

Formulation et caractérisation des fluides de travail

La première tâche de la partie expérimentale a consisté à trouver des fluides de travail avec des caractéristiques particulières dans la gamme de gradients de vitesse comprise entre $0,1 \text{ s}^{-1}$ et 1000 s^{-1} . En effet, les gradients de vitesse au niveau de l'opération de *polymer flooding* sont classiquement considérés comme compris entre $0,1 \text{ s}^{-1}$ et 100 s^{-1} , bien que pouvant atteindre les 1000 s^{-1} au niveau de l'injection. Les caractéristiques recherchées pour nos fluides de travail sont les suivantes :

- Viscosité constante et comparable à celle des formulations réelles de *polymer flooding*.
- Existence d'effets élastiques, tels qu'une première différence de contraintes normales N_1 non négligeable, un module élastique élevé ou un temps de relaxation élevé.
- Contrôle aisé de la viscosité et de l'élasticité au travers de la formulation.
- Reproductibilité des propriétés rhéologiques.

Des fluides modèles présentant ces caractéristiques offriront la possibilité d'étudier expérimentalement l'effet de la viscoélasticité sur des écoulements sans changer significativement la viscosité du système. Parmi d'autres caractéristiques – non indispensables mais certainement appréciables –, nous pouvons citer les suivantes :

- Stabilité des paramètres rhéologiques dans le temps.
- Formulations organiques ou aqueuses.
- Bonne résistance chimique et thermique.

3.1.1 Formulation

Les fluides de Boger [63-66] sont des fluides viscoélastiques qui a priori présentent les qualités primaires nécessaires, c'est-à-dire une zone de gradients de vitesse où la viscosité est quasi-constante (comme pour un fluide newtonien) et simultanément – dans la même gamme de gradients de vitesse – des effets élastiques, révélés par l'apparition de valeurs significatives de la première différence de contraintes normales.

Polymère	% wt	Solvant Visqueux	% wt	Solvant Secondaire	%wt
Polyacrylamide Hydrolysé	0,02	Sirop de maïs	90 - 95	Eau	5 - 10
	0,10	Glycérol			
	0,08	Maltose			
Separan AP30	0,10–0,015	Glycérol	82 - 90	Eau	10 - 18
Separan MG500	0,04 - 1				
Gomme Xanthane	0,02	Sirop de blé	85 - 93	Eau	7 - 15
Polyisobutylène	0,05 – 0,42	Polyisobutylène	95,59 - 95,95	Kérosène	4,0
Polyisobutylène	0,05 – 0,1	Polybutène	97,00 – 98,2	Kérosène	1,8 - 3
Polyisobutylène	0,25	Polybutène	95	Tetradecane	4,75
Polyisobutylène	0,10	Exxon Parapol 450	40	Exxon Parapol 700	60
Polystyrène	0,15	Hercules Piccolastic	80	Diocetylphthalate	20
Polyisobutylène	0,10	Exxon Vistanex	38	Tetradecane	62
Polystyrène	0,09 – 0,24	Oligomeric Polybutène	99,76-99,91	N/A	N/A
Polystyrène	0,16	Oligomeric Polystyrène	1	Diocetylphthalate	52 -63
	0,23		70	Trichloropropane	30
Polyoxyde d'éthylène	1,5 - 2,5	Eau	97,5-98,5	Hydroxytoluène butylé	0,02 – 0,05
Polyoxyde d'éthylène	0,10 – 0,15	Eau	50	Polyéthylène-glycol	50

Tableau 1 : Concentrations typiques pour la formulation de divers Fluides de Boger. D'après [63-65;67-76]

Un fluide de Boger est généralement composé d'un polymère de haute masse moléculaire dissout dans un solvant peu visqueux. Un troisième composant est de plus incorporé, composant dont le rôle est d'augmenter la viscosité du système. Le résultat est donc un fluide viscoélastique aqueux ou organique (selon la nature du solvant) apparemment

newtonien, car sa viscosité est stabilisée grâce à l'effet du composant viscosifiant, et aussi **élastique** du fait des longues chaînes de polymère de haute masse moléculaire qui sont à l'origine des différences de contraintes normales non nulles.

Pour mieux comprendre ces fluides, prenons en considération certains systèmes présentés dans le Tableau 1. Une première série de systèmes comprend entre 150 et 1000 ppm de HPAM et de Separan (polyacrylamide non ionique) qui, une fois dissous dans l'eau, sont viscosifiés avec du glycérol, du maltose ou du sirop de blé et de maïs : [63;65].

Les solutions aqueuses de ces deux polyacrylamides ont un fort caractère rhéofluidifiant avec des viscosités toujours plus élevées pour les solutions hydrolysées que pour les non ioniques. Au niveau « élastique », toutes les solutions de polyacrylamide développent une première différence de contrainte normale non nulle. Dès que le composant viscosifiant est ajouté (un polyol dans le cas du glycérol et des sucres dans les autres cas), la viscosité a tendance à se stabiliser sans que le caractère élastique, dérivé de la réorganisation chaînes de polymère lorsqu'un gradient de vitesse est appliqué, soit affectée. L'appellation « fluide de Boger » provient en fait de la combinaison « Separan, eau, sirop de maïs » [64;69;70] qui a attiré l'attention par cette particularité « newtonienne-élastique ».

Une deuxième série de systèmes est composée de polyisobutène et de polystyrène de haute et de moyenne masse moléculaire dissouts dans un solvant organique comme le kérosène ou le tétradécane avec des composants viscosifiants très variés parmi lesquels nous pouvons trouver le polymère mais avec une masse moléculaire faible [67;68;72-75].

Une dernière série de systèmes, moins présente dans la littérature que la précédente, est composée du polyoxyde d'éthylène dissout dans de l'eau ; en matière de composant viscosifiant, apparaît le polyéthylène glycol [76] ; selon la composition et la masse moléculaire de polyoxyde d'éthylène, nous trouvons aussi des systèmes « sans viscosifiant » [71].

Chacun de ces trois systèmes génériques présente des intérêts potentiels ; cependant, aucun des systèmes cités ne réunit l'ensemble des caractéristiques spécifiques désirées pour notre travail. Deux critères préliminaires ont été établis pour accepter ou écarter les formulations avant de passer à une caractérisation rigoureuse.

Ces caractéristiques désirées sont : une viscosité proche de 0,1 Pa.s, et stable dans la gamme de gradients de vitesse mentionnée auparavant et l'apparition d'une différence de contrainte normale N_1 appréciable – au moins 50 Pa – au plus vers les 100 s^{-1} . Ces critères sont justifiés en fonction de la viscosité à gradient de cisaillement nul des formulations pour

le « *polymer flooding* » [11;14;16;17;41;49;77]. D'un autre côté, nous avons établi un niveau de contrainte normale arbitraire en fonction de la détection des contraintes normales par notre appareil et en essayant d'assurer un niveau d'élasticité minimal dans une gamme de gradient de vitesse raisonnables – nous ne voulons pas de formulations où le caractère élastique est mis en évidence vers un gradient de vitesse très élevé.

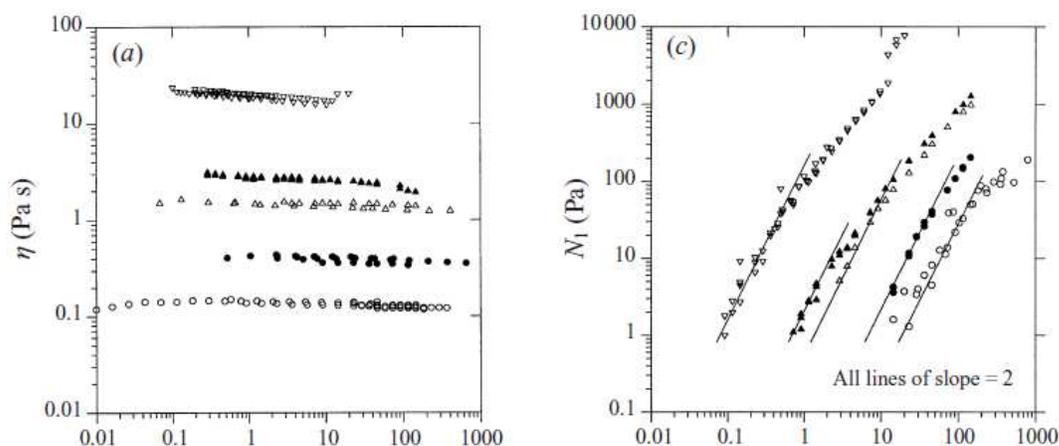


Figure 31 : Viscosité et première différence de contrainte normale pour différents fluides de Boger (○ 82 % Glycérol 150 ppm PAM, ● 90 % Glycérol 150 ppm PAM, △ 85 % Sirop de maïs 150 ppm PAM, ▲ 88 % Sirop de maïs 250 ppm PAM ▽ 93 % Sirop de maïs 400 ppm PAM). D'après [70]

Les systèmes avec polyacrylamide (PAM) – qui sont préférables, car il s'agit du polymère le plus utilisé en *polymer flooding* – sont soit très visqueux si le viscosifiant est un sirop, soit très peu élastiques si le viscosifiant est le glycérol – car la solubilité du PAM dans le glycérol est faible. Par exemple, dans la Figure 31, le fluide PAM-glycérol montre une viscosité autour 0,1 Pa.s et N_1 dépasse à peine les 100 Pa à 1000 s^{-1} . Les fluides PAM-sirop développent au contraire des contraintes normales appréciables, au moins 1000 Pa autour de 1000 s^{-1} , mais leur viscosité est toujours au-dessus de 1 Pa.s. L'utilisation d'un sucre moins visqueux comme viscosifiant semble appropriée s'il est possible d'obtenir le niveau de viscosité correct.

Les systèmes organiques permettent aisément d'obtenir un niveau élastique désiré, néanmoins ils restent très visqueux. Certains systèmes constitués d'un même polymère (comme le polyisobutylène ou le polystyrène) pour une partie à haute masse moléculaire et pour l'autre partie à faible masse moléculaire dans du tétradécane comme solvant primaire semblent idéaux pour notre propos. Par exemple, nous voyons dans la Figure 32 divers systèmes dont les viscosités sont toujours au-delà de 3 Pa.s. Leur coefficient de première

différence de contrainte normale ($\Psi_1 \equiv N_1 / \dot{\gamma}^2$) permet de déduire des contraintes normales au-delà de 1000 Pa bien avant les 1000 s^{-1} .

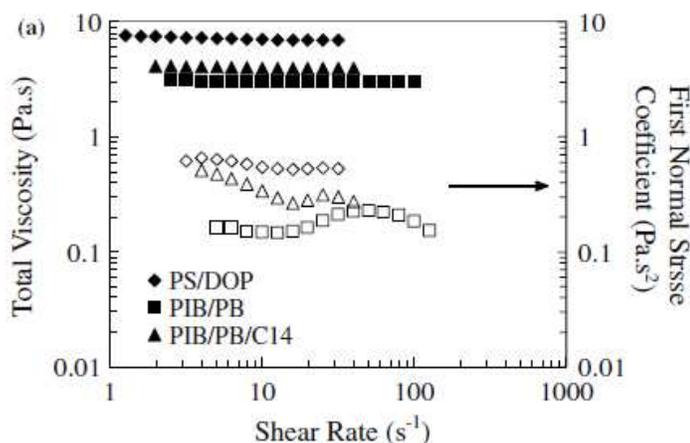


Figure 32 : Viscosité et coefficient de première différence de contrainte normale pour différents fluides de Boger (▲ PIB-Tetradecane ♦ Polystyrène-Dioctylphthalate ■ PIB-PIB) D'après [73]

Le système polyoxyde d'éthylène dans de l'eau avec polyéthylène-glycol (PEG/PEO) comme viscosifiant semble être un très bon fluide modèle pour sa viscosité et son élasticité mais il s'agit d'un polymère facilement dégradable qui n'est pas stable dans le temps. La faible différence entre η_s (viscosité à cisaillement infini) et η_0 (viscosité à cisaillement nul) suggère que l'on a affaire à un fluide presque newtonien mais les temps de relaxation élevés indiquent un caractère élastique non négligeable. Dans le Tableau 2, nous pouvons observer les caractéristiques des certains de ces fluides.

PEG concentration (wt.%)	PEO concentration (wt.%)	PEO M_w (g/mol)	η_s (Pa.s)	η_0 (Pa.s)	$[\eta]$ (m^3/kg)	λ (s)	Wi/Ca
50	0.0	–	10.03	10.03	0.0	0.0	0.0
	0.075	9×10^5	10.03	11.58	0.19	0.32	2.42
	0.075	5×10^6	10.03	12.51	0.30	6.47	42.62
	0.075	8×10^6	10.03	13.69	0.44	14.5	92.65

Tableau 2 : Caractéristiques des fluides de Boger PEG-PEO. D'après [76]

La préparation a été faite en suivant la procédure de Boger [63]. Le polymère est dissout dans une quantité adéquate de solvant primaire et mélangé pendant un premier temps d'agitation (t_{m1}). À cette solution, on ajoute ultérieurement le viscosifiant, et le mélange est réalisé pendant un deuxième temps d'agitation (t_{m2}).

Cette procédure est généralisée pour la préparation de toutes les formulations suivantes (sauf conditions spécifiques précisées) avec des temps d'agitation adaptés à chaque système. Les différentes formulations considérées sont présentées ci-dessous.

3.1.1.a Fluides de Polyacrylamide

Le premier choix pour commencer la formulation des fluides de Polyacrylamide (PAM) a consisté dans la nature du polyacrylamide à utiliser : hydrolysé ou non ionique. Bien que le produit préféré pour le *polymer flooding* soit le polyacrylamide hydrolysé (FLOPAM®), nous avons opté pour le polyacrylamide non ionique, par raison de simplicité. Nous justifierons ce choix plus loin. Le polyacrylamide utilisé a une masse moléculaire de 10^6 g/mol (PAM non ionique Aldrich).

La concentration finale de PAM dans la formulation choisie pour les premières expériences a été établie à $[PAM]_f = 500$ ppm dans la formulation finale, (ce qui est en accord avec les concentrations utilisées dans les études citées), à partir d'une solution concentrée de 30 000 ppm. Nous avons situé la limite de concentration de PAM dans cette dernière pour des raisons pratiques, car pour préparer des solutions au delà de cette concentration, des temps de mélange très longs sont nécessaires.

Fluide PAM-Maltose

Pour définir le système, nous cherchions une solution sucrée similaire à celle des diverses études précédentes [63;70], mais avec une viscosité plus basse. La première piste à suivre a été d'étudier la composition des sirops de blé, de maïs et de maltose utilisés dans les études citées. Tous ces sirops sont composés principalement de maltose, entre 40 et 70 % masse/masse [63], avec du fructose et certaines quantités de gluten (principalement les sirops de blé) mais les résultats sont des fluides de très haute viscosité. Pour éviter la dégradation rapide des formulations préparées avec des sucres, nous ajoutons un bactéricide qui est l'azoture de sodium (NaN_3) [70]

Nous avons donc choisi le maltose (Aldrich) en fonction de la viscosité de ses solutions concentrées (0,01 Pa.s à 47 % de maltose en eau) avec comme objectif que la viscosité du fluide résultant s'ajuste autour de 0,1 Pa.s par l'adition du PAM. Cependant, en travaillant à la limite de la solubilité du maltose dans l'eau (48 % à 25° C), dès que la solution de viscosifiant est ajoutée à la solution concentrée du polymère, la formulation se trouble, du fait d'une solution non homogène et ne peut pas être utilisée.

La concentration finale du maltose dans la formulation a été diminuée progressivement. À 40 % de maltose, la formulation est encore hétérogène et à 30 % de maltose, la solution résultante n'est pas assez visqueuse même avec une augmentation de la concentration de PAM. Un résumé des caractéristiques obtenues figure dans le Tableau 3 :

Formulation	η à $1s^{-1}$ (Pa.s)	η à $100s^{-1}$ (Pa.s)	N_1 à $100 s^{-1}$ (Pa)	Observations
PAM-500-Maltose47	*	*	*	Turbide
PAM-500-Maltose40	*	*	*	Turbide
PAM-500-Maltose30	0,01 Pa.s	0,009 Pa.s	0	Peu élastique
PAM-1000-Maltose30	0,012	0,01 Pa.s	0	Peu élastique

* Non mesuré

Tableau 3 : Caractéristiques des formulations PAM-Maltose

Fluide PAM-Canadou

La faible viscosité et les problèmes de solubilité du maltose pur nous ont conduits vers d'autres sirops sucrés. Le produit commercial Canadou® (CAN), composé principalement de saccharose, est un fluide newtonien qui atteint une viscosité de 0,16 Pa.s et qui nous a donné une option intéressante pour poursuivre la formulation des autres systèmes. Nous gardons l'utilisation d'azoture de sodium pour éviter la dégradation.

Des formulations ont ainsi été préparées avec différentes proportions de CAN dans l'eau. Des solutions avec une concentration supérieure à 80 % massique de CAN ont été finalement été écartées, car 80 % est la concentration la plus élevée de CAN avec laquelle le fluide présente une viscosité presque constante entre $1s^{-1}$ et $1000s^{-1}$ avec 500 ppm de PAM. Un résumé des caractéristiques rhéologiques des formulations préliminaires PAM-CAN est rapporté dans le Tableau 4.

Formulation	η à $1s^{-1}$ (Pa.s)	η à $100s^{-1}$ (Pa.s)	N_1 à $100 s^{-1}$ (Pa)	Observations
PAM500-CAN95	0,25	0,2	0	Peu élastique, rhéofluidifiante
PAM500-CAN90	0,21	0,18	0	Peu élastique, rhéofluidifiante
PAM500-CAN80	0,1	0,08	0	Peu élastique
PAM500-CAN60	0,07	0,06	0	Peu élastique
PAM500-CAN50	0,05	0,04	0	Peu élastique

Tableau 4 : Caractéristiques des formulations préliminaires PAM-CAN

Les données de la table précédente révèlent l'absence de contraintes normales, et nous avons donc augmenté la concentration en PAM. Les résultats de la Figure 33 nous montrent qu'obtenir un fluide de viscosité faible, constante et avec une valeur de N_1 significative est une tâche très compliquée – comme remarqué en [78] –, car les solutions présentent un plateau newtonien à gradient de vitesse faible, puis, à plus fort gradient de vitesse, le comportement rhéofluidifiant caractéristique du PAM apparaît, cette rhéofluidification étant accompagnée par l'apparition des forces normales liées également à la présence de PAM dans la formulation [63]. Cependant avec 80% de Canadou dans l'eau nous trouvons un compromis acceptable pour les trois variables, c'est-à-dire, N_1 à $100 \text{ s}^{-1} = 30 \text{ Pa}$, η à $1 \text{ s}^{-1} = 0,21 \text{ Pa.s}$ et η à $100 \text{ s}^{-1} = 0,14 \text{ Pa.s}$.

