

RESULTATS

EXPERIMENTAUX SUR

BRUTS PETROLIERS

Après le développement et la validation du test de moussabilité qui a constitué la première partie de ce travail, la méthodologie développée a été appliquée à différents pétroles saturés avec différents gaz (CO₂ et CH₄) afin de progresser dans la compréhension des paramètres physico chimiques des bruts contrôlant ces propriétés de moussage. Pour cela un ensemble de bruts pétroliers de différentes compositions et origines ont été testés (comme décrit dans le chapitre 2).

La méthodologie a été la suivante : saturation pendant 70 minutes sous différentes pressions de gaz (5, 10 et 15 bar) dans la cellule de vieillissement sous agitation avec la table horizontale (200 rpm), à température ambiante (20±2°C).

La caractérisation des paramètres physicochimiques des pétroles testés a été systématiquement réalisée. La mesure de la teneur en eau de chaque pétrole a également été faite, montrant que dans tous les cas, les pétroles étaient déshydratés (teneur en eau inférieure à 0,5% qui est la limite de l'appareil). Les valeurs de masse volumique (avec une incertitude de 0,05 kg/m³) et viscosité (avec une incertitude de 10% de la mesure) à 20°C sont résumées dans le Tableau IV-1. D'autre part, pour certains échantillons de pétroles disponibles en quantités plus importantes (pétroles F, Z1, M2 et D) des analyses supplémentaires ont été réalisées pour obtenir la composition SARA et les indices d'acidité (TAN) de ces bruts. Nous avons également réalisé des mesures d'indice de basicité (TBN) sur les pétroles Z1 et M2. Leur composition est résumée dans le Tableau IV-2.

Tableau IV-1 Caractéristiques physicochimiques des pétroles

Pétrole	$\rho^{20^{\circ}\text{C}}$ (kg/m ³)	°API	$\mu^{20^{\circ}\text{C}}$ (mPa.s)	% Eau
F	859	33	21	<0,5
Z1	890	27	37	<0,5
Z2	908	24	76	<0,5
M1	921	22	173	<0,5
M2	921	22	185	<0,5
D	955	16	5117	<0,5

Tableau IV-2 Composition des pétroles F, Z1, M2 et D

Pétrole	Saturés (%)	Aromatiques (%)	Résines (%)	Asphaltènes (%)	Pertes (%)	TAN (mg KOH/g)	TBN (mg KOH/g)
F	66,7±1,1	25,4±1,1	7,3±1,1	<0,1	0,6	<0,1	-
Z1	50,7±1,1	29,5±1,1	14,8±1,1	4,4±0,4	0,7	0,24±0,1	<0,5
M2	44,7±1,1	27,5±1,1	21,1±1,1	4,1±0,4	2,4	1,10±0,1	2,6±0,5
D	36,2±1,1	27,8±1,1	18,3±1,1	17,0±2,3	0,8	0,11±0,1	-

Donc, si on regarde les Tableaux IV-1 et IV-2 on peut voir que le pétrole F est le pétrole le plus léger avec un contenu très élevé en composés saturés et non asphalténiques. Le pétrole Z1 est un pétrole moyen légèrement asphalténique. Le pétrole Z2 est un échantillon vieilli du pétrole Z1 et contient donc logiquement une teneur en composés légers inférieure (qui a comme conséquence une augmentation de la masse volumique et de la viscosité). D'autre part, le pétrole M est un pétrole lourd plus visqueux que les pétroles F et Z. Comme le pétrole Z, il s'agit d'un brut légèrement asphalténique mais avec un contenu en résines plus important. Il faut noter que ce pétrole est le plus acide de tous les pétroles (la valeur de l'indice TAN est la plus élevée). Il contient également des composés basiques en quantité significative (TBN de l'ordre de 3). Les pétroles M1 et M2 sont deux échantillons du même puits de production prélevés à des temps différents, ce qui montre l'évolution du pétrole produit sur le champ pétrolier (on constate un alourdissement du pétrole M en comparant la viscosité de l'échantillon M2 par rapport à celle de l'échantillon M1). Enfin, le pétrole D est un pétrole lourd très asphalténique et très visqueux.

1. Application du modèle logistique et premières observations

1.1. Validation du modèle logistique

Comme dans le cas des pétroles F et Z1, nous avons réalisé des essais de moussabilité avec 5 bar de CO₂ et un temps de saturation de 70 minutes en utilisant la table d'agitation horizontale. Nous avons ensuite appliqué les normalisations et modélisations des résultats développées précédemment à chaque pétrole.

Dans tous les cas, nous vérifions que le modèle logistique est le modèle le plus approprié pour représenter les cinétiques de démoussage et d'évolution du liquide libre. Dans les Figures IV-

1, IV-2 et IV-3 on peut voir l'évolution des volumes de mousse, liquide libre et total pour les pétroles Z2, M1 et M2. Il faut noter dans ces figures que la mesure de la hauteur de l'interface air/mousse s'accompagne de plus d'incertitude que celle de l'interface mousse/liquide.

