 : Caractérisation pétrophysique des échantillons

La caractérisation des échantillons débute tout d'abord par la détermination de leur porosité. Pour ce faire, l'échantillon de roche est pesé à vide puis saturé avec de l'eau dégazée et filtrée à 0.42  $\mu$ m, et sa porosité est obtenue en calculant la variation relative de sa masse après la saturation. Ensuite l'échantillon est laissé en repos pendant environ 12 heures avant d'effectuer les tests de perméabilité. Ensuite des tests de perméabilité sont effectués en injectant de l'eau dans l'échantillon à 15 débits compris entre 500 et 5 ml/h. Une régression linéaire des données obtenues est alors effectuée, et la valeur de la perméabilité absolue est déduite par la relation :

$$K = \frac{Q}{\Delta P} \frac{\eta}{A} L$$
(4.2)

Les tableaux 12 et 13 présentent les propriétés pétrophysiques obtenues pour les 4 échantillons de A10. Ces mesures sont conformes avec celles connues pour ce type de matériaux, et rappelées dans les sections précédentes.

Échantillons	Milieu poreux	K (mD)	φ	L (Cm)	D (Cm)
1	A10	8050	0.527	6.8	4.65
2	A10	8950	0.502	9.3	4.6
3	A10	8670	0.512	6.3	4.77
4	A10	8333	0.507	5.28	4.77

Tableau 12: Liste des échantillons de A10 caractérisés par YSM au cours de cette étude.

Échantillons	Milieu poreux	K (mD)	φ	L (Cm)	D (Cm)
5	Grès de Bentheimer	3710	0.24	7	4.65
6	Grès de Bentheimer	2910	0.229	4.7	4.65
7	Grès de Bentheimer	3320	0.228	4.7	4.65

Tableau 13: Liste des échantillons de Bentheimer caractérisés par YSM au cours de cette étude.

Comme le montrent ces mesures la caractérisation de ces deux matériaux avec des solutions de xanthane de concentrations différentes est intéressante compte tenue de la différence de leur propriétés pétrophysiques.

# IV.3 : Réalisation des expériences d'injection de fluides à seuil dans les milieux poreux

## IV.3.1 : Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour cette étude est identique à celui adopté lors des derniers travaux en YSM (Rodríguez de Castro 2014) et est montré sur la figure 71. La procédure consiste à injecter les solutions de xanthane à des débits préalablement définis dans le milieu poreux à caractériser.



Figure 71: Représentation schématique du montage expérimental.

Grâce à des capteurs de pression (Rosemount 3051 Pressure Transmitter) fixés entre l'entrée et la sortie du milieu poreux et reliés à un ordinateur, pour chaque débit Q<sub>i</sub> imposé les différences

de pression sont relevées. Un traitement permet ensuite de prendre les valeurs à l'équilibre et de les convertir en gradient de pression à travers l'échantillon.

Les solutions de xanthane sont injectées dans les échantillons à l'aide d'une pompe pousse seringues (Harvard Apparatus PHD Ultra), pouvant fonctionner de façon semi-automatique grâce à un enregistrement de l'ensemble des débits volumiques à imposer. La figure 72 est une image réelle du dispositif expérimental.



Figure 72: Image du dispositif expérimental réel.

Avant toute expérience, l'échantillon préalablement saturé en eau est saturé avec la solution de xanthane mise en œuvre. Cette saturation est effectuée en injectant tout d'abord l'équivalent de deux volumes de pores de la solution de xanthane à un débit de 500 ml/h. Ensuite une dernière injection d'un volume de pores est effectuée au débit maximal 1000 ml/h, afin de s'assurer que tous les pores soient saturés en xanthane. L'échantillon ainsi saturé est laissé au repos pendant 48 heures avant de commencer l'acquisition des mesures  $Q_i(\nabla P_i)$ . Cette procédure est similaire à celle adoptée au cours d'expériences typiques de YSM (Rodríguez de Castro 2016, 2018). Pour finir, la température du laboratoire est maintenue à 20°C ± 0.1 ° C durant toutes les expériences, et est identique à celle laquelle les mesures rhéologiques sont effectuées.

#### IV.3.2 : Dimensionnement des expériences et acquisition des mesures

Le dimensionnement des expériences de YSM consiste à déterminer la plage et les valeurs de débits volumiques qui seront imposés lors d'une expérience. Comme lors des travaux précédents en YSM (Rodríguez de Castro 2014), les débits d'injection sont calculés par l'équation suivante :

$$Q_i = Q_{\min} * \left(\frac{Q_{\max}}{Q_{\min}}\right)^{\frac{i-1}{N-1}}$$
(4.3)

où N est le nombre de mesures  $Q_i(\nabla P_i)$  à effectuer,  $Q_{min}$  et  $Q_{max}$  sont respectivement les valeurs minimales des débits d'injection imposés.