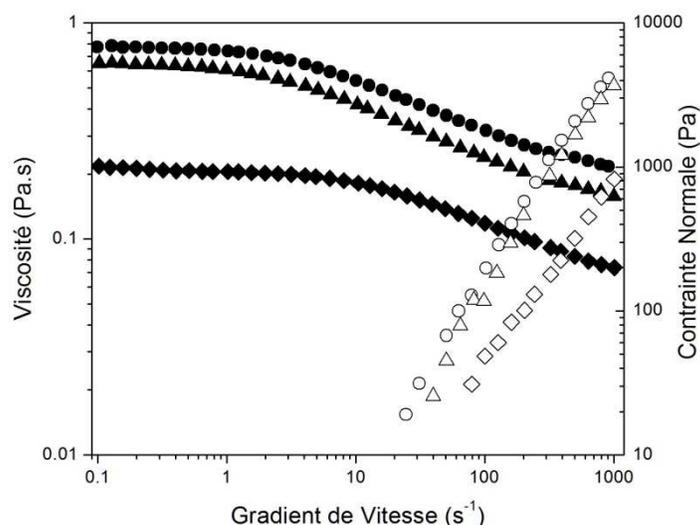


Figure 33 : Formulations PAM-Canadou avec 4000 ppm de PAM. Pour les différentes concentrations de Canadou, η [80 % (◆), 90 % (▲), et 95 % (●)] et N_1 [80 % (◇), 90 % (△), et 95 % (○)] en fonction du gradient de vitesse.

Différentes concentrations de polyacrylamide ont été testées dans une solution aqueuse à 80% de Canadou®, afin d'obtenir des contraintes normales encore plus élevées. Tous ces résultats sont résumés dans la Figure 34 et nous suggèrent que les conditions désirées se situent aux alentours d'une concentration de 5000 ppm de PAM. Un fluide avec ces caractéristiques assure ainsi une viscosité maximale de 0,3 Pa.s et minimale de 0,1 Pa.s (respectivement entre $0,1 \text{ s}^{-1}$ et 1000 s^{-1}) avec N_1 appréciable, qui commence à être mesurable dès 40 s^{-1} .

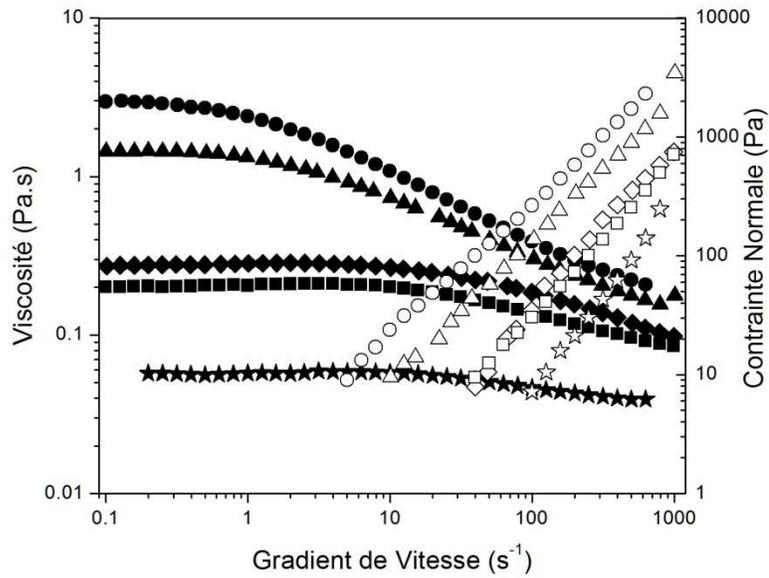


Figure 34 : Viscosité et première différence de contrainte normale pour diverses concentrations de PAM dans des solutions aqueuses à 80% de Canadou. η [à 10000 ppm (●), 8000 ppm (▲), 5000 ppm (◆), 4000 ppm (■) et 2000 ppm (★)] et N_1 [à 10000 ppm (○), 8000 ppm (△), 5000 ppm (◇), 4000 ppm (□) et 2000 ppm (☆)] en fonction du gradient de vitesse.

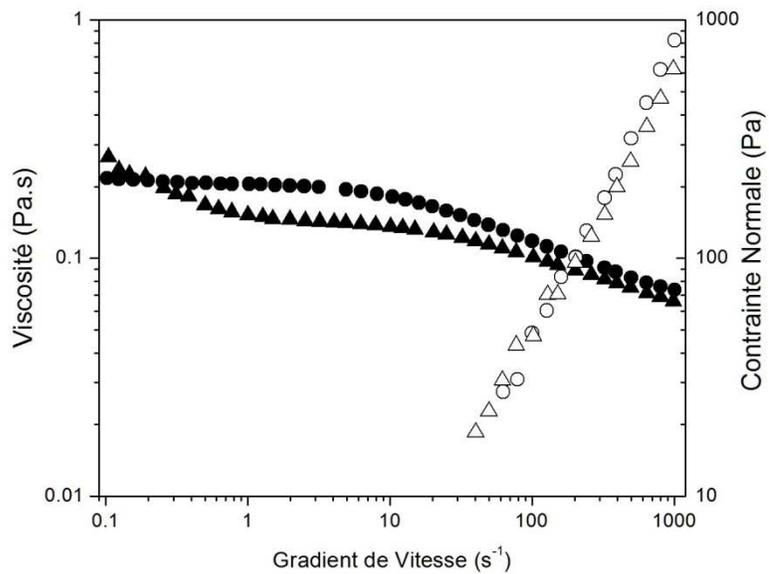


Figure 35 : Propriétés rhéologiques de deux échantillons 80 % de CAN, 4000 ppm de PAM : η [Echantillon 1 (●) et Echantillon 2 (▲)] et N_1 [Echantillon 1 (○) et Echantillon 2 (△)] en fonction du gradient de vitesse.

Des tests effectués en préparant plusieurs échantillons séparément montrent que la reproductibilité n'est pas parfaite (Figure 35). Ceci est probablement lié aux interactions électrostatiques entre les groupes carboxyles des chaînes de PAM, le degré d'ionisation n'étant pas parfaitement contrôlé. Pour diminuer les effets de ces interactions électrostatiques, il est courant, dans ce type de formulation, d'employer un électrolyte qui stabilise le degré d'ionisation du système et permet de diminuer et d'homogénéiser la taille des molécules de PMA en solution [79]. Nous avons choisi le Chlorure de Sodium NaCl pour poursuivre la formulation, qui a effectivement amélioré la reproductibilité :

Fluide PAM -Canadou-NaCl

Avec l'incorporation du Chlorure de Sodium NaCl, le résultat est l'atténuation de la rhéofluidification et une meilleure reproductibilité des propriétés rhéologiques ; cependant, un effet supplémentaire est la légère diminution des contraintes normales. Nous avons gardé deux formulations (désormais dénommées respectivement PAM-6000 et PAM-4000) après nous être assurés que la viscosité est constante même en dessous de $0,1 \text{ s}^{-1}$ au travers d'expériences avec un rhéomètre *low shear* (Figure 36).

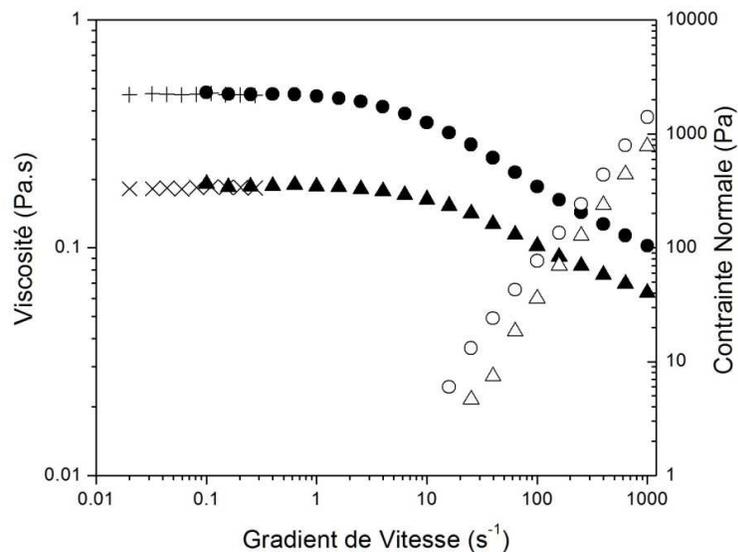


Figure 36 : Caractérisations des formulations PAM-6000 et PAM-4000. Viscosité (●), Viscosité à faible gradient de vitesse (+) et N_1 (○)] pour PAM-6000 (20 % Eau, 80 % Canadou, 6000 ppm PAM et 2000 ppm NaCl) et Viscosité (▲), Viscosité à faible gradient de vitesse (×) et N_1 (△) pour PAM-4000 (20 % Eau, 80 % Canadou, 4000 ppm PAM et 2000 ppm NaCl) en fonction du gradient de vitesse.

Nous poursuivons avec la démarche de formulation des autres systèmes, mais nous reviendrons sur la caractérisation détaillée de ces deux formulations dans la deuxième partie de ce chapitre.

3.1.1.b Formulations organiques (PIB-PIB)

Nous avons choisi un système « simple » pour aborder la formulation organique avec le polyisobutylène utilisé comme précurseur des contraintes normales (haute masse moléculaire) et le même polymère (faible ou moyenne masse moléculaire) utilisé comme viscosifiant. Nous avons choisi le tétradécane comme solvant primaire. Nous rappelons que l'intérêt de cette formulation est d'étudier un système inverse (huile de haute viscosité qui pousse une phase aqueuse de viscosité plus faible) même si les viscosités sont plus élevées que le niveau souhaité.

Les différentes formulations à partir de combinaisons de trois masses moléculaires différentes pour le polymère de haute masse moléculaire – PIB 1-2 million g/mol, PIB 2-4 million g/mol et PIB 4-8 million g/mol – (avec des concentrations différentes), d'un viscosifiant de masse moléculaire faible (PIB 920 g/mol), d'un viscosifiant de masse moléculaire moyenne (PIB 3000 g/mol) et de différentes concentrations de tétradécane sont résumées dans le Tableau 5 :

Polymère (PIB)		Viscosifiant	% n-C14	η à 100s ⁻¹ (Pa.s)	N ₁ à 100 s ⁻¹ (Pa)	Observations
MW (g/mol)	[] ppm					
1-2.10 ⁶	750	PIB 3000	5	> 10	*	très visqueux
1-2.10 ⁶	750	PIB 3000	15	> 10	*	très visqueux
1-2.10 ⁶	1000	PIB 3000	5	7	4000	très visqueux
2-4.10 ⁶	1000	PIB 3000	5	> 5	*	très visqueux
4-8.10 ⁶	1000	PIB 3000	5	> 5	*	très visqueux
1-2.10 ⁶	1000	PIB 920	15	1.4	200	RAS
2-4.10 ⁶	1000	PIB 920	15	> 2	*	très visqueux
4-8.10 ⁶	1000	PIB 920	15	> 2	*	très visqueux

* Non mesuré

Tableau 5 : Caractéristiques des formulations préliminaires PIB-PIB

Nous avons donc choisi le système organique composé de PIB 1-2 million g/mol et le polyisobutylène de basse masse moléculaire (920 g/mol) comme viscosifiant, avec la

possibilité de faire varier les propriétés en fonction de la concentration de solvant primaire. Les propriétés de ces deux formulations, désormais dénommées respectivement PIB-I et PIB-II sont résumées dans la Figure 37.

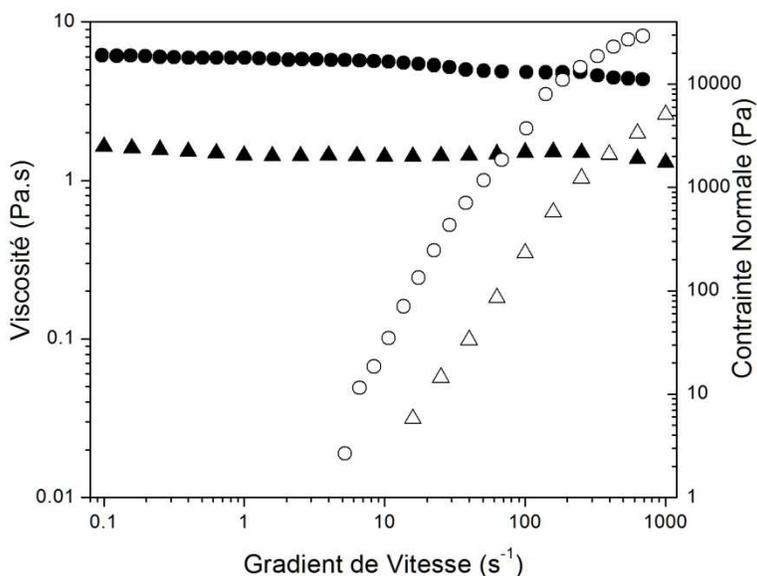


Figure 37 : Courbes d'écoulement de deux formulations PIB-PIB. Viscosité (●) et N_1 (○) pour la formulation PIB-I (1000 ppm PIB $M_w=1-2.10^6$ g/mol, 5% tétradécane, 95% Polybutène) ainsi que Viscosité (▲) et N_1 (△) de la Formulation PIB-II (1000 ppm PIB $M_w=1-2.10^6$ g/mol, 15% tétradécane, 85% Polybutène) en fonction du gradient de vitesse.

3.1.1.c Fluide aqueux PEO-PEG

La combinaison polyéthylène glycol/oxyde de polyéthylène présentée dans diverses études [71;76] comme un fluide de Boger avec contraintes normales élevées a été testée. Nous avons choisi comme variables de formulation la masse moléculaire de l'oxyde de polyéthylène – PEO 1,4 et 8 million g/mol ainsi que la concentration finale de polyéthylène glycol. Un résumé des expériences est présenté dans le Tableau 6 :

Polymère (PEO)		% PEG	η à $1000s^{-1}$	N_1 à $100 s^{-1}$	Observations
MW (g/mol)	[] ppm				
1.10^6	750	50	0.21 Pa.s	0	η constante entre $1 s^{-1}$ et $1000 s^{-1}$
4.10^6	750	50	0.26 Pa.s	40	η constante entre $1 s^{-1}$ et $1000 s^{-1}$
8.10^6	750	50	0.26 Pa.s	800	η constante entre $1 s^{-1}$ et $1000 s^{-1}$
8.10^6	1500	40	0.16 Pa.s	1590	Très élastique
1.10^6	2000	50	0.26 Pa.s	50	η constante entre $1 s^{-1}$ et $1000 s^{-1}$
4.10^6	2000	50	0.26 Pa.s	250	η constante entre $1 s^{-1}$ et $1000 s^{-1}$

Tableau 6 : Caractéristiques des formulations préliminaires PEG-PEO

La viscosité ne semble pas un inconvénient pour cette formulation car elle est fortement influencée par la viscosité de la solution PEG 50%. En effet, comme nous pouvons le constater dans la Figure 38, le seul paramètre fortement modifié par la masse moléculaire du PEO utilisé est la première différence de contrainte normale.

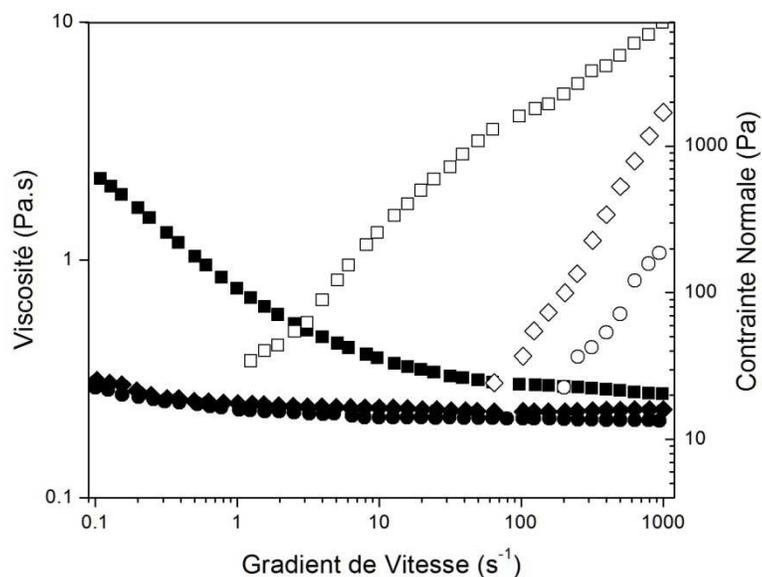


Figure 38 : Formulations aqueuses 50 % PEG avec 800 ppm de PEO de trois masses moléculaires différentes. Viscosité (●) et N_1 (○) de PEO MW = 8.10^6 g/mol ; Viscosité (▲) et N_1 (△) de PEO MW = 4.10^6 g/mol ; Viscosité (◆) et N_1 (◇) de PEO MW = 1.10^6 g/mol en fonction du gradient de vitesse.

Une caractérisation plus précise de la formulation préparée avec PEO de masse moléculaire $8 \cdot 10^6$ g/mol, montre un inconvénient : elle présente deux plateaux de viscosité constante (voir en Figure 39). En effet, l'écoulement présentera en conséquence une viscosité localement comprise entre celle du premier plateau (gradient de vitesse nul au milieu de la cellule) et celle du deuxième plateau (gradient de vitesse maximum à la paroi). En revanche, les formulations avec PAM présentent la viscosité désirée dans le premier plateau de viscosité constante.

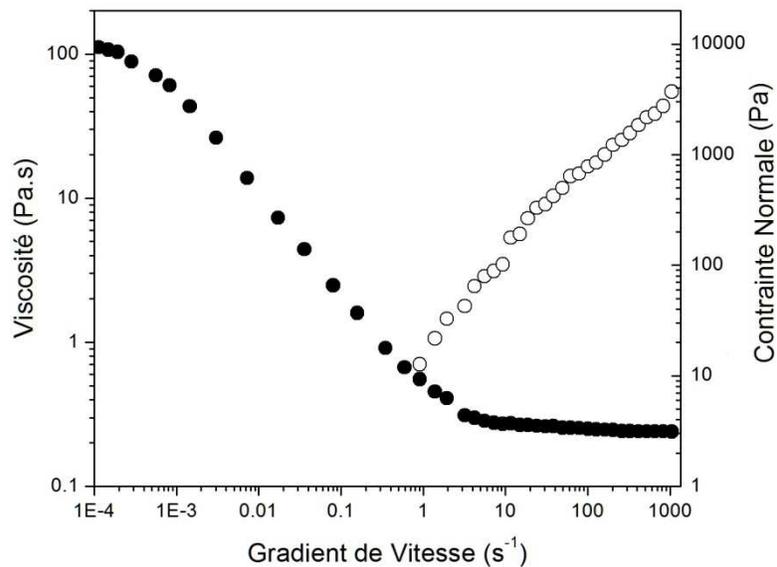


Figure 39 : Courbe d'écoulement de la formulation 50 % PEG et 800 ppm PEO de MW= $8 \cdot 10^6$ g/mol. η (●) et N_1 (○) en fonction de gradient de vitesse.