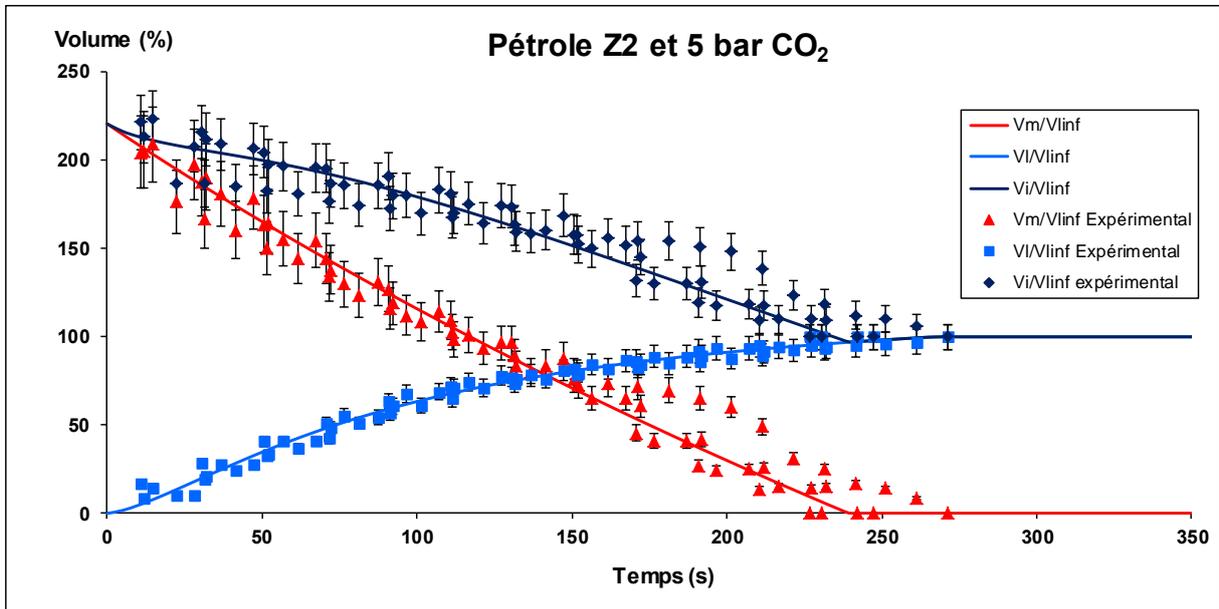


Figure IV-1 Evolution du volume de mousse, du volume liquide et du volume total pour le pétrole Z2 et 5 bar de CO₂

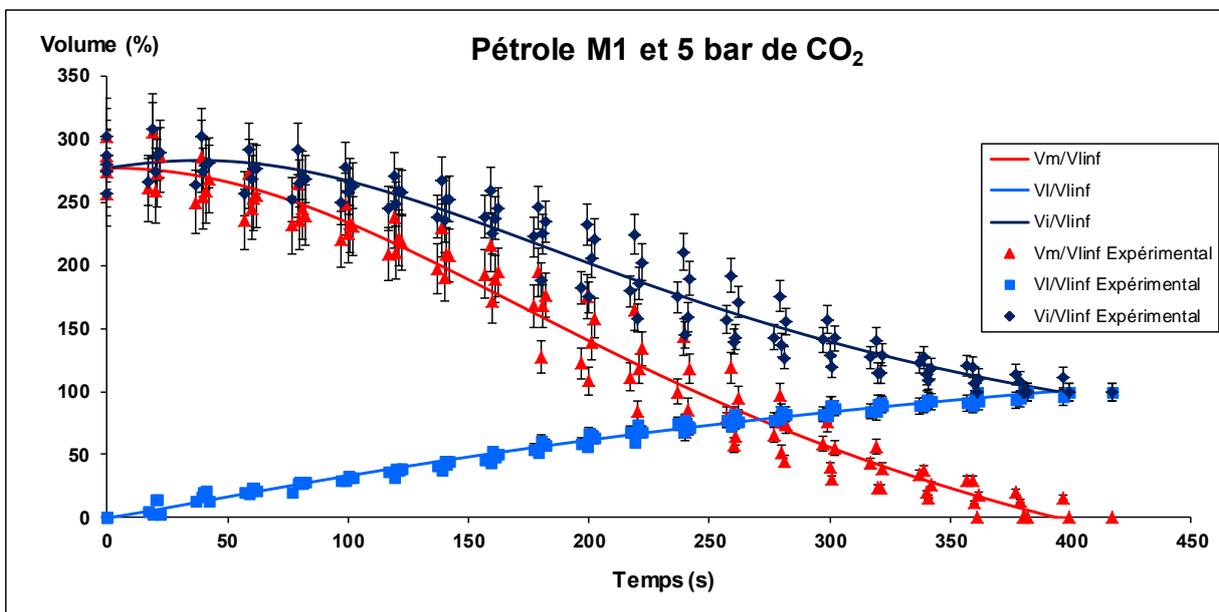


Figure IV-2 Evolution du volume de mousse, du volume liquide et du volume total pour le pétrole M1 et 5 bar de CO₂