Afin d'éviter toute déformation des seringues causée par des débits d'injection trop élevés, 50 débits d'injection sont imposés entre 0.01 et 1000 ml/h. Cette valeur maximale correspond approximativement à la valeur limite que la pompe pousse seringues puisse imposer. En outre, toutes les données sont acquises en partant des débits les plus grands vers les plus faibles, et ceci pour limiter les risques de rétention de polymères aux plus faibles débits. Pour chaque expérience réalisée, tous les points de mesure sont pris à l'équilibre. A titre d'exemple la figure 73 illustre la stabilisation des mesures de différence de pression entre l'entrée et la sortie.



**Figure 73:** Stabilisation au cours des mesures de la différence de pression entre l'entrée et la sortie d'un échantillon de Bentheimer (échantillon 5) pour différents débits d'injection.

Par ailleurs, pour chaque débit  $Q_i$ , les erreurs relatives entre valeurs successives de différences de pression  $\Delta P_i$  ont été calculées en prenant les 20 derniers points de chaque plateau de stabilisation (figure 73). Pour tous les échantillons étudiés, la valeur minimale de ces erreurs relatives s'est révélée inférieure à 0.5 %.

# IV.4 : Présentation des résultats expérimentaux

Dans cette section, les données expérimentales obtenues par injection des solutions de xanthane à travers les échantillons de Bentheimer et de A10 sont présentés, ainsi que les courbes de viscosités apparentes dans ces milieux poreux pour chaque expérience. Les solutions 1 à 4 ont été injectées dans les échantillons de A10 (tableau 12) et celles de 2 à 4 ont respectivement été utilisées pour caractériser les trois échantillons de Bentheimer (tableau 13).

## IV.4.1 : Influence de la concentration en Xanthan sur les courbes $\mathbf{Q}(\nabla \mathbf{P})$

La figure 74 présente les courbes  $Q(\nabla P)$  obtenues par injection des quatre solutions de xanthane dans les échantillons de A10 préalablement présentés (tableau 12), et également rappelées en Annexe B. Cette figure montre que pour des débits d'injection similaires, plus la concentration en xanthane est élevée, plus les gradients de pressions mesurés entre l'entrée et la sortie de l'échantillons sont importants. Ce qui est une conséquence directe de la viscosité du fluide en écoulement. Par ailleurs sur toutes ces courbes caractéristiques, on peut observer qu'il y'a un gradient de pression minimal en dessous duquel le débit d'écoulement est négligeable mais non nulle, ce qui est bien la signature d'un pseudo-fluide à seuil.



Figure 74: Courbes caractéristiques obtenues avec les 4 échantillons de A10



La figure 75 présente les données obtenues pour les échantillons de Bentheimer, et également rappelées en Annexe B.

Figure 75 : Courbes caractéristiques obtenues pour les échantillons de Bentheimer.

#### IV.4.2 : Viscosités effectives et apparentes en milieu poreux

Il est intéressant de comparer les courbes de viscosités effectives provenant des mesures de rhéologie et celles de viscosité apparentes obtenues expérimentalement. Connaissant le gradient de pression mesuré ∇P, la viscosité apparente peut être calculée à l'aide de la loi de Darcy :

$$\eta_{app} = \frac{K.A.\nabla P}{Q}$$
(4.4)

Le taux de cisaillement apparent dans le milieu poreux est défini par la formule (2.63) où le coefficient  $\beta$  a été fixé à 1. Les figures 76, 77, 78, 79 présentent les résultats pour les échantillons de Bentheimer et de A10. On remarque que dans chaque expérience, les taux de cisaillement subits par le fluide dans le milieu poreux sont du même ordre de grandeur que ceux mesurés par le rhéomètre. Sur la base de ces observations, on peut donc considérer que les paramètres  $\tau_0$ , k et n obtenus par traitement des données rhéologiques caractérisent bien le comportement du fluide en milieu poreux.



Figure 76: Comparaison entre viscosités apparentes et effectives pour la solution 1.



Figure 77: Comparaison entre viscosités apparentes et effectives pour la solution 2.



Figure 78: Comparaison entre viscosités apparentes et effectives pour la solution 3.



Figure 79: Comparaison entre viscosités apparentes et effectives pour la solution 4.

Sur ces figures 76, 77, 78, 79, on observe que les courbes de viscosités apparentes semblent décalées vers les faibles taux de cisaillement par comparaison aux courbes de viscosités

effectives. Cette observation est liée à la valeur  $\beta = 1$  (équation 2.62) prise pour superposer ces courbes.

Pour clôturer cette partie expérimentale, il est nécessaire de rappeler que des mesures supplémentaires de densités et de viscosités effectuées lors de travaux antérieurs en YSM ont montré que les phénomènes de dégradation mécanique de la solution de xanthane et d'adsorption de ces molécules dans les échantillons étaient négligeables (Rodriguez de Castro et al. 2016). Ces travaux ont toutefois mis en évidence l'importante du phénomène de rétention de polymère aux plus petits débits d'injection, dû à l'orientation aléatoire des molécules de xanthane dans les pores. En raison de ces observations, la présente étude expérimentale aura pour buts principaux d'enrichir la base de données en YSM, et d'évaluer l'impact du glissement sur les PSDs en adoptant le modèle de Kaylon (2005) qui a été présentée au chapitre III.