Remarquons que plusieurs auteurs ont mené des expériences mettant en œuvre des fluides de Boger sans faire cas du comportement des formulations en dessous de 10 s^{-1} [76]. Nous allons revenir sur les détails de caractérisation ultérieurement en soulignant que le système PEG-PEO présente cependant des avantages multiples du fait de la variété de N_1 accessibles en variant la masse moléculaire et concentration du PEO sans changer radicalement la viscosité du système.

3.1.1.d Fluide xanthane

En complément, pour étudier les effets d'un fluide rhéofluidifiant non élastique dans nos écoulement en cellule de Hele-Shaw, nous avons formulé un système avec du xanthane. Les caractéristiques rhéologiques de ce fluide sont présentées sur la Figure 40 :

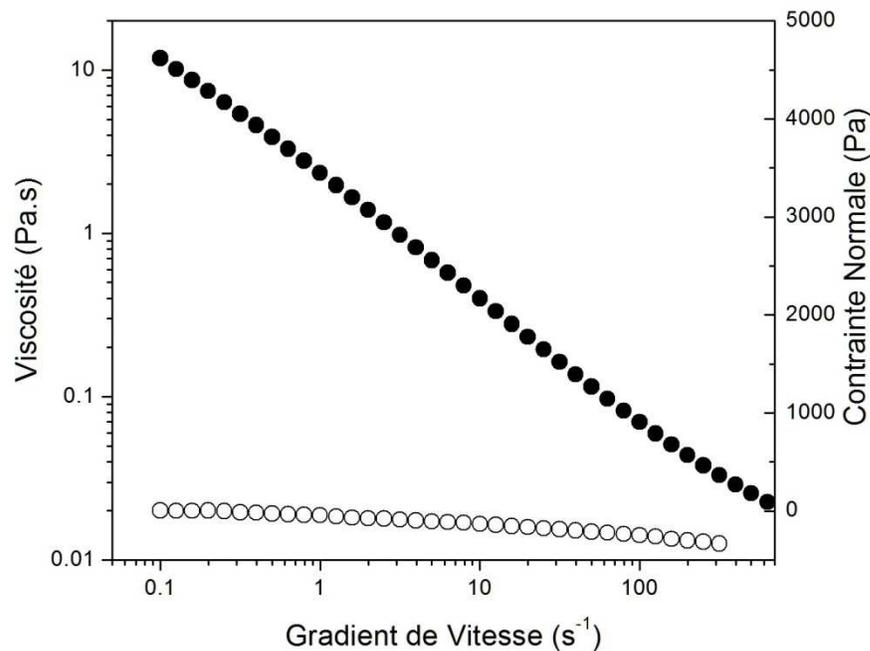


Figure 40 : Courbe d'écoulement de la formulation XAN-5000 constituée de 5000 ppm de Xanthane dans l'eau. η (●) et N_1 (○) en fonction de gradient de vitesse. À noter le caractère rhéofluidifiant et des contraintes normales négligeables.

On peut représenter sa viscosité par une loi de puissance :

$$\eta = 2,235\dot{\gamma}^{-0,732} \quad (3.1)$$

Les contraintes normales mesurées sont supposées liées aux effets inertiels constatés dans la géométrie de mesure (Voir section 3.1.2.a).

3.1.2 Caractérisation rhéologique :

Nous avons d'ores et déjà utilisé la rhéométrie pour caractériser la courbe d'écoulement et la première différence de contraintes normales

Ici nous décrivons les géométries et les méthodes – ainsi que les bases nécessaires pour réaliser les mesures et analyser les résultats – utilisées pour la caractérisation de paramètres tels que : la viscosité η , la première différence de contrainte normale N_1 , le module élastique G' , le module de perte G'' , le temps de relaxation λ et la viscosité élongationnelle η_E .

3.1.2.a Rhéomètre AR-2000 – Géométrie de mesure

Pour mesurer la viscosité et la première différence de contraintes normales, nous avons utilisé un rhéomètre AR-2000 (TA Instruments) à contrainte imposée. Nous avons utilisé une géométrie cône-plan qui est constituée d'un disque et d'un cône tronqué de même diamètre ϕ avec un angle θ_0 , dont le sommet fictif est situé sur le disque. Le cône et le disque sont coaxiaux. Par la suite, nous considérons le cas où le cône tourne et où le disque est fixe. Le fluide à analyser remplit l'espace entre les deux parties du système de mesure (Figure 41).

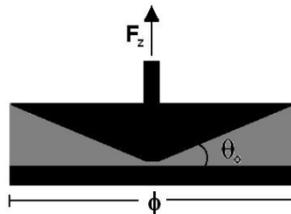


Figure 41 : Géométrie Cône-Plan. Cette géométrie de diamètre ϕ et avec un angle θ_0 mesure la force normale F_z exercée dans la direction de l'axe du cône par le fluide.

La vitesse locale d'un point du cône situé à une distance r de l'axe vaut Ωr , car la vitesse angulaire est Ω . En supposant un profil de vitesse du fluide variant linéairement entre le disque et le cône, le gradient de vitesse vaut :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\tan \theta_0} \quad (3.2)$$

Cette approximation est valable dans le cas où θ_0 est inférieur à quelques degrés [80]. On constate ainsi que le cisaillement ne dépend pas de la distance à l'axe. Le fait de cisailer le fluide entre un cône et un plan est à l'origine d'une contrainte tangentielle τ (constante au sein de l'échantillon). Cette contrainte est égale au rapport entre la force appliquée – provenant du couple C appliqué – et la surface d'application, ce qui donne directement la relation entre le couple appliqué et la contrainte selon :

$$\tau = \frac{12C}{\pi\phi^3} \quad (3.3)$$

Aux cisaillements élevés, des écoulements secondaires peuvent apparaître (avec la conséquence de mesures erronées de la viscosité) limitant ainsi la vitesse maximale de rotation [59]. Pour nous assurer que les valeurs de viscosité obtenues ne sont pas affectées par ces écoulements secondaires, nous vérifions que le nombre de Reynolds Re dans la périphérie de la géométrie, équation (3.4), est inférieur à 4 (limite approximative pour l'écoulement de transition) [81].

$$Re = \frac{\phi^2 \theta_0^2 \Omega \rho}{48\eta} \quad (3.4)$$

où ρ est la masse volumique du fluide.

Toutes les courbes d'écoulement ont été validées en calculant la valeur du Re pour les données obtenus au gradient de vitesse maximal.

Dans cette géométrie, la contrainte normale peut être déterminée grâce à la mesure de la force normale F_z exercée dans la direction de l'axe du cône par le fluide cisailé. En fait, un fluide élastique va exercer une force symétrique, équivalente à 2 fois F_z du fait qu'elle est exercée sur le cône et sur le plan, et qui va tenter d'écarter les deux parties de la géométrie. La première différence de contrainte normale N_1 est à l'origine de cette force séparatrice exercée perpendiculairement à la surface et nous pouvons écrire :

$$N_1 = \frac{8F_z}{\pi\phi^2} \quad (3.5)$$

Cependant, la contrainte normale ainsi mesurée est aussi sujette aux effets d'inertie et d'écoulements secondaires, car les forces d'inertie tendent à « attirer » les plaques l'une vers l'autre, contrairement aux contraintes normales qui tendent à les séparer. Cette correction due à la force d'inertie est donnée par [82] :

$$F_{zi} = -0.0375\pi\rho\Omega^2\phi \quad (3.6)$$

et induit donc l'équivalent d'une contrainte normale négative. Ce résultat a été confirmé expérimentalement (Figure 50) avec les fluides newtoniens et est supposé rester valable aussi pour les fluides non newtoniens, nous reviendrons par la suite sur ces résultats.

3.1.2.b Caractérisation de la viscoélasticité

Pour quantifier le caractère viscoélastique des formulations choisies, nous mesurons trois caractéristiques. Il s'agit du temps de relaxation (λ), du module de stockage (G') et du module de perte (G'') du fluide.

Les méthodes pour mesurer la viscoélasticité linéaire des matériaux sont de deux types : statiques et dynamiques. Les essais statiques ont pour principe d'imposer une contrainte ou une déformation pour suivre le développement de la déformation ou de la contrainte résultante ; ils nous permettent de déterminer le temps de relaxation du fluide et le module élastique du matériau.

Les essais dynamiques consistent en l'application de déformations sinusoïdales de fréquence donnée, telles que la contrainte et le gradient de vitesse qui évoluent en fonction du temps ; les modules de stockage (G') et le module de perte (G'') sont déterminés à travers cette méthode à l'instar du temps de relaxation du fluide.

Essais statiques : L'essai de relaxation

L'essai de relaxation consiste en la déformation instantanée du fluide, lequel va développer une contrainte qui décroît ensuite dans le temps. Le comportement est représenté par :

$$\frac{\tau}{\gamma} = Ge^{-t/\lambda} \quad (3.7)$$

Ce qui correspond à la solution du modèle de Maxwell pour une déformation imposée brutalement et que l'on peut également écrire :

$$\ln\left(\frac{\tau}{G}\right) = -\frac{t}{\lambda} \quad (3.8)$$

Et la représentation de la contrainte normalisée (τ / G) en fonction du temps permet de calculer le temps de relaxation λ du fluide (Figure 42)

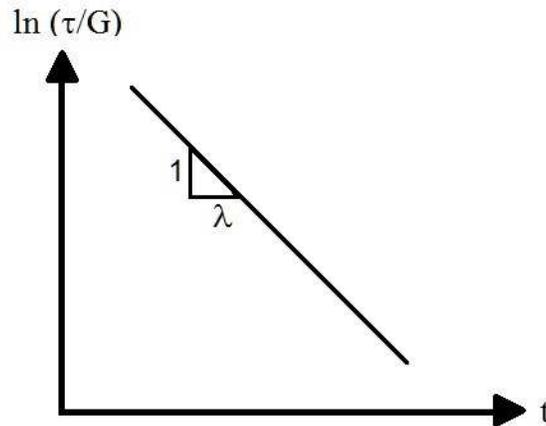


Figure 42 : Détermination du temps de relaxation λ par un essai de relaxation

Essais dynamiques : l'essai oscillatoire

L'application d'une déformation ou d'une contrainte oscillante est le principe de l'essai oscillatoire. Supposons que l'on impose une contrainte :

$$\tau(t) = \tau_0 \cos(\omega t) \quad (3.9)$$

où τ_0 est l'amplitude de la contrainte appliquée et ω la fréquence d'oscillation. La réponse du système est mise en évidence par deux réponses : la première, en phase avec l'onde d'entrée, correspond au caractère élastique, suivant l'équation (2.2) :

$$\gamma = \frac{\tau}{G} = \frac{\tau_0}{G} \cos(\omega t) = \gamma_0 \cos(\omega t) \quad (3.10)$$

Ensuite, la réponse visqueuse du matériau suivant l'équation (2.1) :

$$\dot{\gamma} = \frac{\tau}{\eta} = \frac{\tau_0}{\eta} \cos(\omega t) \quad (3.11)$$

En intégrant l'équation (3.11) par rapport au temps on obtient :

$$\gamma = \frac{\tau_0}{\omega \eta} \sin(\omega t) = \frac{\tau_0}{\omega \eta} \cos(\omega t - \pi / 2) = \gamma_0 \cos(\omega t - \pi / 2) \quad (3.12)$$

qui montre que la déformation induite est en déphasage de $\pi / 2$ par rapport à la contrainte. Si la réponse est partiellement déphasée d'une valeur ξ telle que ($0 < \xi < \pi / 2$), nous sommes en présence d'un matériau viscoélastique. On peut alors écrire :

$$\gamma = \gamma_0 \cos(\omega t - \xi) \quad (3.13)$$

Sur ce genre de matériau, la réponse en phase avec la déformation appliquée est dite élastique ; et la réponse déphasée est dite visqueuse. Avec une représentation en nombres complexes pour la déformation et la contrainte, on obtient :

$$\tau(t) = \tau_0 \cos(\omega t) = R(\tau_0 e^{i\omega t}) \quad (3.14)$$

$$\gamma(t) = \gamma_0 \cos(\omega t - \xi) = R(\gamma_0 e^{i(\omega t - \xi)}) \quad (3.15)$$

Nous pouvons ainsi définir le module d'élasticité complexe :

$$G^* = \frac{\tau_0 e^{i\omega t}}{\gamma_0 e^{i(\omega t - \xi)}} = \frac{\tau_0}{\gamma_0} e^{i\xi} \quad (3.16)$$

dont la forme trigonométrique est :

$$G^* = G' + iG'' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} (\cos \xi + i \sin \xi) \quad (3.17)$$

G' est défini comme le module de stockage qui caractérise le comportement élastique et G'' défini comme le module de perte pour caractériser le comportement visqueux du matériau. Ces modules varient avec la fréquence des sollicitations appliquées et représentent les données caractéristiques de tout essai en oscillatoire. Dans les fluides réels, il faut compter avec des réponses pour ces modules qui peuvent comprendre jusqu'à cinq régions différentes (même si, dans la plupart des expériences, il est délicat de voir trois régions ou plus).

La zone I de la Figure 43 est mise en évidence aux fréquences très basses et le comportement visqueux est présent. La zone II dénote la transition vers le comportement élastique et la fréquence de transition est l'inverse du temps de relaxation selon le modèle de Maxwell. La zone III, où le comportement élastique est dominant, nous montre que les deux modules ont tendance à rester constants ou peu variables par rapport à la fréquence. La zone IV présente un deuxième temps caractéristique et la prédominance du comportement

visqueux revient dans le système. Pour finir, la zone V à un comportement « vitreux » et le module de perte augmente continûment.

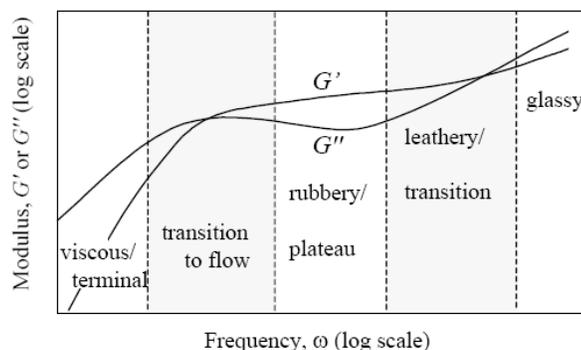


Figure 43 : Schéma de la réponse d'un fluide réel soumis à un essai oscillatoire. D'après [59]

3.1.2.c Mesure de la Viscosité élongationnelle

Une dernière propriété des formulations à mesurer est la viscoélasticité élongationnelle. Nous obtenons sa valeur en mesurant la chute de pression dans une géométrie induisant une déformation ϵ constante grâce à d'une contraction hyperbolique planaire suivie d'une expansion hyperbolique planaire. L'aspect symétrique de la contraction est choisi, car l'écoulement d'un fluide visqueux à faible nombre de Reynolds peut être considéré comme réversible ; par conséquent, la chute de pression est la même en expansion et en contraction.

Description de l'appareil Rheosense

Les écoulements pour mesurer la viscosité élongationnelle décrits dans ce chapitre ont été réalisés à l'aide d'un appareil commercialisé par la société Rheosense. Cet équipement comprend une pompe « pousse-seringue » permettant d'imposer un débit constant à travers la géométrie d'écoulement (puce). La puce est fabriquée en Pyrex et montée sur une base de silicone recouverte d'or où sont placés les capteurs de pression. Chacun de ces capteurs couvre une surface carrée de $800 \times 800 \mu\text{m}^2$. Ce sont des capteurs à membranes dont la déflexion se traduit en variations de capacité électrique.

L'ensemble du dispositif est asservi par un boîtier de contrôle et piloté par un programme LabView. La puce EVROC (Figure 44) a une géométrie de contraction et

d'expansion hyperboliques. En ce qui concerne la puce à écoulement d'élongation, son fonctionnement a été validé par l'obtention d'un nombre de Trouton très proche de la valeur théorique de 4 en écoulement planaire pour des produits newtoniens.



Figure 44 : Puce EVROC utilisé dans l'appareil Rheosense

Par ailleurs, l'appareil Rheosense est relativement facile d'emploi et ses mesures sont rapides sur des échantillons de faible volume. Une quantité de seulement 500 μl permet la réalisation d'une mesure. Un autre avantage du dispositif par rapport à l'utilisation d'autres systèmes dits "microfluidiques" en élastomère (PDMS) ou résine est sa pérennité d'emploi. Les canaux ne s'altèrent pas, ni avec le temps ni avec le passage des échantillons.

Son inconvénient est qu'il ne permet pas la mise en place de moyens optiques pour obtenir des profils de vitesse. La répétabilité des mesures est limitée au taux d'élongation où la chute de pression est comprise entre 5 % et 90 % de la chute de pression maximale.

Aspect géométrique de la cellule de mesure

La géométrie est conçue de telle façon que l'épaisseur d est beaucoup plus petite que la largeur à l'entrée de la contraction w_0 et que la longueur totale de la contraction l , c'est à dire, $d \ll w_0, l$. La largeur le long de la contraction $w(x)$ est décrite par la relation $w(x) = c/x$ ou $c = l^2$ entre w_0 et w_1 (Figure 45). Les dimensions de la puce EVROC utilisée sont : $w_0 = 3030 \mu\text{m}$, $w_1 = 433 \mu\text{m}$, $l = 800 \mu\text{m}$, $d = 179 \mu\text{m}$.