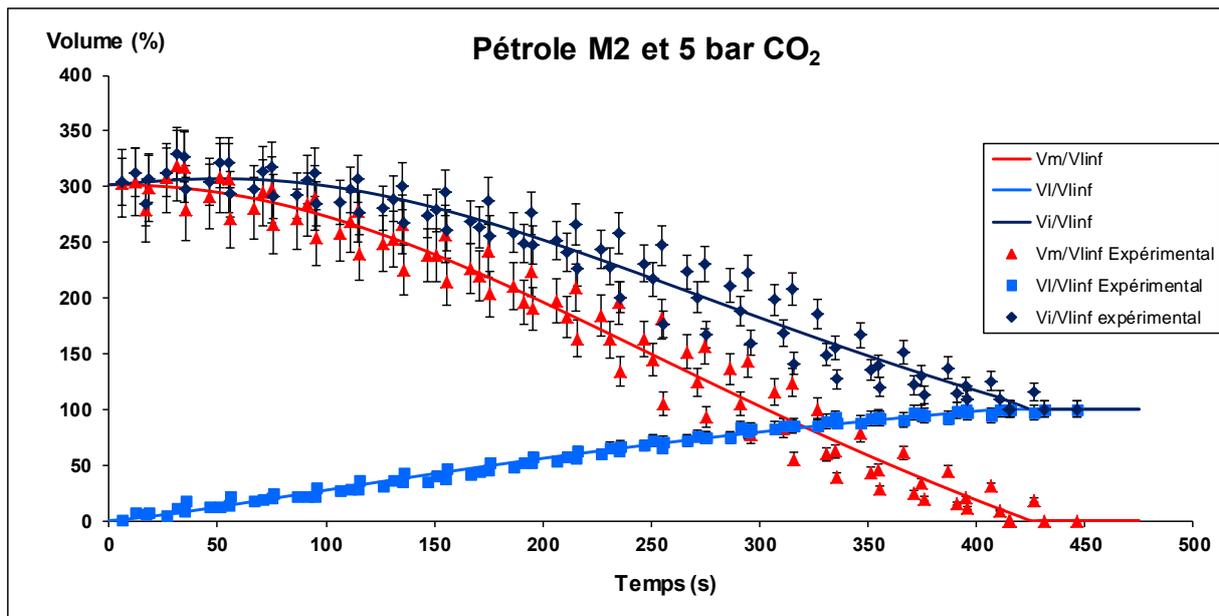


Figure IV-3 Evolution du volume de mousse, du volume liquide et du volume total pour le pétrole M2 et 5 bar de CO₂

1.2. Cinétique de démoussage

Les cinétiques de cassage des mousses des différents pétroles testés avec 5 bar de gaz CO₂ sont représentées Figure IV-4. Une première observation logique est que plus le pétrole est visqueux, plus la mousse générée est stable. Il est possible de distinguer différentes formes de cinétique de cassage. On voit que dans les cas des pétroles les plus légers (comme le F ou le Z1) le cassage est rapide (pente plus élevée). Par contre, dans les cas des pétroles plus lourds (comme le M1 et M2), la forme sigmoïde est nettement plus marquée, montrant un cassage plus lent, en plusieurs étapes. Il faut également remarquer que dans le cas du pétrole Z2, la courbe de cassage est singulière, avec un cassage de la mousse presque linéaire. Les paramètres des modèles de la cinétique de cassage et de l'évolution du liquide libre sont résumés dans les ANNEXES 6 et 7 respectivement.

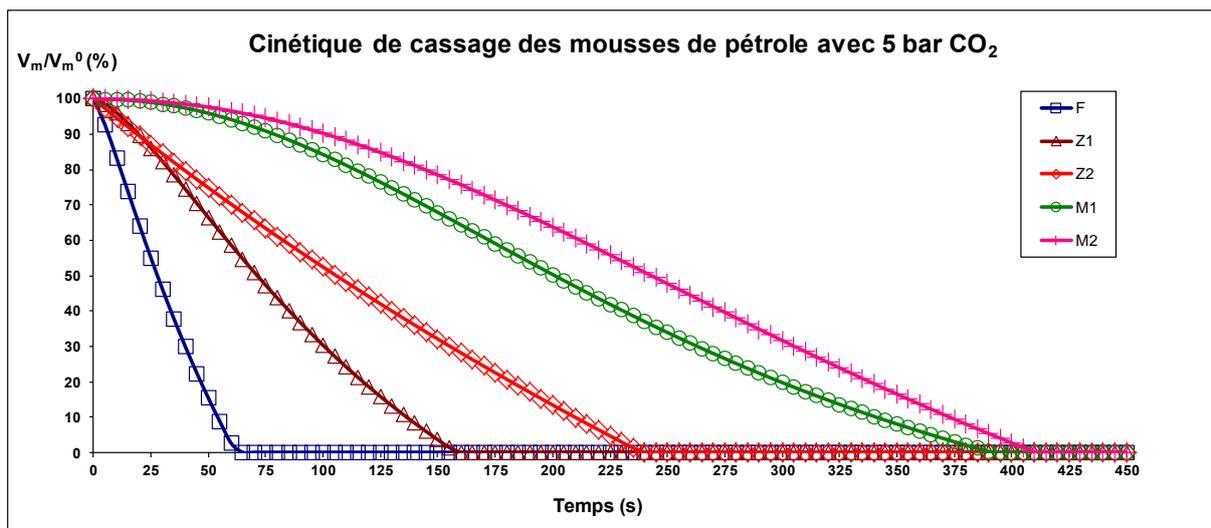


Figure IV-4 Cinétique de cassage des mousses obtenues avec les pétroles F, Z1, Z2, M1 et M2 et 5 bar de CO₂

Nous pouvons essayer de représenter graphiquement les différents temps caractéristiques de ces cinétiques (pour des taux de mousse restant allant de 0 à 100%) en utilisant l'Equation 3.14 (voir la Figure IV-5). Dans le Tableau IV-3 sont rassemblés les temps de demi-vie, $t_{50\%}$, (correspondant à un volume de mousse égal à 50% du volume initial) et le temps final, t_f , ou temps de vie de la mousse (correspondant à un volume de mousse égal à 0%).