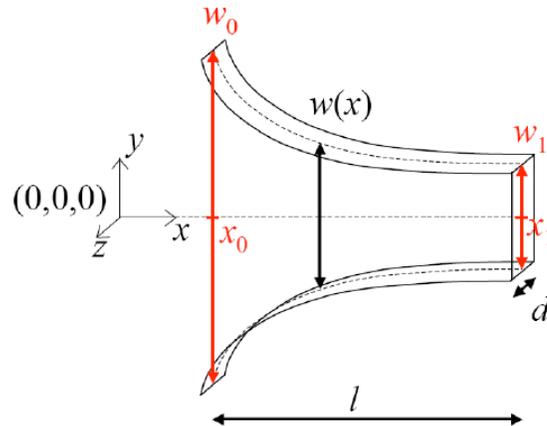


Figure 45 : Schéma de la contraction hyperbolique planaire, caractéristique de la puce EVROC.
D'après [83]

La déformation de Hencky est donnée par la géométrie et le volume V de la contraction :

$$V = \int_{x=w_1}^{x=w_0} \left(\frac{c}{x} d \right) dx = cd \ln \left(\frac{w_0}{w_1} \right) \quad (3.18)$$

En faisant apparaître la déformation (voir chapitre 2.2.3) $\varepsilon = \ln(w_0/w_1)$, on obtient $V = cd\varepsilon$

D'un autre côté, le taux d'élongation relatif dans la cellule est le rapport entre la vitesse du fluide dans la géométrie et la longueur :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\Delta v}{L} \quad (3.19)$$

Si l'on prend un plan $z=\text{constante}$, loin des parois, la vitesse $v_{(x)}$ est constante dans la largeur du canal. Un taux d'élongation moyen peut donc être calculé à partir des vitesses moyennes par unité de longueur de la géométrie, en considérant un débit constant. Cela nous permet de caractériser l'écoulement d'élongation comme une fonction de la différence de vitesse par rapport à la longueur de passage associée [83].

$$\dot{\varepsilon} = \frac{v_1 - v_0}{L} \quad (3.20)$$

$$\dot{\varepsilon} = \frac{Q}{dl} \left(\frac{1}{w_1} - \frac{1}{w_0} \right) \quad (3.21)$$

Chute de pression dans la cellule

Pour un débit imposé, la pression dans la cellule est mesurée grâce aux 4 capteurs distribués dans la longueur (Figure 46). On suppose que la chute de pression entre les points 2 et 3 peut s'écrire sous la forme d'une somme de deux composantes : une composante résultant de l'écoulement d'élongation lié au rétrécissement (ΔP_{ext}) et une composante liée au cisaillement simple (ΔP_{cis}) qui reste important compte tenu que l'on a affaire à une cellule de type Hele-Shaw. On a donc :

$$P_2 - P_3 = \Delta P_{cis23} + \Delta P_{ext} \quad (3.22)$$

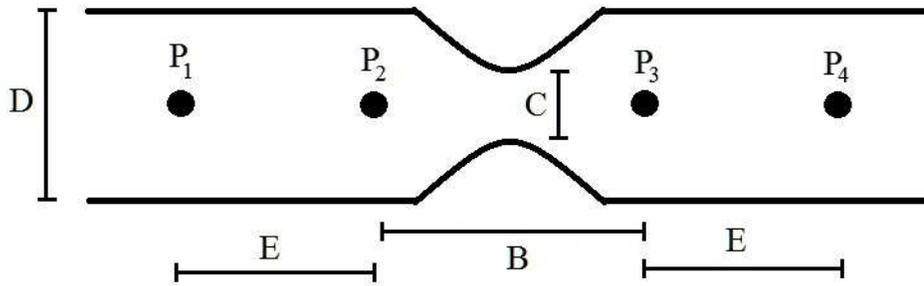


Figure 46 : Schéma de la répartition des capteurs de pression dans la longueur de la cellule EVROC. Les pressions mesurées sont P1, P2, P3 et P4. B, C, D et E sont les dimensions de la cellule.

Pour estimer ΔP_{cis} on se base sur les écoulements aval et amont en considérant que la contrainte moyenne à la paroi est une moyenne des contraintes de ces deux écoulements.

$$\tau_{w23} = \frac{1}{2} (\tau_{w12} + \tau_{w34}) \quad (3.23)$$

Par ailleurs on sait que :

$$\frac{\Delta P_{23}}{B} = 2 \frac{\tau_{w23}}{d} \quad (3.24)$$

$$\frac{\Delta P_{12}}{E} = 2 \frac{\tau_{w12}}{d} \quad (3.25)$$

$$\frac{\Delta P_{34}}{E} = 2 \frac{\tau_{W34}}{d} \quad (3.26)$$

De toutes ces équations on déduit :

$$\Delta P_{cis} = \frac{A}{E} \left[\frac{(P_1 - P_2)}{2} - \frac{(P_3 - P_4)}{2} \right] \quad (3.27)$$

La combinaison des équations (3.22) et (3.27), nous permet d'estimer la chute de pression uniquement liée aux effets élongationnels [83]:

$$\Delta P_{ext} = (P_2 - P_3) - \frac{A}{E} \left[\frac{(P_1 - P_2)}{2} - \frac{(P_3 - P_4)}{2} \right] \quad (3.28)$$

Cette chute de pression en élongation provient de l'énergie dissipée par l'extension planaire du fluide au travers de la contraction et de l'expansion :

$$F_{ext} v_o = \int_V \boldsymbol{\Gamma}_{ext} : \boldsymbol{D}_{ext} . dV \quad (3.29)$$

Où F_{ext} est la force nécessaire pour produire l'écoulement d'élongation et v_o est la vitesse d'écoulement à l'entrée. En supposant que le taux de déformation est constant dans la partie contraction-expansion, nous supposons également que la contrainte d'élongation est constante telle que $\boldsymbol{\Gamma}_{ext} : \boldsymbol{D}_{ext} = \tau_{xx} \dot{\gamma}_{xx} + \tau_{yy} \dot{\gamma}_{yy}$. Ce qui nous laisse avec:

$$\Delta P_{ext} = \frac{V}{Q} (\tau_{xx} \dot{\gamma}_{xx} + \tau_{yy} \dot{\gamma}_{yy}) \quad (3.30)$$

En élongation planaire, si le taux de déformation est constant, $\dot{\gamma}_{xx} = -\dot{\gamma}_{yy} = \dot{\epsilon}$, ce qui nous permet finalement de relier la chute de pression dans la géométrie à la différence de contraintes normales du fluide,

$$\Delta P_{ext} = \frac{V}{Q} N_1 \dot{\epsilon} \quad (3.31)$$

En conjonction avec l'équation pour N_1 du chapitre 2, nous calculons la viscosité élongationnelle planaire :

$$\eta_{EP}(\dot{\epsilon}) = \frac{\Delta P_{ext} Q}{V \dot{\epsilon}^2} \quad (3.32)$$

Toute l'analyse est valide pour un fluide newtonien ; dans le cas d'une solution de polymères, la déformation de cisaillement apporte une contribution à la première et à la deuxième différence de contraintes normales recueillie par les capteurs de pression. Du fait que la contraction hyperbolique est symétrique (et que les capteurs de pression sont aussi situés de façon symétrique), il est possible d'affirmer que les contraintes normales additionnelles s'annulent mutuellement [83]; de même, les contraintes normales dues au cisaillement ne contribuent pas à l'augmentation de la chute de pression.

Dans ces conditions on constate que l'équation (3.32) fournit une très bonne approximation de la viscosité élongationnelle d'un fluide.

3.1.2.d Procédure expérimentale :

La caractérisation des formulations consiste à mesurer η et N_1 puis les caractéristiques élastiques (G' , G'' et λ) pour finir avec la viscosité élongationnelle. η et N_1 sont obtenues en utilisant le protocole présenté dans la Figure 47 :

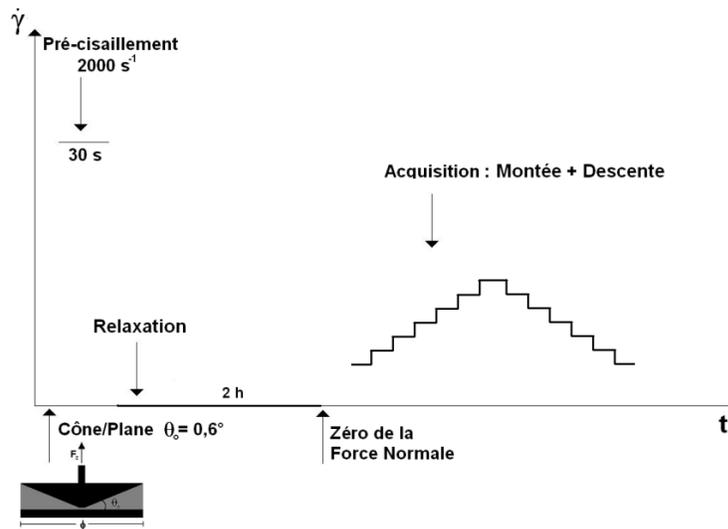


Figure 47 : Protocole de mesure pour établir la courbe d'écoulement des formulations

Protocole de mesure (Courbe d'écoulement):

1) L'échantillon est chargé sur la géométrie cône-plan de diamètre $\phi = 4$ cm et d'angle 2° du rhéomètre AR2000. La température est stabilisée. Tous les essais rhéométriques ont été réalisés à 25° C.

2) Un précisaillement durant 30 s est imposé avec un gradient de vitesse de 2000 s^{-1} pour établir un état initial uniforme pour tous les échantillons, alors que la gamme de gradients de vitesse étudié ensuite s'étend jusqu'à 1000 s^{-1} .

3) L'échantillon est ensuite laissé au repos jusqu'à la stabilisation de la contrainte normale. Les valeurs de la contrainte normale au cours du temps sont enregistrées et pour chaque famille de formulations (PAM, PEG-PEO, PIB-PIB) correspond un temps de repos particulier que nous avons déterminé.

4) Au bout de ce temps de repos (par exemple 180 min pour les formulations base PAM), le capteur de force normale est remis à zéro ($N_1=0 \text{ Pa}$).

5) Ensuite, la procédure d'acquisition est déclenchée ; le gradient de vitesse est imposé par paliers qui montent progressivement croissant entre $0,01 \text{ s}^{-1}$ et 1000 s^{-1} et chaque point de la courbe d'écoulement est mesure dans les conditions suivantes :

- a) Le gradient de vitesse est imposé pendant un temps maximal de 3 min.
- b) La viscosité est moyennée sur 30 s (qui permet un maximum de 6 acquisitions par point).
- c) Dès que la viscosité de 3 points consécutifs est en-dessous d'une tolérance établie (3 %), les données sont enregistrées.

6) La mesure de la contrainte normale est réalisée en parallèle avec celle de la viscosité ; des valeurs mesurées inférieures à 80 Pa présentent une incertitude de $\pm 10 \text{ Pa}$ centrée sur une valeur moyenne ; nous attribuons cette incertitude à la sensibilité du capteur de force (Figure 48). Une attention particulière a été prêtée à ce sujet, afin d'écartier des effets inertiels qui pourraient interférer avec les résultats. Une description plus complète de l'acquisition des contraintes normales sera abordée dans la caractérisation détaillée des formulations.

7) Le point 5 est répété avec deux rampes additionnelles (en descente depuis 100 s^{-1} et à nouveau en montée à partir de $0,01 \text{ s}^{-1}$) afin de vérifier que les fluides ne présentent pas de propriétés thixotropes [80].

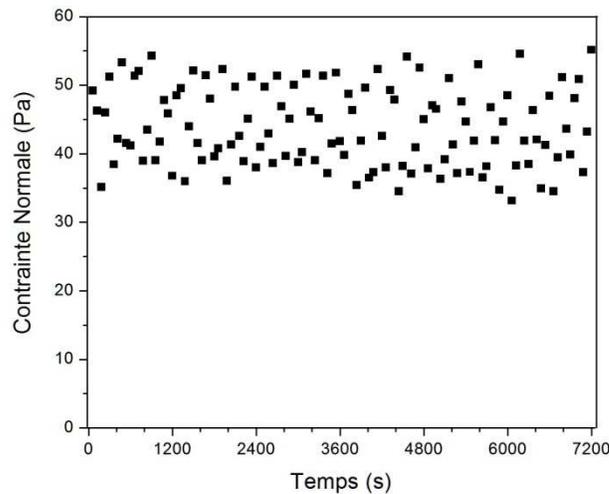


Figure 48 : Suivi des forces normales dans un fluide de Boger à 80 s^{-1} de gradient de vitesse. N_1 en fonction du temps.

Remarques complémentaires :

- Tous les échantillons ont été caractérisés trois fois et suivis pendant 30 jours pour connaître leur stabilité et la répétitivité des mesures. La courbe d'écoulement et la première différence de contraintes normales sont tracées pour établir le comportement de la formulation.

- Les courbes d'écoulement ont été réalisées en imposant la contrainte au lieu du gradient de vitesse et comparées pour vérifier que les résultats sont similaires.

La deuxième partie de la caractérisation consiste ensuite en la détermination des modules de stockage (G') et de perte (G'') ainsi que du temps de relaxation λ du fluide.

Protocole de mesure (régime oscillatoire) :

1) L'échantillon est chargé sur la géométrie cône-plan de diamètre $\phi = 4 \text{ cm}$ et d'angle 2° du rhéomètre AR2000. La température est stabilisée.

2) Un précisaillement durant 30 s est imposé avec un gradient de vitesse de 2000 s^{-1} pour établir l'état initial uniforme.

3) Une déformation est imposée en balayant la gamme – entre 1 % et 1000 % – à deux fréquences différentes (1 Hz et 10 Hz). Ces fréquences ont été choisies en fonction des ordres de grandeur du temps de relaxation que l'on attend de l'ensemble des formulations.

4) Les modules de stockage (G') et de perte (G'') sont tracés en fonction de la déformation pour les deux fréquences f choisies. La série de déformations où les modules sont constants, connue comme la zone de régime linéaire, nous permet de choisir une déformation caractéristique pour réaliser la caractérisation. Toute caractérisation d'un fluide viscoélastique est effectuée dans ce régime linéaire [47].

5) Avec l'application de la déformation choisie (point 4), un balayage en fréquences est réalisé, entre 0,01 Hz et 100 Hz (limite de détection de l'appareil). Le profil de $G'(f)$ et $G''(f)$ est tracé. Le temps de relaxation λ est déterminé, représenté comme l'inverse de la fréquence où les courbes de G' et G'' se sont interceptées.

Enfin, pour vérifier le temps de relaxation du fluide – qui, dans certaines conditions, ne peut pas être déterminé par la méthode précédemment présentée –, les essais de démarrage, de fluage ou de relaxation sont utilisés comme complément. (Cela donne un temps de relaxation légèrement différent, mais toujours dans la gamme de celui donné par l'essai oscillatoire)

Protocole de mesure (viscosité élongationnelle) :

1) L'échantillon est chargé dans une seringue en verre, laquelle est placée dans le pousse-seringue dont le débit est piloté par le logiciel de l'appareil Rheosense. Le diamètre de la seringue est choisi en fonction de la viscosité de cisaillement du produit et du débit maximal à imposer dans la cellule. Cette sélection permet d'optimiser la quantité nécessaire du fluide pour un essai déterminé et permet en même temps de s'assurer du choix d'une série de chutes de pression supportée par la cellule.

2) Nous prenons comme débit maximal à imposer le débit qui produit un taux d'élongation équivalent au gradient de vitesse maximal que nous pouvons obtenir dans la cellule de Hele Shaw (750 s^{-1}), c'est-à-dire $\varepsilon = 325 \text{ s}^{-1}$. Dès que le pousse-seringue est chargé, nous procédons à un balayage en débit. Pour chaque débit, la pression dans les quatre capteurs de la cellule est enregistrée jusqu'à la stationnarité de la mesure ou jusqu'à atteindre la durée maximale de mesure (caractéristique pour un débit quelconque, qui correspond à 50 mesures de viscosité). Si le temps maximal est atteint, il est nécessaire de procéder à une vérification des pressions acquises dans la cellule pour valider une expérience.

3) Pour chaque fluide, les expériences ont été doublées, et ce en commençant toujours par le débit le plus élevé pour descendre jusqu'au débit qui correspond à 5 % de la chute de pression maximale dans la cellule (limite d'incertitude de l'appareil).

4) Avec les pressions enregistrées dans les capteurs, nous procédons à la détermination du taux d'élongation critique et au calcul de la viscosité élongationnelle des échantillons.

3.1.2.e Caractérisation détaillée des formulations choisies

Formulations PAM-CAN :

Le modèle rhéologique choisi pour caractériser la loi de comportement de ces formulations PAM-6000 et PAM-4000 est celui de Carreau [84] :

$$\eta = \frac{\eta_0}{[1 + (k\dot{\gamma})^2]^{\frac{n}{2}}} \quad (3.33)$$

avec η_0 la viscosité à taux de cisaillement nul (en Pa.s), k , la consistance (en s) et $n =$ l'exposant de fluidité tel que nous pourrions calculer la viscosité apparente des fluides en fonction du gradient de vitesse appliqué (Tableau 7).

Formulation	η_0 (Pa.s)	k (s)	n
PMA-CAN-6000	0,492	0,23	0,31
PMA-CAN-4000	0,184	0,242	0,19

Tableau 7 : Tableau des paramètres pour le modèle rhéologique des formulations PAM

Pour valider les résultats de la courbe d'écoulement de la figure 3.6, la première différence de contraintes normales, N_1 est mesurée par paliers de gradient de vitesse constante jusqu'à stationnarité dans une expérience d'« aller-retour » (Figure 49). Cette procédure est similaire à celle qui a été proposée pour mesurer la viscosité des échantillons. En complément, une expérience conduite en « aller-retour » sans polymère (Figure 50) nous montre que les effets inertiels évoqués auparavant, dans l'équation (3.6), sont négligeables par rapport à la magnitude des contraintes normales des solutions des polymères. Ces effets, comprennent un écart d'à peine quelques Pa par rapport à la valeur de N_1 mesurée avec les

fluides PAM à gradient de vitesse faible, et restent négligeables par rapport aux valeurs de N_1 de toutes les formulations à gradient de vitesse élevé (plusieurs centaines de Pa).

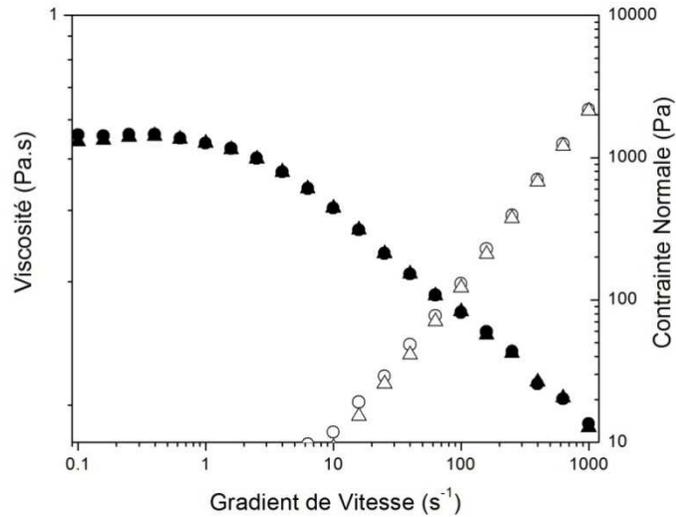


Figure 49 : Suivi du comportement rhéologique de la formulation PAM-6000 en « aller-retour » pour étudier la thixotropie du fluide. η (●) et N_1 (○) (aller) ainsi que η (▲) et N_1 (△) (retour) en fonction de gradient de vitesse.