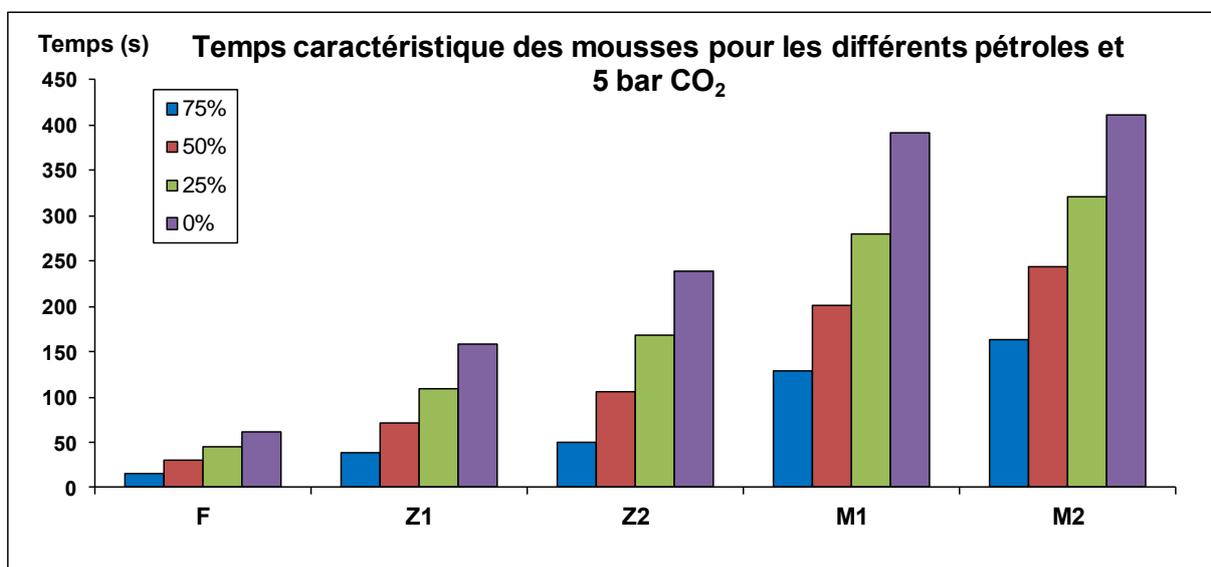


Figure IV-5 Temps caractéristiques de la vie de la mousse pour les différents pétroles et 5 bar de CO₂ pour différents pourcentages de mousse non cassée (75, 50, 25 et 0%)

Tableau IV-3 Valeurs du temps de demi-vie, $t_{50\%}$, et du temps de vie de la mousse, t_f , pour 5 bar de CO_2

	$t_{50\%}$ (s)	t_f (s)
F	30±7	61±13
Z1	72±9	158±19
Z2	106±9	239±34
M1	201±21	391±41
M2	243±16	410±40

De façon logique, les temps de vie de la mousse suivent la tendance de la cinétique de cassage, c'est-à-dire qu'on observe des temps d'autant plus importants que le pétrole est visqueux. Cependant ces paramètres seuls ne sont pas suffisants pour décrire l'ensemble du comportement.

1.3. Moussabilité des pétroles

Au-delà de la cinétique de cassage de la mousse, la méthodologie développée nous permet d'étudier un autre paramètre très important pour les aspects opérationnels et pratiques, qui est la moussabilité de chaque pétrole, c'est-à-dire la quantité de mousse qu'un pétrole est capable de générer dans les conditions de l'opération. Pour pouvoir comparer la moussabilité des pétroles, nous utilisons l'expression du modèle logistique selon l'Equation 3.13 et plus spécifiquement l'indice de moussabilité (le paramètre A'_1 dans l'Equation 3.13). Sur la Figure IV-6 nous avons représenté les valeurs de l'indice de moussabilité obtenues pour les pétroles étudiés :

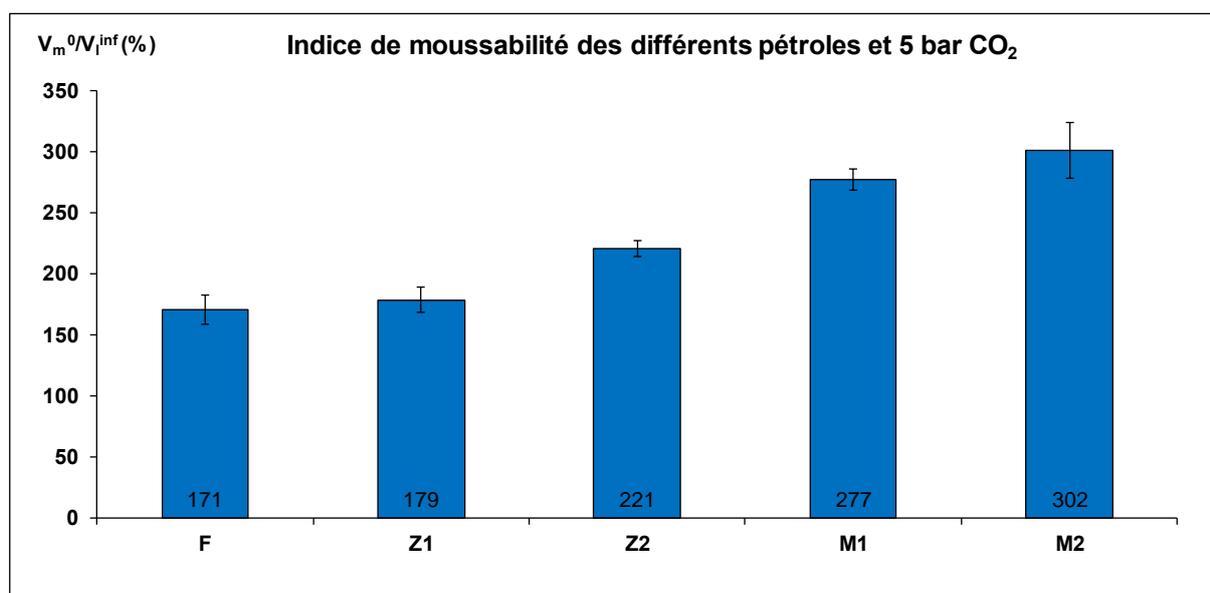


Figure IV-6 Indice de moussabilité des différents pétroles testés avec 5 bar de CO_2

Sur cette figure, on peut remarquer que le pétrole le plus moussant est le pétrole M (l'échantillon M2 légèrement plus moussant que l'échantillon M1). Dans le cas du pétrole Z, on voit que plus le pétrole est lourd, plus la quantité de mousse formée est importante. Ces résultats semblent indiquer que la perte de composants légers, renforçant la teneur en composés tensioactifs dans le pétrole va dans le sens d'une augmentation de la moussabilité.