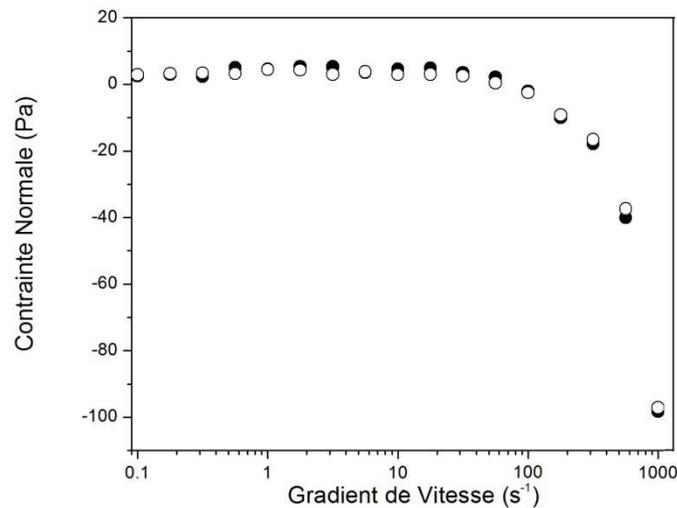


Figure 50 : Mesure des contraintes normales en « aller (●)- retour (○) » pour une solution dépourvue de polymère. N_1 est mesuré en fonction du gradient de vitesse

La stabilité des propriétés rhéologiques a été aussi vérifiée dans le temps, en mesurant la courbe d'écoulement après 1 mois. La Figure 51 nous montre que les différences dans cet intervalle de temps sont négligeables.

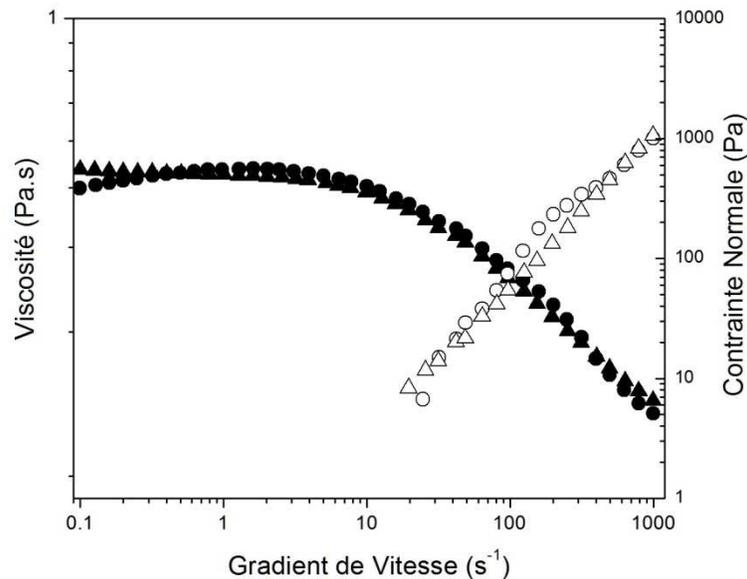


Figure 51 : La viscosité (●) et première différence de contrainte normale (○) pour la formulation PAM-6000 datant de 30 jours se trouvent dans un écart raisonnable par rapport à la viscosité (▲) et première différence de contrainte normale (△) pour la formulation PAM-6000 datant de 1 jour.

Dans les essais en oscillatoire, nous remarquons qu'aux faibles fréquences, le comportement est principalement visqueux (G'' prévaut sur G'), et, à haute fréquence, la réponse est élastique (G' prévaut sur G''). Le temps de relaxation est considéré dans ces graphes comme l'inverse de la fréquence de croisement entre G' et G'' .

Nous estimons ainsi le temps de relaxation du fluide à $2 \cdot 10^{-2}$ s pour le PMA-4000 et $4 \cdot 10^{-2}$ s pour le PMA-6000. L'inertie du rhéomètre ne permet pas de travailler à des fréquences plus élevées que 100 Hz, et nous devons donc nous cantonner à cette limite. (Figure 52)

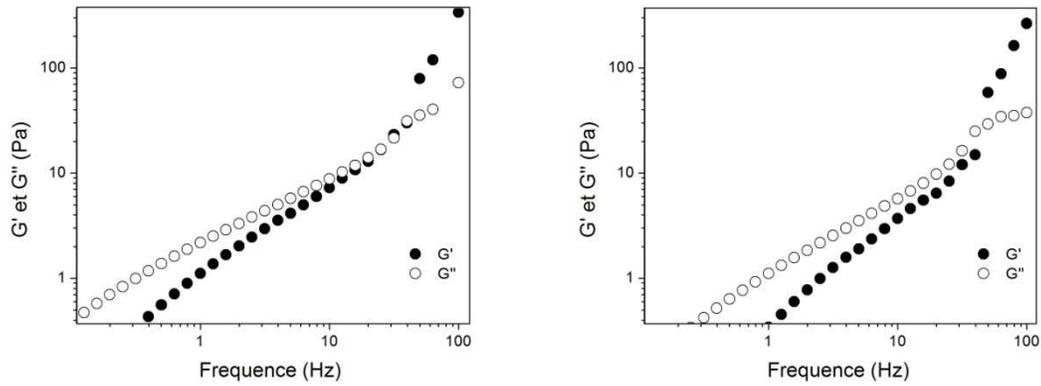


Figure 52: Essais en oscillatoire des formulations PMA-6000 à gauche (G' ● G'' ○) et à droite PMA-4000 (G' ● G'' ○). G' et G'' en fonction de la fréquence pour une déformation de 20%

Formulations PEG-PEO :

Une caractérisation similaire a été réalisée sur plusieurs formulations du système PEG-PEO. D'abord un fluide avec PEO de masse moléculaire $8 \cdot 10^6$ g/mol (Figure 53) et ensuite plusieurs fluides avec PEO de masse moléculaire $4 \cdot 10^6$ g/mol, (entre 500 ppm et 3000 ppm) dont un résumé est présenté dans la Figure 3.24 :

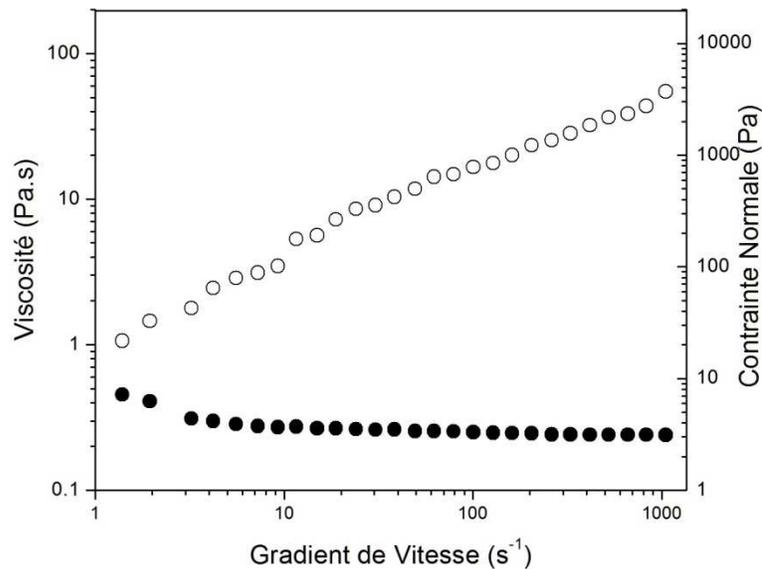


Figure 53 : Courbe d'écoulement de la formulation 50 % PEG et 800 ppm PEO de MW = $8 \cdot 10^6$ g/mol. η (●) et N_1 (○) en fonction de gradient de vitesse.

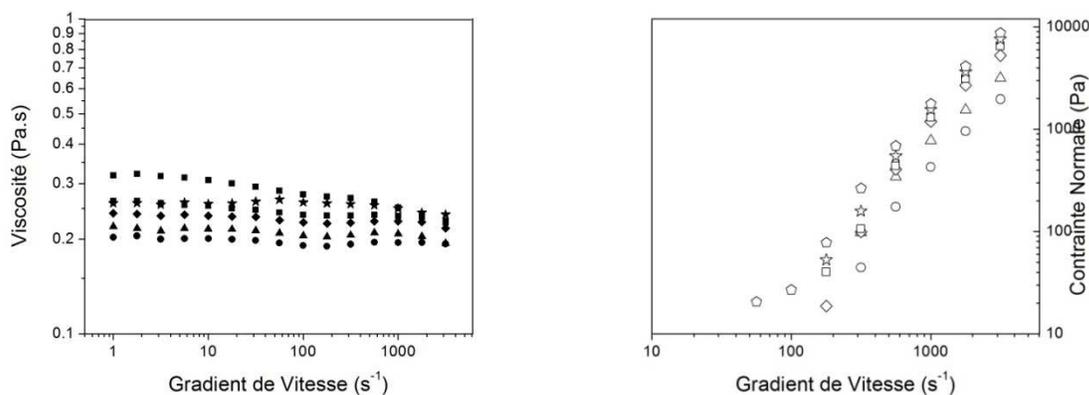


Figure 54 : Formulations 50 % PEG avec différents concentrations de PEO MW = $4 \cdot 10^6$ g/mol. A gauche, la viscosité en fonction du gradient de vitesse pour 3000 ppm (●), 2000 ppm (★), 1500 ppm (■), 1000 ppm (◆) 500 ppm (▲) et 250 ppm (●). A droite N_1 en fonction du gradient de vitesse pour 3000 ppm (△), 2000 ppm (☆), 1500 ppm (□), 1000 ppm (◇) 500 ppm (△) et 250 ppm (○)

Les modules G' et G'' pour des formulations PEG-PEO sectionnées sont montrées dans la Figure 55. Le temps de relaxation des fluides obtenu (corroboré par un essai de relaxation) est de 0,28 s pour le PEG-PEO8-800 ; 0,12 s pour le PEG-PEO4-2000; 0,058 s pour le PEG-PEO4-1000 et 0,02 s pour le PEG-PEO4-500.

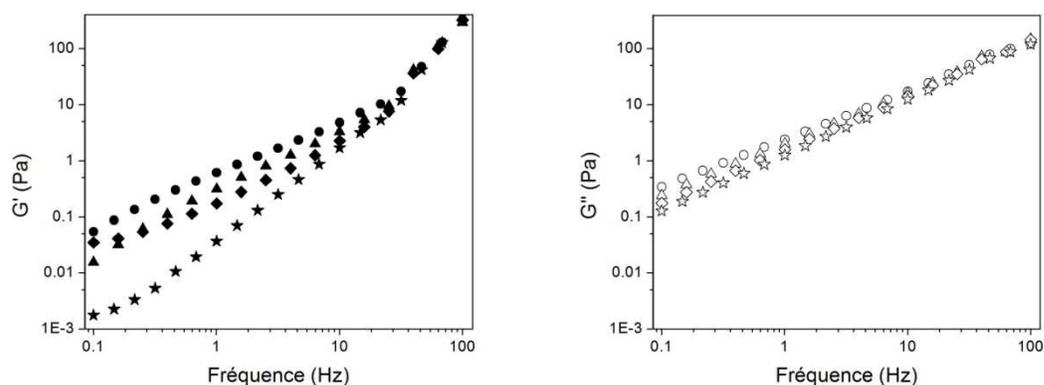


Figure 55 : Essais en oscillatoire des formulations PEG-PEO4. A gauche G' pour : pour 3000 ppm PEO (●), 2000 ppm PEO (▲), 1000 ppm (◆) et 500 ppm (★). A droite, G'' pour : pour 3000 ppm PEO (○), 2000 ppm PEO (△), 1000 ppm (◇) et 500 ppm (☆). G' et G'' en fonction de la fréquence pour une déformation de 20%.

Formulations PIB-PIB :

En comparaison des rhéogrammes obtenus avec les formulations précédentes, nous constatons une viscosité environ 10 fois plus élevée par rapport aux formulations de PAM et des forces normales entre 10 et 100 fois plus grandes (Figure 37). La possibilité d'obtenir une variation plus étendue des paramètres était donc envisageable avec ces formulations de PIB. Cependant, nous verrons qu'il n'y a pas été possible de faire des expériences de déplacement avec ce fluide.

Viscosité élongationnelle des formulations PAM et PEG-PEO

Dans la cellule élongationnelle, nous avons testé initialement le fluide newtonien de référence (Canadou), et deux fluides modèles (PAM6000 et PEG-PEO8). Si on représente la chute de pression en fonction du taux d'élongation, nous attendons des chutes de pression linéaires quand les fluides sont dans un régime de fluide newtonien (là où les contraintes normales ne sont pas développées). Nous constatons ainsi que, pour le fluide newtonien, la chute de pression est linéaire dans toute la série de taux d'élongation. Dans les deux autres formulations, la chute de pression augmente de façon non linéaire (Figure 56).

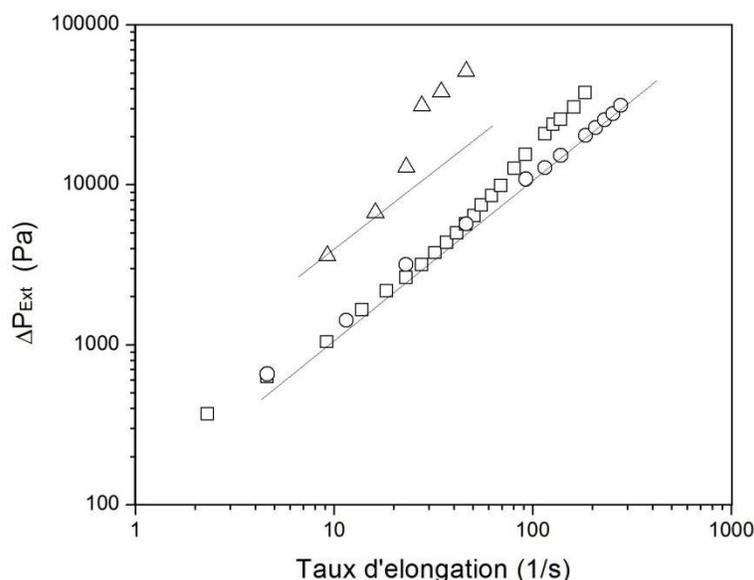


Figure 56 : Chute de pression dans la cellule d'élongation plane en fonction du gradient de vitesse pour le Canadou (○), PAM6000 (□) et PEG-PEO8-800 (△).

Pour le système PAM-6000, la non-linéarité commence à être évidente pour des taux d'élongation au-delà de 30 s^{-1} , ce qui est en accord avec l'apparition des contraintes normales en cisaillement simple, car ce taux d'élongation est comparable à un gradient de vitesse de 60 s^{-1} (où les forces normales commencent à se développer). Dans le cas du système PEG-PEO, il ne semble pas qu'un régime linéaire s'établisse et la chute de pression est plus élevée que celle du PAM6000 ou du Canadou au même taux d'élongation. Ceci peut être expliqué en fonction de l'apparition des contraintes normales, car cette formulation développe des contraintes normales à partir de gradients de vitesse très faibles.

Nous avons ensuite calculé la viscosité élongationnelle et le nombre de Trouton pour des formulations viscoélastiques sélectionnées (Figure 57). Nous pouvons constater, à la différence des observations de Walters et Jones [34], que la viscosité élongationnelle pour la formulation PAM-6000 n'augmente pas de façon significative avec le taux d'élongation alors que dans la même gamme de gradients de vitesses, les contraintes normales augmentent d'un ordre de grandeur. En revanche, pour les formulations PEG-PEO, la valeur de viscosité élongationnelle augmente avec la concentration du PEO (cas des formulations PEO4) et avec la masse moléculaire du PEO.

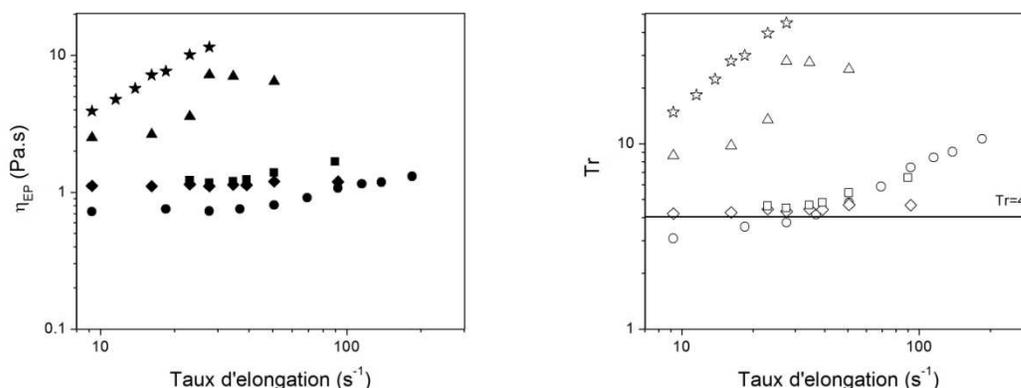


Figure 57 : A gauche, viscosité élongationnelle en fonction du taux d'élongation pour le PAM6000 (●), PEG-PEO8-800 (▲), PEG-PEO4-250 (◆), PEG-PEO4-500 (■) et PEG-PEO4-2000 (★). A droite, le nombre de Trouton en fonction du taux d'élongation pour le PAM6000 (○), PEG-PEO8-800 (△), PEG-PEO4-250 (◇), PEG-PEO4-500 (□) et PEG-PEO4-2000 (☆).

Tension interfaciales des formulations :

La tension interfaciale entre les différentes formulations et l'huile silicone a été. Les mesures ont été effectuées avec un tensiomètre à plaque TK100 KRUSS, en utilisant un temps

d'équilibration jusqu'à obtenir une valeur à peu près constante (en fait on observe une chute continue sur la durée de nos mesures, voir un exemple dans la Figure 58). Nous constatons avec les résultats présentés dans le Tableau 8, que l'introduction de PMA et PEG-PEO a tendance à diminuer légèrement la tension interfaciale (24 % de variation entre le système newtonien et PMA-6000).

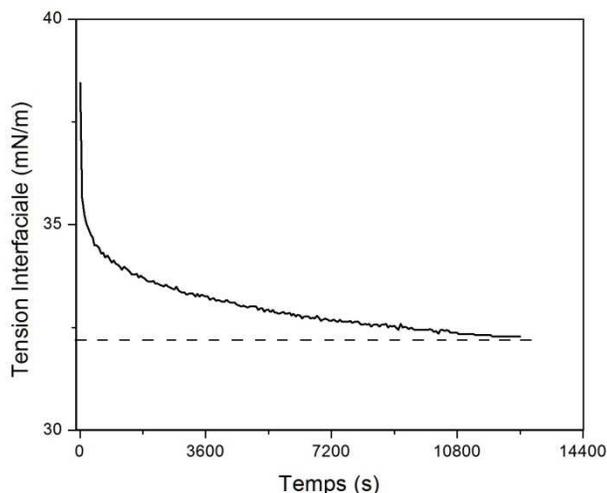


Figure 58 : Tension interfaciale en fonction du temps pour la formulation PAM-4000. La valeur retenue pour la tension est associée au niveau du « plateau » (ligne pointillée).

Deux formulations de faible tension interfaciale ont été préparées en ajoutant un tensioactif dans la phase huile (SPAN 80) de façon à ne pas affecter les viscosités des formulations originales.

Système	Tension interfaciale (mN/m)	Temps Équilibration (min)
Canadou/HS	34,5	120
PMA-4000/HS	32,3	210
PMA-6000/HS	26,1	360
PEG-PEO8-800/HS	38,2	420
Canadou/HS+ Span80	3,1	30
PMA-6000/HS+ Span 80	2,8	35

Tableau 8 : Tension interfaciale des formulations choisies

3.1.2.f Résumé des propriétés pour les formulations utilisées dans les expériences de déplacement :

En conclusion de ce chapitre nous présentons un résumé des propriétés pour les fluides décrits en détail ci-dessus (Tableau 9). Les modèles utilisés pour représenter la viscosité des formulations PAM et Xanthane ont été mentionnés auparavant, la viscosité des formulations PEG-PEO est considérée constante. La viscosité élongationnelle des formulations PAM-6000, PEG-PEO4-250 et PEG-PEO4-500 est considérée constante mais celle des formulations PEG-PEO4-2000 et PEG-PEO8-800 est représentée par une loi de puissance.

Formulation	$\eta (\dot{\gamma})$ [Pa.s]	$N_1 (\dot{\gamma})$ [Pa]	$\eta_{EP} (\dot{\epsilon})$ [Pa.s]	σ [mN/m]*	λ [s]
PAM-6000	$\frac{0,492}{(1+0,0529\dot{\gamma}^2)^{0,155}}$	$0,21\dot{\gamma}^{1,272}$	0,9	26,1	0,04
PAM-4000	$\frac{0,184}{(1+0,0586\dot{\gamma}^2)^{0,095}}$	$0,06\dot{\gamma}^{1,3735}$	***	32,3	0,02
PEG-PEO8-800	0,26	$23,42\dot{\gamma}^{0,738}$	$0,117\dot{\epsilon}^{0,527}$	38,2	0,28
PEG-PEO4-3000	0,29	$0,036\dot{\gamma}^{1,687}$	***	**	***
PEG-PEO4-2000	0,26	$1,083\dot{\gamma}^{1,193}$	$0,183\dot{\epsilon}^{0,539}$	**	0,12
PEG-PEO4-1000	0,24	$0,0012\dot{\gamma}^{1,945}$	***	**	0,058
PEG-PEO4-500	0,22	$0,026\dot{\gamma}^{1,4694}$	1,2	**	0,02

* Tension interfaciale avec l'huile de silicone

** Non mesurée

** Non déterminé

Tableau 9 : Résumé des propriétés des fluides à utiliser dans les expériences d'écoulement

3.2 Géométrie d'expérimentation

Pour aborder d'un point de vue fondamental l'influence de la viscoélasticité sur la récupération assistée du pétrole, nous avons étudié des systèmes dans lesquels une phase aqueuse (viscoélastique) déplace l'huile initialement contenue dans des géométries simples.

La géométrie la plus simple qui permet une telle approche est une géométrie de type Hele-Shaw ; ce système bien connu a été abondamment utilisé dans l'étude du phénomène de digitation visqueuse [9] et il présente plusieurs avantages pour atteindre notre objectif, entre autres :

- Il permet a priori de représenter l'écoulement en milieux poreux par un écoulement en 2D.
- En choisissant un matériau constitutif de la cellule transparente tel que le verre, le phénomène est visualisable sur toute la longueur de la cellule.
- Grâce à un dimensionnement approprié, la géométrie permet d'étudier une gamme étendue de paramètres et notamment de nombres capillaires.

3.2.1 La géométrie de Hele-Shaw

La cellule de Hele-Shaw (Figure 59) est une géométrie rectangulaire dotée d'un grand rapport d'aspect largeur-épaisseur (R) qui représente un système quasi bidimensionnel. Cette cellule est généralement constituée de deux plaques séparées par un intervalle dont l'épaisseur b est petite par rapport à la largeur W de la cellule.

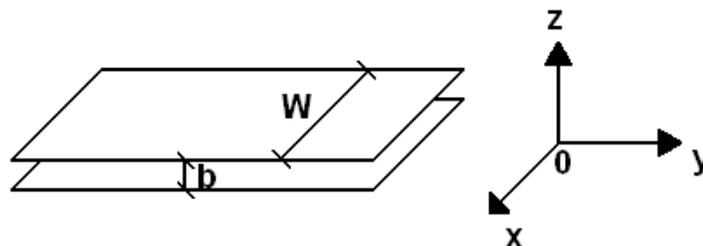


Figure 59 : Schéma de la Cellule de Hele Shaw

Dans une seconde phase, pour nous rapprocher des conditions réelles d'écoulement dans des pores, nous avons réalisé des essais dans des microcanaux (quelques centaines de micromètres), avec un écoulement principal connecté à trois dérives latérales de différentes tailles (l_1, l_2, l_3) celles-ci ont pour objectif de représenter des *dead end pores* [46], c'est-à-dire des dérives le long d'un canal droit qui se finissent en impasse. Un schéma de cette géométrie est montré dans la Figure 60.

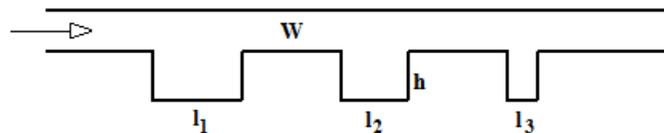


Figure 60 : Schéma de géométrie avec des microcanaux.

Une dernière approche nous a conduit à mettre en place des restrictions dans la géométrie de Hele Shaw originale pour représenter approximativement les resserrements et élargissements que l'on trouve partout dans un milieu poreux. Les deux restrictions choisies sont : une restriction rectangulaire pour simuler une contraction brusque de la section d'écoulement et une contraction-expansion hyperbolique (Figure 61) pour simuler un changement graduel de la section d'écoulement.

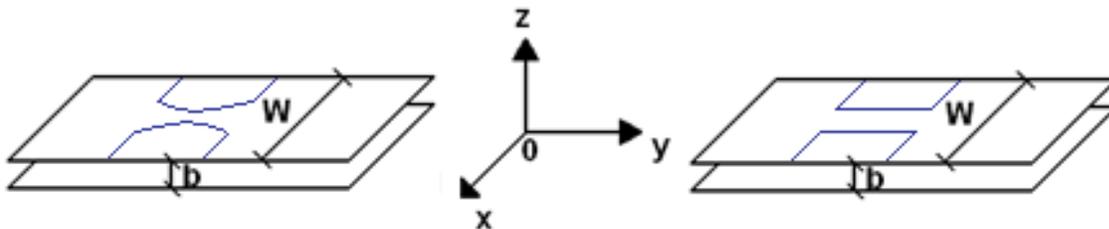


Figure 61 : Schéma des restrictions dans la cellule. À gauche restriction hyperbolique, à droite restriction rectangulaire

Nous allons étudier le déplacement d'un fluide newtonien (dans notre cas de l'huile de silicone) par un autre fluide newtonien ou viscoélastique, obtenu à partir des formulations de la section 3.1. Dans la suite, nous abordons les aspects de modélisation de ces écoulements de façon à identifier les paramètres permettant l'interprétation des résultats.

3.2.1.a Profil de vitesse dans la géométrie de Hele-Shaw

Commençons par établir le profil de vitesse dans une géométrie Hele Shaw avec un rapport d'aspect $R = W / b$ infini où s'écoule un fluide newtonien ; l'écoulement dans cette géométrie est régi par les équations de Navier-Stokes (3.34) et l'équation de continuité à densité constante (3.35) :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\vec{\nabla} P + \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \rho g \quad (3.34)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (3.35)$$

En écoulement stationnaire, la partie gauche de l'équation (3.34) disparaît, avec $-\vec{\nabla} P + \rho g = -\Delta P / L$. Ce qui nous donne :

$$\frac{\Delta P}{L} = \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} \quad (3.36)$$

le mouvement a lieu uniquement dans la direction y avec une contrainte de cisaillement principale $\tau_{zy} = \vec{\nabla}^2 \vec{v} = d^2 v_y / dz^2$. L'intégration de cette expression pour obtenir la vitesse v_z génère deux constantes C_1 et C_2 :

$$v_y = \frac{\Delta P}{2\eta L} z^2 + C_1 z + C_2 \quad (3.37)$$

La condition de non-glissement aux parois ($v_y = 0$ si $z = \pm b/2$) nous permet d'aboutir à la distribution de Poiseuille :

$$v_y(z) = -\frac{\Delta P}{2\eta L} \frac{b^2}{4} \left[1 - \left(\frac{2z}{b} \right)^2 \right] \quad (3.38)$$

Ceci représente le profil de vitesse dans le plan yz pour une cellule de Hele Shaw de rapport d'aspect infini. L'intégration du champ de vitesse entre 0 et b nous donne une vitesse moyenne :

$$\bar{V} = -\frac{b^2}{12\eta} \frac{\Delta P}{L} \quad (3.39)$$

Cette équation est équivalente à la loi de Darcy à travers la cellule, qui relie la vitesse moyenne \bar{V} de l'écoulement au gradient de pression $-\vec{\nabla} P$ avec $Re \ll 1$.

Si le rapport d'aspect est fini, la vitesse est également une fonction de x telle que $v_y = v_y^*(z) + v_y^{**}(x, z)$. Le premier terme correspond à la solution de l'équation (3.38). Le deuxième prend en compte les parois situées à $x = \pm W/2$ et satisfait l'équation de Laplace pour la vitesse telle que $\nabla^2 v_y^{**}(x, z) = 0$ avec deux conditions de bord, à savoir :

$$v_y^{**}(x, \pm b/2) = 0 \quad (3.40)$$

$$v_y^{**}(\pm W/2, z) = -\frac{\Delta P}{2\eta L} \frac{b^2}{4} \left[1 - \left(\frac{2z}{b} \right)^2 \right] \quad (3.41)$$

Une décomposition de Fourier pour v_y avec les conditions de bord indiquées ci-dessus conduit à la distribution de vitesse suivante [85] :

$$v_y(x, z) = -\frac{\Delta P}{8\eta L} b^2 \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \frac{32}{(2n-1)^3 \pi^3} \frac{\cosh(2n-1)\pi(z/b)}{\cosh((2n-1)\pi/2(W/b))} \cos\left((2n-1)\pi \frac{x}{b} \right) + \left[1 - \left(\frac{2z}{b} \right)^2 \right] \right\} \quad (3.42)$$

Ce champ de vitesse correspond à celui d'un fluide newtonien qui s'écoule par l'effet d'un gradient de pression dans une cellule de Hele Shaw avec un rapport d'aspect fini et nous servira de point de référence pour l'analyse de nos expériences.

Gradient de vitesse dans la cellule de Hele Shaw

Il est important d'estimer le gradient de vitesse auquel seront soumises les différentes phases pendant l'écoulement dans la cellule. Cette grandeur, qui est variable dans la largeur et dans l'épaisseur de la cellule, peut être quantifiée par un gradient de vitesse moyen et un gradient de vitesse maximum s'exerçant à la paroi de la cellule.

en dérivant le champ de vitesse de Poiseuille, on obtient le gradient de vitesse :

$$\dot{\gamma} = \frac{dV_y}{dz} = (b-2z) \frac{\Delta P}{2\eta L} \quad (3.43)$$

En moyennant l'équation (3.43) entre 0 et b , on obtient un **gradient de vitesse moyen** $\bar{\dot{\gamma}}$, dans l'épaisseur :

$$\bar{\dot{\gamma}} = \frac{3V}{b} \quad (3.44)$$

ce gradient de vitesse moyen permet de caractériser l'écoulement d'une façon globale. Remarquons que le gradient de vitesse est maximum à la paroi $\dot{\gamma}_w = \Delta P b / 2\eta L = \tau_w / \eta$ et nul dans le plan de symétrie $z = b / 2$ de la cellule (les vitesses v_y étant maximales dans ce plan).

Un équilibre des forces nous amène à la relation suivante entre le débit Q et la chute de pression dans la cellule :

$$\frac{b\Delta P}{2L} = \eta \frac{6Q}{Wb^2} \quad (3.45)$$

Ce qui nous permet de réécrire le gradient de vitesse a la paroi en fonction du débit :

$$\dot{\gamma}_w = \left(\frac{6Q}{Wb^2} \right) \quad (3.46)$$

Cependant, comme le rapport d'aspect R de notre cellule est fini, la contrainte tangentielle réelle aux parois est :

$$\tau_w = \frac{\Delta P(Wb)}{(2WL + 2bL)} \quad (3.47)$$

Et une correction a l'équation (3.39) doit être apportée [86] :

$$\dot{\gamma}_w = \left(\frac{6Q}{Wb^2} \right) \left(1 + \frac{b}{W} \right) (f^*) \quad (3.48)$$

La constante f^* est un facteur dépendant du rapport d'aspect R et atteint la valeur 1 quand R est infini, mais dans notre cas, cette constante géométrique f^* est obtenue numériquement à partir de la série suivante [86] :

$$f^*(R) = \left[\left(1 + \frac{1}{R} \right)^2 \left(1 - \frac{192}{\pi^5 R} \sum_{i=1,3,5}^{\infty} \frac{\tanh(\pi i R / 2)}{i^5} \right) \right]^{-1} \quad (3.49)$$

Les équations (3.44) et (3.48) seront utilisées par la suite pour calculer le gradient de vitesse moyen et maximal dans la cellule. Cependant, dans notre cas cette correction apporte une différence faible de 4% entre le $\dot{\gamma}_w$ « idéal » et le $\dot{\gamma}_w$ avec des parois a distance finie.

Longueur d'entrée

Une précaution qui doit être prise en compte, concerne le calcul de la longueur d'entrée (l_e) qui représente la distance parcourue par un fluide depuis l'entrée de la cellule pour atteindre un profil stationnaire [5]. Toutes les observations doivent être effectuées au-delà de cette longueur d'entrée qui est représentée dans la Figure 62.

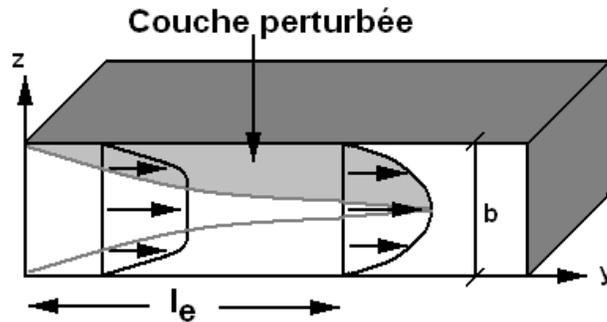


Figure 62 : La longueur d'entrée l_e est située dans l'endroit où la couche perturbée par les effets d'entrée atteint la totalité de l'épaisseur b du canal

Quand le fluide pénètre dans la cellule, la couche de fluide « perturbée » augmente au fur et à mesure que le fluide s'écoule dans la géométrie de sorte qu'on retrouve un profil de vitesse complètement développé à une certaine distance à partir de l'entrée. Le gradient de vitesse est atténué par la diffusion visqueuse [5] en même temps que l'épaisseur de cette couche « perturbée » augmente selon :

$$\delta = \sqrt{\frac{\eta t}{\rho}} \quad (3.50)$$

Le temps caractéristique peut être calculé si l'on suppose que juste au delà de la couche perturbée, le fluide s'écoule à une vitesse v ; ainsi, sur une distance x à partir de l'entrée, l'équation (3.50) devient :

$$\delta_{(x)} = \sqrt{\frac{\eta x}{\rho v}} \quad (3.51)$$

La longueur d'entrée est finalement atteinte quand la perturbation est constante sur toute l'épaisseur, c'est-à-dire quand les deux couches limites se joignent et $\delta_{(x)} = b/2$ tel que $x = l_e$:

$$l_e = \sqrt{\text{Re}} \cdot \frac{b}{2} \quad (3.52)$$

Cette estimation est valable pour un fluide newtonien, mais nous permet une bonne estimation pour les expériences d'écoulement dans la cellule avec des fluides au comportement plus complexe.

3.2.2 Conception des géométries d'expérimentation:

La géométrie de Hele Shaw introduite dans le chapitre 1 a été choisie pour remplir une condition essentielle, à savoir le besoin d'un système simple où nous pouvons suivre le déplacement d'un fluide par un autre fluide. Les caractéristiques spécifiques considérées dans un premier temps ont répondu aux besoins particuliers tels que la visualisation et les conditions d'écoulement prévues ; cependant, en raison des difficultés apparues au cours des expériences, le montage initial a évolué.

Nous avons choisi le verre comme matériau pour fabriquer la cellule du fait de ses propriétés optiques, car la visualisation est simple – avec une caméra CCD et une source de lumière conventionnelle – et aussi du fait de ses propriétés physiques et chimiques ; le verre est en effet résistant aux formulations développées, doté d'une surface mouillable aux produits aqueux – qui peut facilement être traitée pour devenir mouillable à l'huile si besoin est –. Il est par ailleurs facile à nettoyer et ses propriétés interfaciales sont ainsi reproductibles.

La dimension critique que nous avons imposée est le rapport d'aspect R de la cellule – établi à $R=10$ – qui nous permet de nous maintenir dans un cas où nous pouvons considérer une cellule avec des parois finies, mais dont le gradient de vitesse est considérablement plus grand dans l'épaisseur que dans la largeur de la cellule.

3.2.2.a Cellule principale :

Le premier prototype de la cellule, fabriqué dans l'atelier de l'IFPEN en collant 4 plaques de verre, est pourvu de connections cylindriques entrée-sortie d'un diamètre de 2 mm facilement adaptables aux tuyaux qui introduisent les fluides. Les dimensions de la cellule sont les suivantes : $L=400$ mm x $W=20$ mm x $b=2$ mm, ce qui donne $R = 10$. La longueur

L choisie est telle que pour les débits et les pressions imposés la longueur d'entrée est petite par rapport à L.

Dans ce premier prototype (Figure 63 à gauche), nous nous sommes assurés que la colle utilisée ne soit pas en contact avec les fluides de façon de ne pas modifier les conditions de mouillage. Cependant, avec le choix d'une cellule scellée, le nettoyage s'est avéré être une difficulté majeure, cela nous a amenée à concevoir des améliorations.



Figure 63 : Évolution de la cellule d'expérimentation. De gauche à droite : premier prototype conçu complètement en verre, complètement fermé, ensuite cellule en verre démontable et finalement cellule démontable en verre insérée dans une armature d'acier inoxydable.