2. Influence de la viscosité et de la composition : dilution des bruts pétroliers

Pour essayer de mieux comprendre l'influence de la viscosité et de la composition sur le comportement moussant des pétroles, nous avons décidé d'étudier un pétrole lourd (le pétrole D) et de réaliser différentes dilutions avec deux solvants différents : une coupe essence non aromatique (Solane 100-120) et une coupe gazole non aromatique (Hydroseal 250 G250H). Pour faire cette étude, deux dilutions avec la coupe essence (nommées DS) et deux dilutions avec la coupe gazole (nommées DH) ont été réalisées (voir Tableaux IV-4 et IV-5). Les valeurs de la masse volumique ont une incertitude de $0,05 \text{ kg/m}^3$ et les valeurs de la viscosité ont une incertitude de 10% de la mesure.

Tableau IV-4 Caractéristiques physicochimiques des dilutions du pétrole D

Pétrole	Taux de dilution (%)	$\rho^{20^\circ\text{C}}$ (kg/m^3)	$^\circ\text{API}$	$\mu^{20^\circ\text{C}}$ (mPa.s)
DS1	18,0	912	23	189
DS2	20,7	911	23	145
DH1	36,5	897	26	139
DH2	42,0	889	27	97

Tableau IV-5 Composition SARA des dilutions du pétrole D

Pétrole	Saturés (%)	Aromatiques (%)	Résines (%)	Asphaltènes (%)
DS1	47,5±0,9	22,8±0,9	15,0±0,9	13,9±1,9
DS2	49,2±0,9	22,0±0,9	14,5±0,9	13,4±1,8
DH1	59,2±0,7	17,7±0,7	11,6±0,7	10,8±1,5
DH2	62,6±0,6	16,1±0,6	10,6±0,6	9,8±1,3

Comme on peut voir dans les Tableaux IV-4 et IV-5, les dilutions faites avec le même solvant ont des compositions très proches mais des valeurs de viscosité très différentes. Même si la

séparation des paramètres reste un objectif difficile avec ces fluides complexes, cette dilution va nous permettre d'analyser en première approche l'influence de la viscosité sur les propriétés moussantes des dilutions. Avec ces dilutions, nous obtenons également deux bruts avec des viscosités très proches (les dilutions DS2 et DH1) mais ayant une composition très différente. Ceci nous permettra de séparer les effets purement visqueux des effets liés à des changements de composition.

Les figures qui montrent l'évolution des volume total, de mousse et de liquide libre sont montrées dans l'ANNEXE 8. La Figure IV-7 représente les cinétiques de cassage modélisées des dilutions du pétrole D.

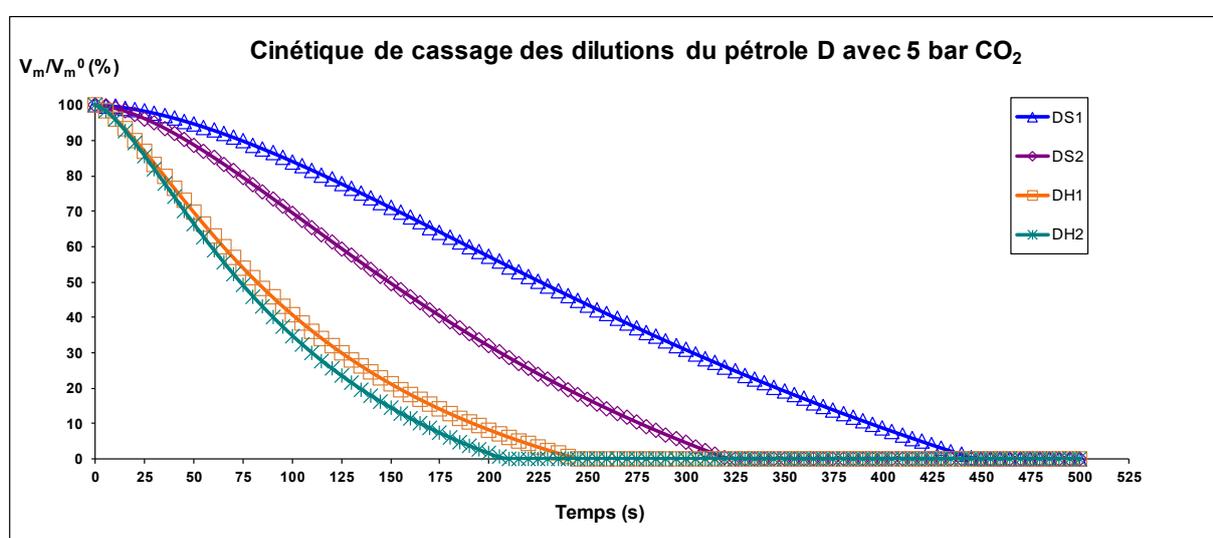


Figure IV-7 Cinétique de cassage des mousses obtenues avec les dilutions du pétrole D et 5 bar de CO₂

Les comportements ne sont pas les mêmes avec les deux diluants. Si on regarde les courbes de démoussage obtenues avec le diluant Solane (DS1 et DS2), on peut voir que la stabilité de la mousse est très supérieure dans le cas de l'échantillon moins dilué (DS1) par rapport à la solution la plus diluée (DS2), ce qui peut être attribué en première analyse à la différence de viscosité des deux solutions. Par contre, si l'on examine les essais avec le diluant Hydroseal, on peut remarquer que même si les viscosités sont très différentes entre les deux dilutions (139 mPa.s pour le DH1 et 97 mPa.s pour le DH2), la stabilité est pratiquement identique pour les deux solutions. La concentration des composés actifs joue donc un rôle aussi important que la baisse de viscosité (plus on dilue avec des coupes saturées, plus on dilue la concentration des composés lourds tensioactifs : résines et asphaltènes).