Une deuxième cellule démontable (Figure 63 au centre) avec des dimensions internes identiques a été conçue à la suite des difficultés évoquées pour nettoyer le premier prototype. Les connexions pour le remplissage ont été déplacées pour faciliter un éventuel écoulement horizontal. Cette cellule s'est avérée efficace pour de faibles débits. Néanmoins, pour des débits élevés et pour des fluides visqueux, elle n'est pas utilisable car des fuites se produisent. Par ailleurs, sa fragilité la rend difficile à manier.

Un dernier modèle a été conçu avec une armature plus robuste (Figure 63 a droite), en acier inoxydable, comprenant des sections interchangeables en aluminium anodisé afin de faciliter l'intégration des modifications de géométrie (restrictions) ; les parois frontales restent en verre pour la visualisation. L'introduction de parois en aluminium anodisé, qui est « mouillé » par les fluides, n'introduit pas de perturbations dans le système : l'interface initiale au repos semble la même qu'on trouve avec le premier prototype.

3.2.2.b Restrictions :

Dans le dernier modèle de cellule, on a introduit deux types de restrictions : contraction puis expansion abrupte avec des canaux rectangulaires de tailles différentes, et expansion graduelle formée d'un canal de largeur variant selon une hyperbole. Un résumé des caractéristiques des restrictions réalisées est présenté dans le Tableau 10.

Restriction	RC1	RC2	RC3	RC4	RH1	RH2
Type	Rectangle	Rectangle	Rectangle	Rectangle	Hyperbole	Hyperbole
Relation Restriction/Canal Principal	1/3	1/3	1/4	1/4	1/3	1/4
Longueur de la restriction (cm)	2	4	2	4	4	4

Tableau 10 : Caractéristiques géométriques des restrictions pour la cellule de Hele Shaw

Dans la Figure 64 nous pouvons voir certaines de ces restrictions. Finalement dans le cadre de ce travail nous n'avons pas réalisé des expériences qu'avec les géométries RC2 et RH1.



Figure 64 : Restrictions intégrées dans la cellule de Hele Shaw (Expansion-contraction brusque et graduelle). De haut en bas : RH1, RH2, RC2 et RC1

3.2.2.c Microfluidique

Ces géométries, ou microsystèmes ont été construits en PDMS (PolydiméthylSiloxane), élastomère transparent selon une technique de prototypage rapide bien maîtrisée au laboratoire de microfluidique de l'IFPEN. Cette technique permet de contrôler des écoulements avec un confinement des fluides à l'échelle de la dizaine de micromètres.

Pour fabriquer de tels microsystèmes, nous pouvons distinguer trois étapes que nous reprenons rapidement ci-dessous. Pour plus d'informations sur les bases de cette microfabrication, on pourra consulter [87].

Une première étape consiste en le dessin assisté par logiciel des canaux du microsystème pour la réalisation d'une impression opaque aux UV sur film plastique transparent. Les motifs des canaux apparaissent en "à plat" en transparence sur le film imprimé. Ce dernier constitue le "masque" en deux dimensions utilisé dans la deuxième étape dans un procédé de photogravure, ou photolithographie permettant de passer à un moule en trois dimensions avec des structures d'épaisseur uniforme. Il s'agit ici d'employer une résine photosensible (SU8) dont on dépose une couche d'épaisseur uniforme contrôlée sur un wafer de silicium (substrat parfaitement lisse et plat) et ce grâce à un procédé de spin-coating (ou "dépôt à la tournette"). Le dépôt de résine est exposé aux UV au travers du masque et à la suite de chauffages et d'un traitement de dissolution dans un solvant, seule la résine exposée et réticulée persiste sur le wafer. Le moule présentant les motifs des canaux en relief est employé dans la dernière étape pour imprimer le PDMS. Le PDMS liquide mélangé avec une part d'agent réticulant est versé sur le moule ; après réticulation de celui-ci par chauffage, on peut le peler de son support dont il a pris l'empreinte.

Le microsystème est achevé en poinçonnant des trous dans le morceau de PDMS imprimé pour l'entrée et la sortie des fluides et finalement les canaux sont achevés en y accolant une surface plane. La fermeture est ici faite par mise au contact avec une autre surface de PDMS partiellement réticulée ; une bonne adhésion est obtenue à la fin de la réticulation.

Un détail du microsystème réalisé est présenté dans la Figure 65. Les dimensions de la zone d'écoulement d'intérêt sont les suivantes : largeur du canal principal 100 μm , longueur totale du canal 20000 μm , épaisseur du canal 100 μm avec trois "pores" de longueurs 200 μm , 100 μm et 50 μm respectivement (et de largeur globale constatée égale à 175 μm).

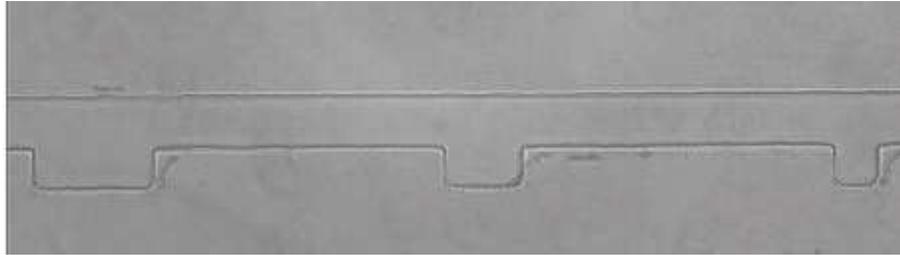


Figure 65 : Détail, observé sous microscope optique du microsysteme présentant trois "pores" sur le canal d'écoulement. La largeur du canal principal est de 100 μm .

3.2.3 Mise en œuvre de l'écoulement

Le dispositif expérimental (cf. Figure 66) comprend trois sections. La première est le dispositif qui induit l'écoulement du fluide qui circulera dans la cellule. Puis, nous avons la cellule proprement dite, dans laquelle un fluide déplace un autre fluide moins visqueux contenu auparavant dans la cellule selon une direction d'écoulement principale ascendante. Nous trouvons enfin le dispositif d'acquisition des images – dans notre cas, une caméra CDD – qui nous permet d'étudier les caractéristiques de l'écoulement.

Comme l'objectif des expériences est de voir si la viscoélasticité modifie l'écoulement des deux fluides dans la cellule, dans chaque cas nous avons réalisé une comparaison entre un fluide déplaçant newtonien et un fluide déplaçant viscoélastique de viscosité analogue. L'évolution de l'interface entre les deux fluides est alors filmée grâce à une caméra dont la vitesse d'acquisition maximale est de 50 images/seconde.

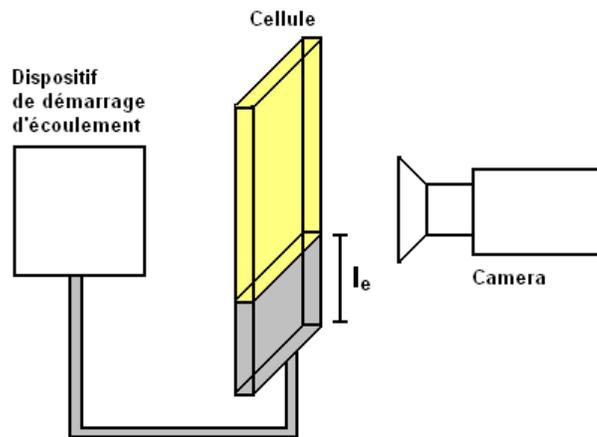


Figure 66 : Schéma de mise en place des expériences d'écoulement.

Le « fluide déplaçant » est mis en mouvement soit avec un gradient de pression imposé, soit avec un débit imposé.

Le « fluide déplacé » est une huile silicone newtonienne avec deux viscosités possibles ($\eta = 100 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ et $\eta = 5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$) choisies selon la viscosité du fluide déplaçant.

3.2.3.a Écoulement à gradient de pression imposé :

La conception initiale de la cellule prévoyait une alimentation à pression imposée. Deux procédures ont été mises en place pour obtenir deux gammes de chutes de pression, la première entre 0,01 et 0,05 bar et la deuxième entre 0,1 et 1 bar (Figure 67).

- Le gradient de pression faible est obtenu en exploitant le poids de la colonne du liquide ; nous avons mis en place ce gradient avec un réservoir de grande surface (S_r) pour assurer un gradient de pression constant dans la cellule tel que $S_r \gg Wb$. La distance h est ajustée pour obtenir la chute de pression désirée (comme une fonction de la colonne hydrostatique) et la longueur d'entrée l_e est estimée en fonction d'une vitesse moyenne caractéristique de l'écoulement. Nous avons choisi de calculer une vitesse à partir du déplacement de l'interface entre le fluide aqueux et l'huile, désignée v_f , vitesse du front de l'interface, car le front en question, sans représenter directement le champ de vitesse dans l'un ou l'autre des fluides, peut au moins nous apporter des informations sur la stationnarité de l'écoulement.

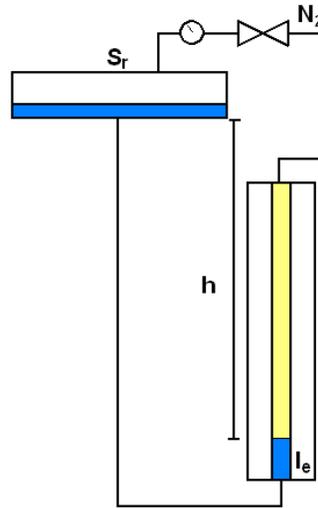


Figure 67 : Schéma du dispositif de démarrage de l'écoulement en régime de pression imposé (par le poids d'une colonne de liquide de hauteur h ou par une ligne d'azote)

- Pour des gradients de pression plus importants, nous nous sommes servis d'une ligne d'azote connectée au réservoir pour induire des gradients de pression entre 0,1 bar et 1 bar mesurés avec un manomètre.

Le principal avantage d'une telle procédure est la facilité de mise en œuvre. En revanche, du fait de la variation de hauteur de l'interface dans la cellule et des volumes respectifs des deux phases présentes au cours du temps, l'écoulement n'est pas stationnaire et donc son analyse est particulièrement compliquée. Ainsi, dans la Figure 68, la vitesse du front (v_f) est présentée pour plusieurs systèmes à pression imposée en fonction de h , qui est la distance mesurée à partir de l'interface plate initiale.

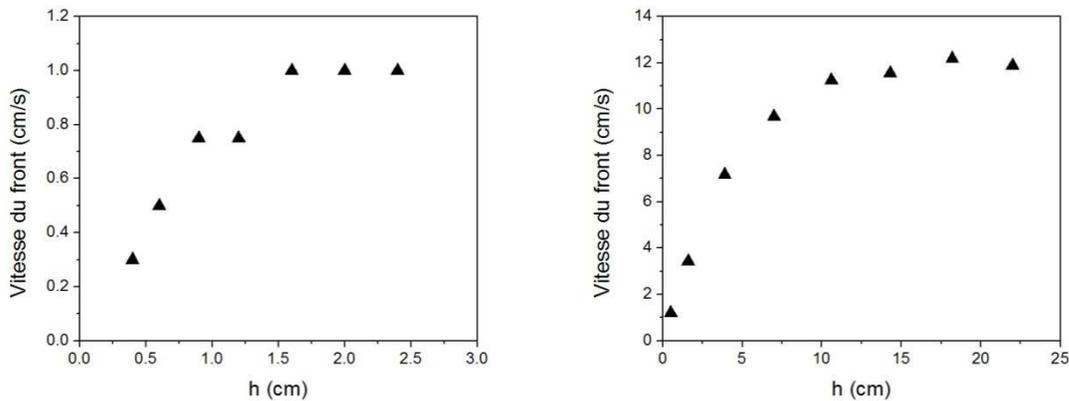


Figure 68 : Écoulement dans la cellule à pression imposée. La vitesse du front est représentée en fonction de l'hauteur dans la cellule. À gauche P = bar 0,1 bar, à droite P = 0,64.

Nous pouvons constater que la distance nécessaire pour atteindre une valeur de v_f constante augmente avec la pression imposée est atteint des valeurs prohibitives aux pressions élevées (plus de la moitié de la cellule). De cette analyse, nous pouvons cependant établir une relation entre la pression imposée et v_f en état stationnaire, résumée dans le Tableau 11 :

Méthode	Pression/Hauteur	h^* (cm)	V_f (cm/s)
Poids Colonne	20 cm	2	1
Poids Colonne	50 cm	15	8
Azote	0,64 bar	22	12
Azote	0,5 bar	16	8
Azote	0,1 bar	5	1

Tableau 11 : Hauteur approximative de stabilisation des écoulements dans la cellule à débit et pression imposée

3.2.3.b Écoulement à débit imposé :

Les expériences à débit constant ont été mises en place avec un pousse-seringue – de marque KD scientifique et de modèle KDS220 – de 10 canaux qui permet d'imposer des débits maximaux de 12 ml/s, équivalant à une vitesse moyenne de 30 cm/s dans la cellule, avec des seringues de 50 ml et de 100 ml. (Figure 69). Dans la cellule, le gradient de vitesse peut atteindre une large gamme de valeurs (entre $1s^{-1}$ et plusieurs centaines)



Figure 69 : Pousse - Seringue KDS220

Un avantage primordial de ce dispositif est qu'il permet une stabilisation très rapide de la vitesse du front par rapport aux expériences à pression imposée, même pour des vitesses élevées. Finalement on peut estimer grossièrement la vitesse du front imposée à partir de la relation suivante :

$$v_{fi} = \frac{Q}{Wb} \quad (3.53)$$

Nous avons constaté, dans une large gamme de débits imposés, que le v_f calculé correspond à la v_{fi} (ce qui montre que notre dispositif est fiable) et que la v_{fi} est atteinte rapidement dans la cellule (Figure 70). Cela permet effectuer des expériences de déplacement dans une large gamme des gradients de vitesse. Une étude plus détaillée de l'évolution de la vitesse de l'interface dans le régime transitoire est proposé dans le chapitre 4.

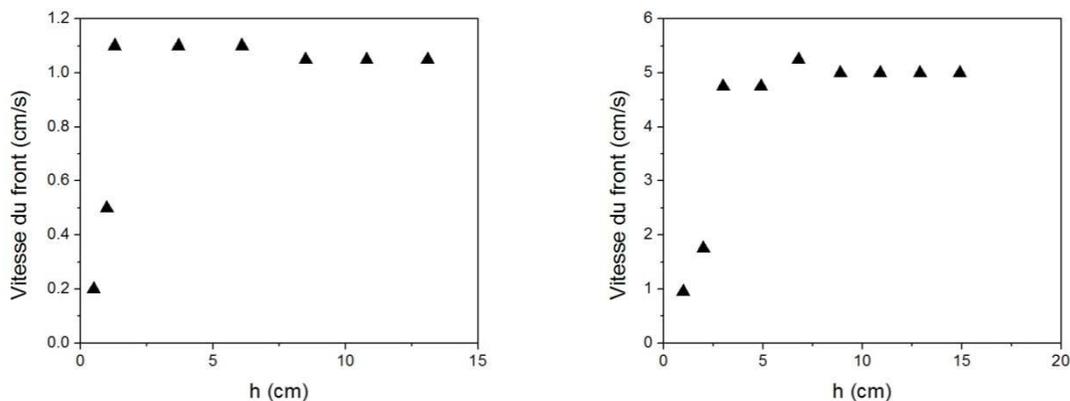


Figure 70 : Écoulement dans la cellule à débit imposé. Vitesse du front en fonction de la hauteur dans la cellule pour deux débits imposés, à gauche $Q=0,4 \text{ cm}^3/\text{s}$ et à droite $Q= 2 \text{ cm}^3/\text{s}$.

Dans le Tableau 12 on indique le gradient de vitesse moyen et le gradient de vitesse à la paroi pour les débits imposés avec la pousse-seringue:

Débit (cm ³ /s)	v_f (cm/s)	Seringues	$\bar{\dot{\gamma}}$ (s ⁻¹)	$\dot{\gamma}_W$ (s ⁻¹)
0,04	0,1	1x50ml	1,5	2,88
0,2	0,5	1x50ml	7,5	14,4
0,4	1	1x50ml	15	28,8
1,2	3	1x50ml	45	86,4
2	5	1x100ml	75	144
3,2	8	2x100ml	120	230,4
4	10	2x100ml	150	288
6	15	4x100ml	225	432
8	20	4x100ml	300	576
12	30	6x100ml	450	864

Tableau 12 : Gradients de vitesse moyen et maximum pour les différents débits imposés

3.2.3.c Expériences de déplacement :

Les expériences préliminaires nous fournissent un certain nombre d'informations :

- A pression imposée ou à débit imposé, le déplacement pour les différents types de fluides atteint une vitesse v_f constante au bout d'une certaine longueur dans la cellule. Cependant, cette longueur est (beaucoup) plus longue pour les expériences à pression imposée.

- La forme du profil de l'interface aqueux/huile est différente selon la nature du fluide déplaçant et selon le débit/pression imposé.

- Le déplacement dans la cellule comporte deux phases : une première phase « transitoire » où la forme du profil de l'interface varie, suivie d'une deuxième phase « stationnaire » où la forme du profil reste invariable depuis une longueur h_s . La valeur de h_s dépend essentiellement de la pression/débit imposée et légèrement du fluide déplaçant.

À partir de ces remarques, nous avons imposé le débit pour la mise en œuvre de l'écoulement: la forme de l'interface fluide/huile sera considérée comme le critère premier de comparaison, car il s'agit d'un paramètre facile à mesurer à partir des enregistrements qui varie avec le fluide et avec la v_f de l'expérience.

Cependant, pour mesurer une forme d'interface caractéristique, il faut d'abord établir la longueur à partir de laquelle l'écoulement est stationnaire. Pour cela nous avons choisi deux endroits différents de la cellule pour placer des fenêtres d'observation car l'enregistrement des profils dans une longueur plus étendue de la cellule (entre 10 et 20 cm) ne permet pas d'établir avec certitude la longueur de stabilisation h_s . De plus, la résolution des images ne permet pas de caractériser clairement la forme de l'interface.

Une première expérience permet d'enregistrer le démarrage pour un certain débit Q (fenêtre toujours placée à partir de l'interface initiale) et la longueur h_s est déterminée pour ces conditions. Ensuite, l'enregistrement de toutes les expériences pour obtenir les profils avec un débit Q est réalisé en plaçant la fenêtre d'observation au-delà de la longueur h_s .