Ceci est confirmé en examinant les courbes correspondant à des dilutions différentes mais avec une viscosité très proche (les courbes correspondant aux essais DS2 et DH1, respectivement 145 et 139 mPa.s). La stabilité de la mousse est bien inférieure pour la

solution diluée avec l'Hydroseal (dilution la plus importante) pour des viscosités équivalentes. En première analyse on voit que plus le système contient des composants légers (plutôt des saturés) au détriment des composés lourds, moins la mousse est stable (voir Figure IV-8). Il y a donc couplage entre un effet de composition (diminution de la proportion des composés lourds tensioactifs et augmentation de celle des composés légers) et un effet physique (diminution de la viscosité de la solution).

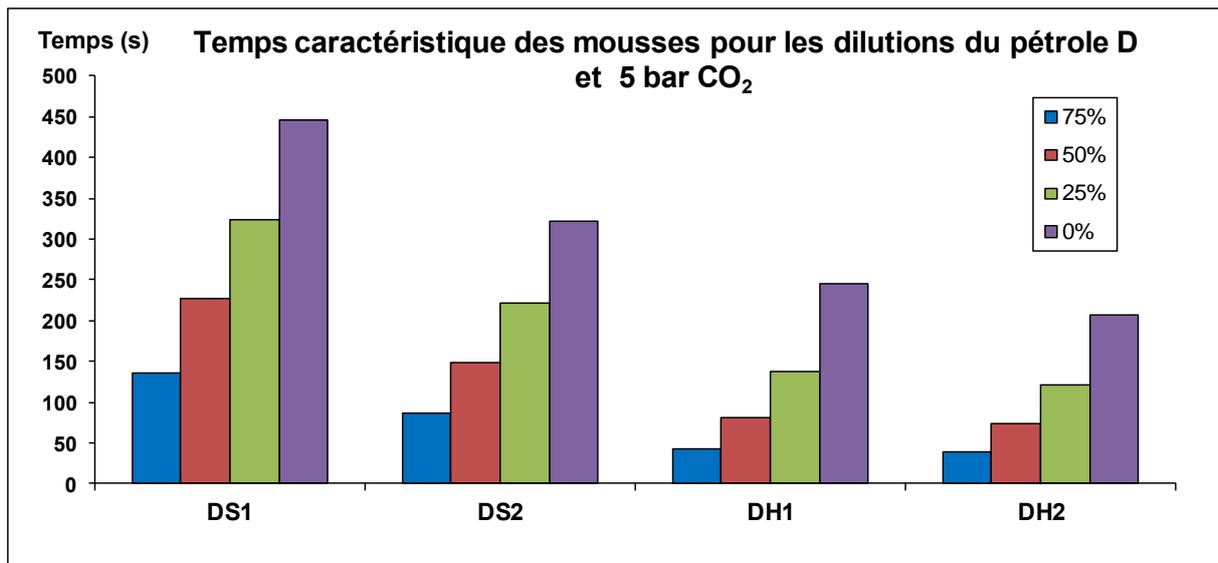


Figure IV-8 Temps caractéristiques de la vie de la mousse pour les dilutions du pétrole D et 5 bar de CO₂ pour différents pourcentages de mousse non cassée (75, 50, 25 et 0%)

Si l'on s'intéresse maintenant à la moussabilité des différentes dilutions du pétrole D en utilisant l'indice de moussabilité défini précédemment (Figure IV-9), on peut voir que la quantité de mousse obtenue pour les dilutions avec le Solane (DS1 et DS2) est équivalente quel que soit le taux de dilution. On obtient dans ce cas une quantité de mousse égale ou supérieure à celles obtenues avec les dilutions avec l'Hydroseal (DH1 et DH2). Pour les deux dilutions avec ce solvant, la solution la moins diluée génère le plus de mousse dans les conditions de l'expérimentation. Comme pour la cinétique de cassage, on peut dire en première analyse que la viscosité de la solution ne joue pas le rôle prépondérant, mais est couplée à l'influence de la composition (dépendante de la dilution).