3.2.4 Description d'une expérience :

3.2.4.a Remplissage des fluides :

Le fluide newtonien est chargé dans le dispositif de remplissage (réservoir connecté à la ligne d'azote ou au pousse-seringue selon le régime choisi). Ensuite, il est introduit depuis la partie inférieure de la cellule pour remplir un volume dont la hauteur correspond à une distance – à partir de l'entrée – égale ou supérieure à la « longueur entrée » (3.52). Cette distance l_e , définie pour un fluide newtonien est calculée pour toutes les formulations viscoélastiques en considérant sa viscosité η_0 . Puis, l'huile est remplie depuis le dessous à l'aide d'une longue aiguille – pour minimiser les perturbations dans l'interface fluide viscoélastique/huile – jusqu'à remplir complètement la cellule et atteindre le point de vidange, de telle façon que le volume total des fluides, pendant l'expérience, soit maintenu constant. Le système doit observer un temps de stabilisation permettant de s'assurer – au départ du déplacement – que l'interface est en équilibre. (Figure 71 et Figure 72)

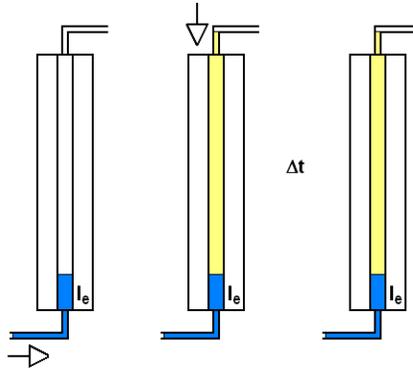


Figure 71 : Schéma de remplissage des fluides dans la cellule d'expérimentation.

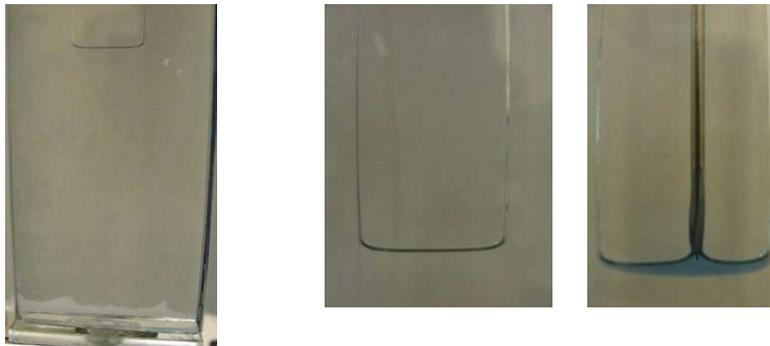


Figure 72 : Détail du fluide déplaçant rempli jusqu'à la longueur d'entrée (gauche), détail de l'interface fluide viscoélastique-air (centre) et détail de l'interface pendant l'injection d'huile colorée (droite)

3.2.4.b Réglage d'acquisition des images et lancement de l'expérience :

La fenêtre d'observation et la vitesse d'acquisition sont ajustées en fonction de la vitesse du fluide déplaçant. Cette fenêtre peut être placée dans deux zones différentes, soit au début de l'interface en repos (pour suivre le démarrage et le développement du profil) ou à une distance éloignée de l'interface initiale pour enregistrer un profil en état stationnaire. L'éclairage est ensuite ajusté dans la fenêtre d'acquisition avec une lampe de lumière blanche de sorte que le contraste fluide viscoélastique/huile (coloré) permette aisément d'établir la position de l'interface.

L'enregistrement commence et l'écoulement est induit par la source choisie (débit imposé). Des images successives sont prises à intervalles compris entre 20 ms et 500 ms selon la v_f attendue de l'expérience (Figure 73). Si la fenêtre d'observation est en bas, le

développement de la forme de l'interface est enregistré pendant la partie transitoire de l'écoulement. Au contraire, si la fenêtre est déplacée vers le haut (placée à une distance supérieure à la hauteur de stabilisation de chaque système, ce qui sera abordé en détail par la suite), nous obtenons un profil unique et caractéristique de la forme de l'interface. (Figure 74)

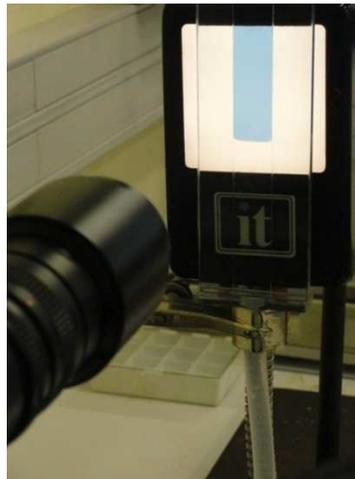


Figure 73 : Caméra, cellule et source de lumière

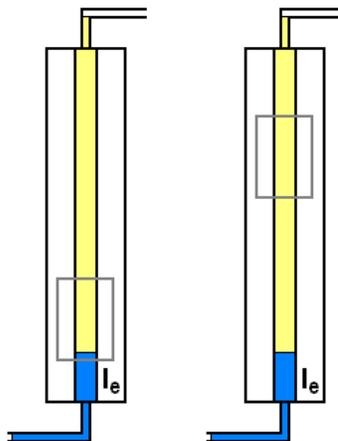


Figure 74 : Schéma de la localisation des fenêtres d'observation pendant l'expérience

Analyse des données :

Le critère de comparaison étant le contour de l'interface formée respectivement entre le fluide et l'huile, il faut – dès que les images sont prises – choisir un certain nombre d'entre elles pour les convertir en données analysables en coordonnées cartésiennes. Nous avons choisi de développer divers programmes sous Matlab® afin de convertir les données.

Si la fenêtre d'observation est placée pour enregistrer le démarrage, entre 10 et 20 images sont choisies à intervalles de temps réguliers pour couvrir la totalité de la fenêtre d'observation et déterminer h_s . Au contraire, si la fenêtre d'observation est placée au-delà de h_s pour enregistrer le profil en état stationnaire, entre 4 et 8 images choisies à intervalles réguliers de temps sont suffisantes pour couvrir la totalité de la fenêtre d'observation et obtenir le profil caractéristique d'une expérience.

L'analyse de ces données permet de calculer la symétrie des profils obtenus pour valider les expériences et calculer l'incertitude de mesure, ce qui assure la répétabilité avant l'analyse proprement dite.

Programme 1: Conversion d'images en données :

La fenêtre d'observation (Figure 75) est découpée pour obtenir des images de dimensions $\alpha \times \beta$ pixels où α est équivalent à 2 cm et correspond à la largeur de la cellule, et β est équivalent à la longueur de la fenêtre d'observation. Le contraste entre les deux phases produit une courbe que le logiciel va différencier du reste de l'image ; une moyenne est calculée par pixel dans la direction x pour obtenir une courbe en coordonnées cartésiennes de chaque image.

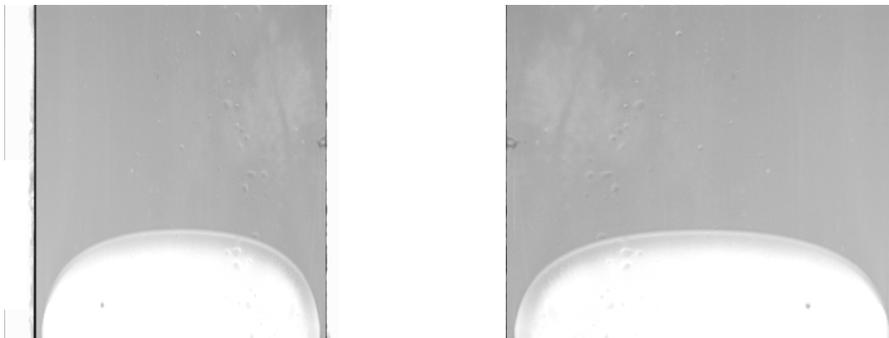


Figure 75 : A gauche : Image originale dans la fenêtre d'observation : 768x572 pixels. A droite : Fenêtre découpée pour le traitement des images : 668x572 pixels, $x = 2\text{cm}$; $y = 1,75\text{ cm}$.

Programme 2 : Vérification de symétrie

Une fois que les profils sont enregistrés, une vérification de symétrie (Figure 76 à gauche) est réalisée. L'axe de symétrie est pris à la moitié de la largeur ($x = 1\text{ cm}$) et un seuil de tolérance est établi ; si l'expérience le dépasse, elle est rejetée (Figure 76 à droite).

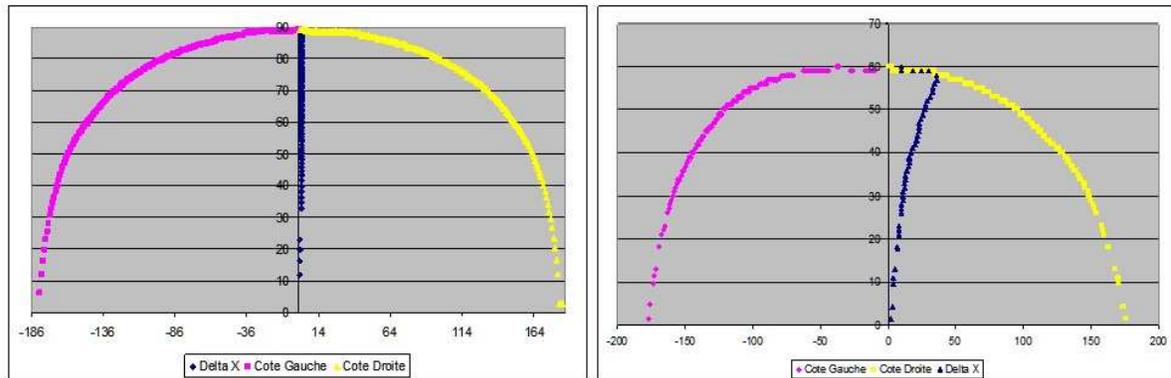


Figure 76 : A gauche : Image symétrique. A droite : Image asymétrique.

Programme 3 : Calcul de l'incertitude de mesure

Pour une expérience de démarrage, les profils à intervalles de temps égaux pour deux essais sont moyennés et l'écart moyen en fonction de x est calculé. Un seuil de tolérance est établi et l'expérience est validée si l'incertitude est au dessous du seuil dans toute la largeur.

Pour une expérience d'écoulement stationnaire, un groupe de 5 images par expérience avec intervalles de temps égaux est sélectionné et le profil moyen de l'interface dans toute la largeur est calculé. Ensuite, une deuxième expérience est analysée de façon analogue pour obtenir deux profils moyens. Un seuil de tolérance est utilisé (2% de la hauteur d'analyse) et l'expérience est validée si l'écart est en dessous de ce seuil sur toute la largeur. Par exemple la Figure 77 montre deux images obtenues à partir de deux expériences différentes dans des conditions identiques (fluide et vitesse). Les profils mesurés sont montrés dans la Figure 77. Par ailleurs, avec la caméra employée, l'incertitude associée à l'intervalle de temps entre deux images est d'une milliseconde. L'incertitude associée à la mesure des profils d'interface à partir des images est de 1 pixel, ce qui représente approximativement 1/600 de l'échelle de la fenêtre d'observation.

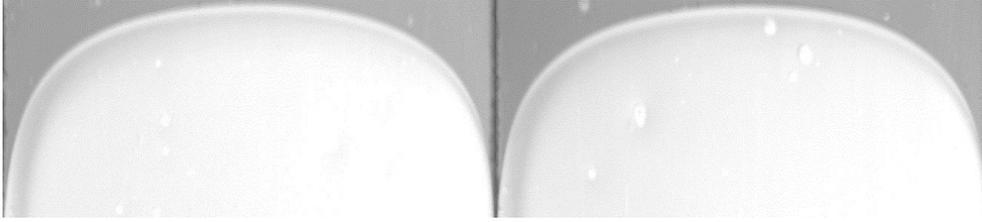


Figure 77 : Images de deux expériences indépendantes de déplacement avec du Canadou ($\eta=0,16$ Pa.s) déplaçant de l'huile de silicone ($\eta=0,1$ Pa.s) à $1,2 \text{ cm}^3/\text{s}$. La largeur est de 2 cm et la hauteur de $0,75 \text{ cm}$.

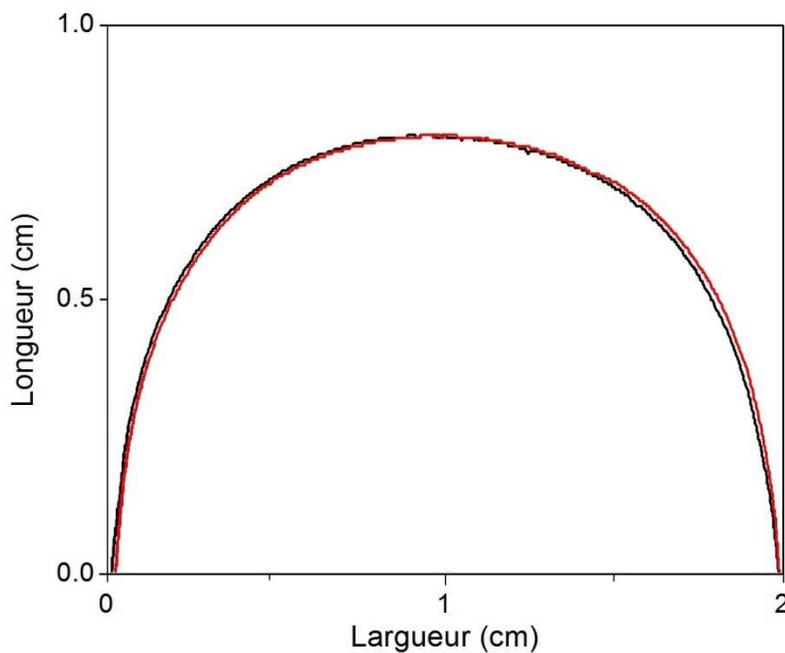


Figure 78 : Comparaison des profils mesurés à partir des images de la figure 76.

Intéressons nous ensuite à deux mesures typiques, la première (Figure 79) correspond au démarrage d'un déplacement à un débit imposé de $4 \text{ cm}^3/\text{s}$ qui représente une vitesse moyenne de 10 cm/s dans la cellule avec des intervalles de temps de 100 ms . Dans la première image, nous observons l'angle qui se forme entre les deux phases, associé au mouillage du fluide viscoélastique sur le verre (hydrophile). Une autre série des images (Figure 80) montrent l'aspect de l'écoulement loin de l'entrée de la cellule.

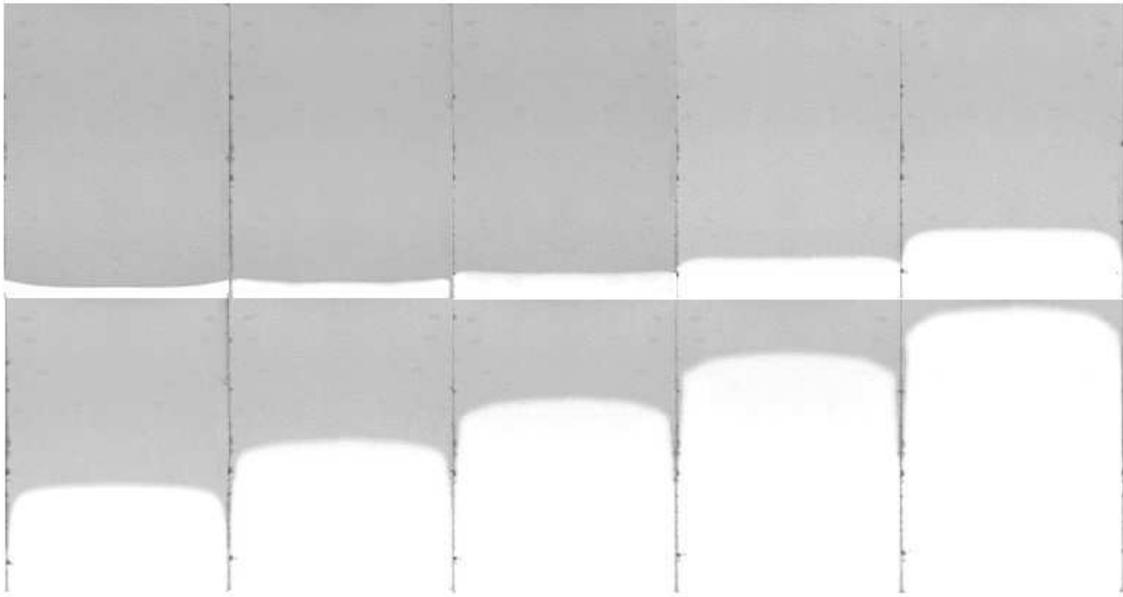


Figure 79 : Expérience de déplacement depuis le démarrage. Formulation PAM-6000 ($\eta = 0,13 \text{ Pa.s}$) déplaçant de l'huile de silicone ($\eta = 0,1 \text{ Pa.s}$) à $4 \text{ cm}^3/\text{s}$

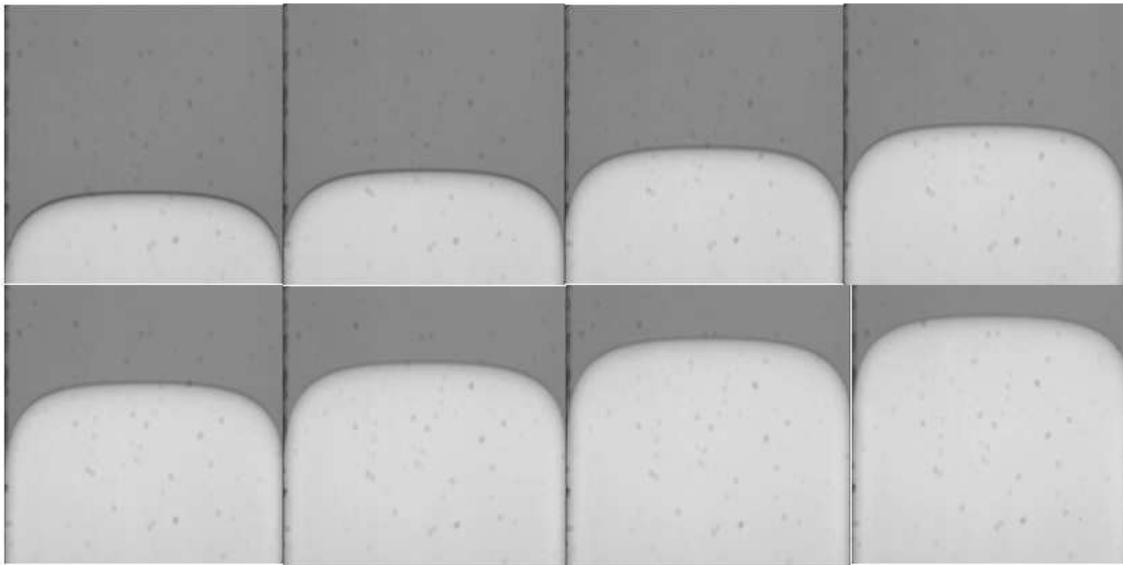


Figure 80 : Expérience de déplacement en régime stationnaire. La largeur est de 2 cm et la hauteur de 5cm pour chaque image. Canadou ($\eta=0,16 \text{ Pa.s}$) déplaçant de l'huile de silicone ($\eta=0,1 \text{ Pa.s}$) à $2 \text{ cm}^3/\text{s}$.