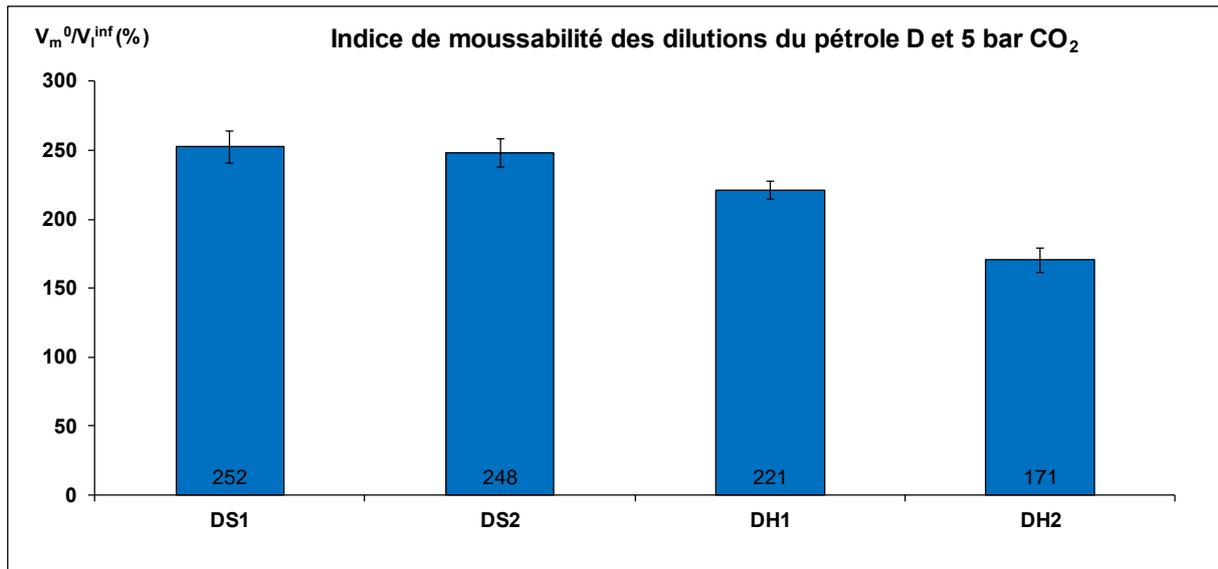


Figure IV-9 Indice de moussabilité des dilutions du pétrole D avec 5 bar de CO₂

3. Résultats expérimentaux sur l'ensemble des bruts pétroliers

Dans cette partie, nous présentons l'ensemble des résultats expérimentaux concernant la moussabilité et la cinétique de cassage, obtenus avec la méthodologie expérimentale développée dans la première partie de la thèse. La Figure IV-10 représente l'ensemble des courbes de cinétique de cassage (pétroles et bruts dilués) obtenues sur nos échantillons de bruts. Au-delà de la simple constatation que globalement plus la phase liquide est visqueuse, plus la mousse est stable, les résultats montrent également un couplage entre un effet de viscosité et un effet de composition. On peut voir aussi que le temps de demi-vie correspondant à l'essai DS1 est plus petit que celui du pétrole M2 alors que le temps de vie de la dilution DS1 est supérieur (notons que les deux systèmes ont des viscosités équivalentes). Cela nous confirme qu'utiliser le temps de demi-vie comme temps caractéristique pour définir la stabilité de la mousse n'est pas forcément le plus pertinent.

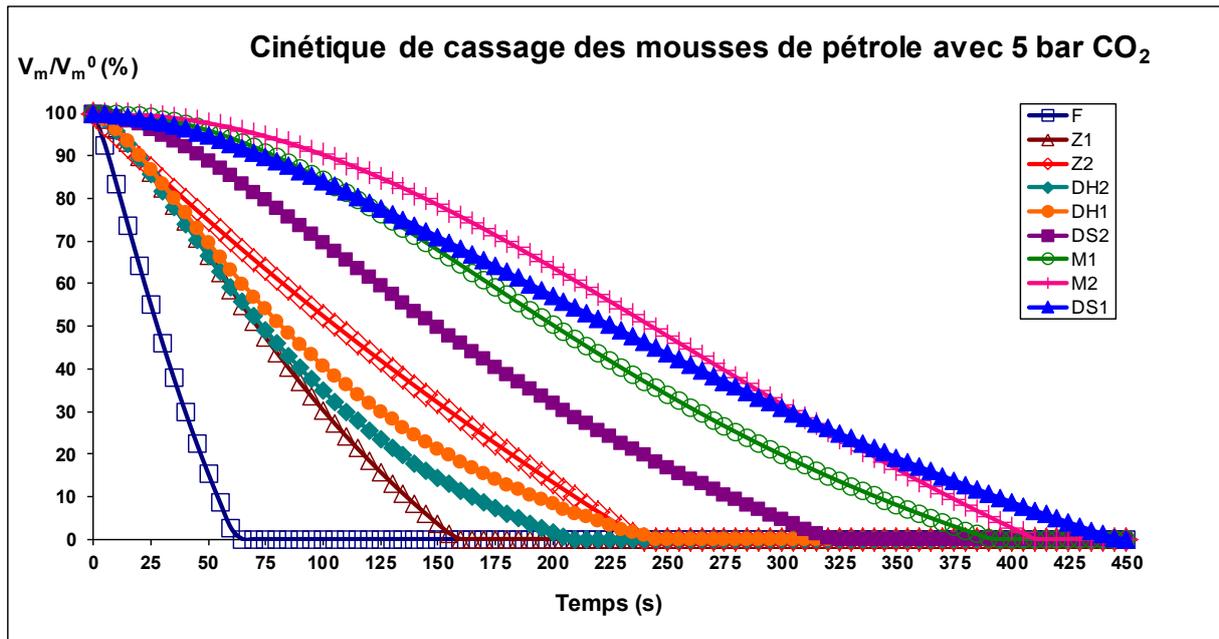


Figure IV-10 Cinétique de cassage des mousses obtenues avec les différents fluides pétroliers et 5 bar de CO₂. Les fluides pétroliers sont ordonnés du moins au plus visqueux dans la légende.

Si on examine maintenant la moussabilité de l'ensemble des fluides pétroliers, on peut voir qu'il existe une légère augmentation de l'indice de moussabilité en fonction de la viscosité des bruts (voir Figure IV-11) et en fonction de la concentration des composants qui ont des propriétés tensioactives (notamment les asphaltènes et les résines). Ces deux paramètres ne sont pas indépendants car en général, plus le pétrole est lourd et visqueux, plus il contient de composants du type asphaltènes et résines. On constate également que le pétrole le plus moussant est le M2, alors que sa viscosité est comparable à DS1 et que sa teneur en asphaltènes est inférieure. Cependant, c'est le pétrole le plus acide (TAN > 1 mg KOH/g).

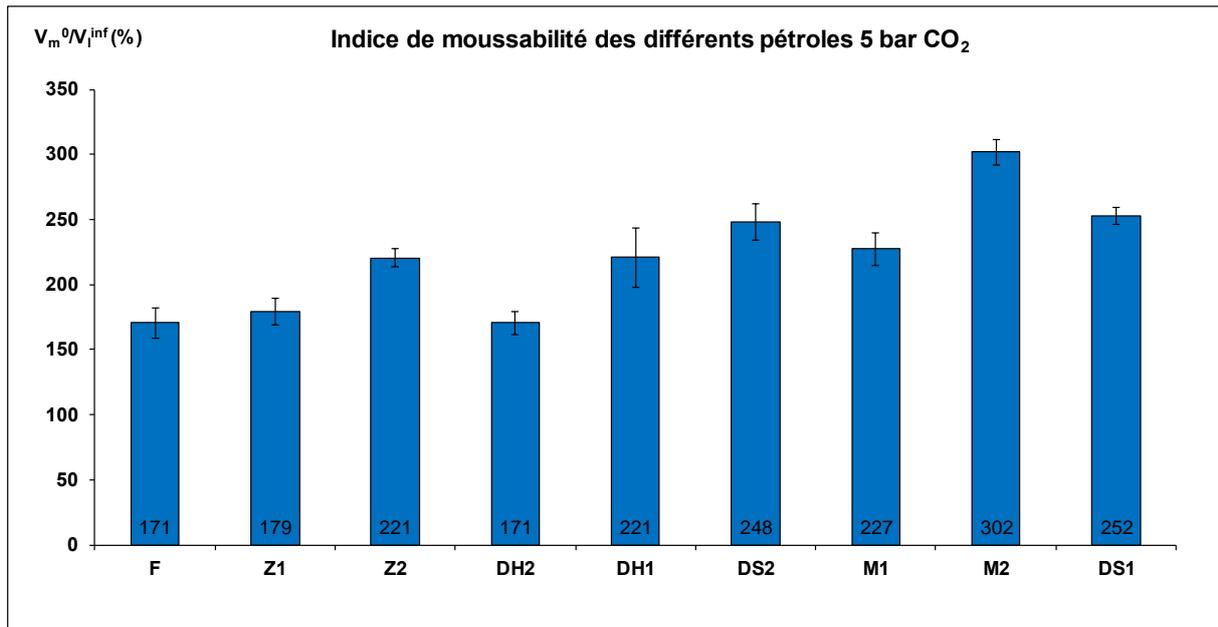


Figure IV-11 Indice de moussabilité des pétroles et des dilutions avec 5 bar de CO₂

Un étude plus approfondie sur l'influence des paramètres physicochimiques des fluides pétroliers sur la stabilité et sur la moussabilité des pétroles sera faite au Chapitre suivant.

4. Effet du type de gaz et de la pression de saturation

4.1. Effet sur la cinétique de démoussage

Après avoir étudié la moussabilité et la cinétique de cassage des mousses de pétrole avec 5 bar de CO₂, nous avons décidé d'étudier l'influence de la pression de saturation sur les propriétés moussantes des pétroles. Pour cette étude, on a choisi les pétroles Z1 et M2 et utilisé des pressions de saturation de 5, 10 et 15 bar. Sur les Figures IV-12 et IV-13 sont représentées les cinétiques de cassage obtenues après la modélisation des données expérimentales :

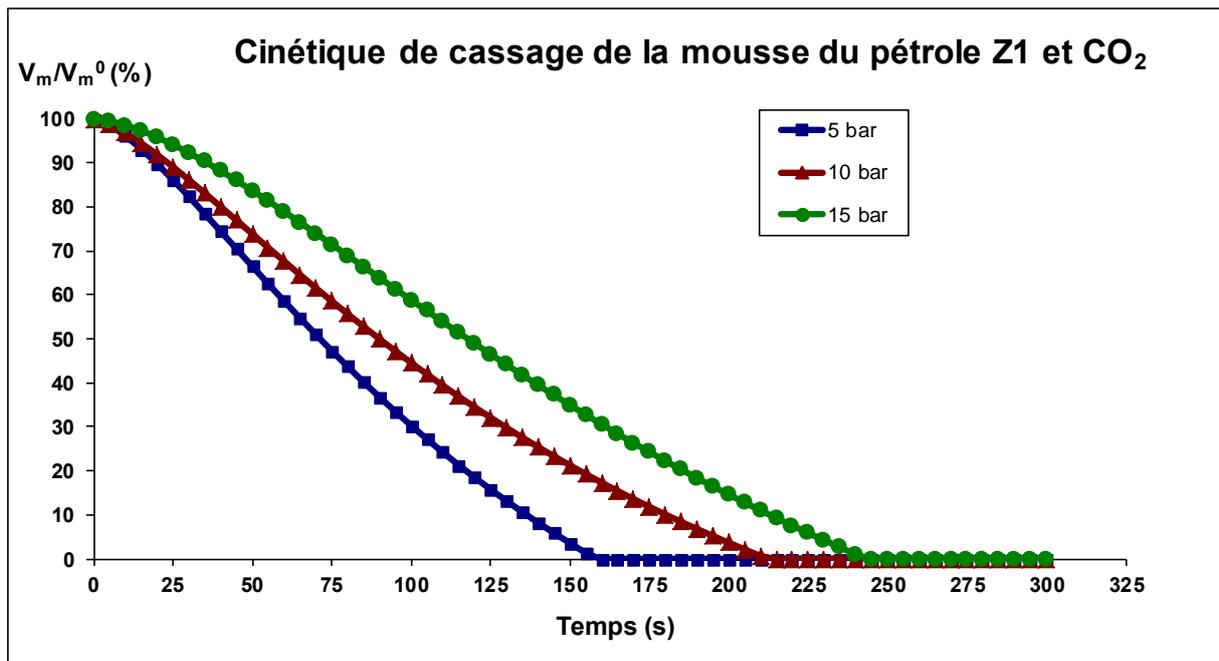


Figure IV-12 Cinétique de cassage du pétrole Z1 et CO₂ avec différentes pressions de saturation

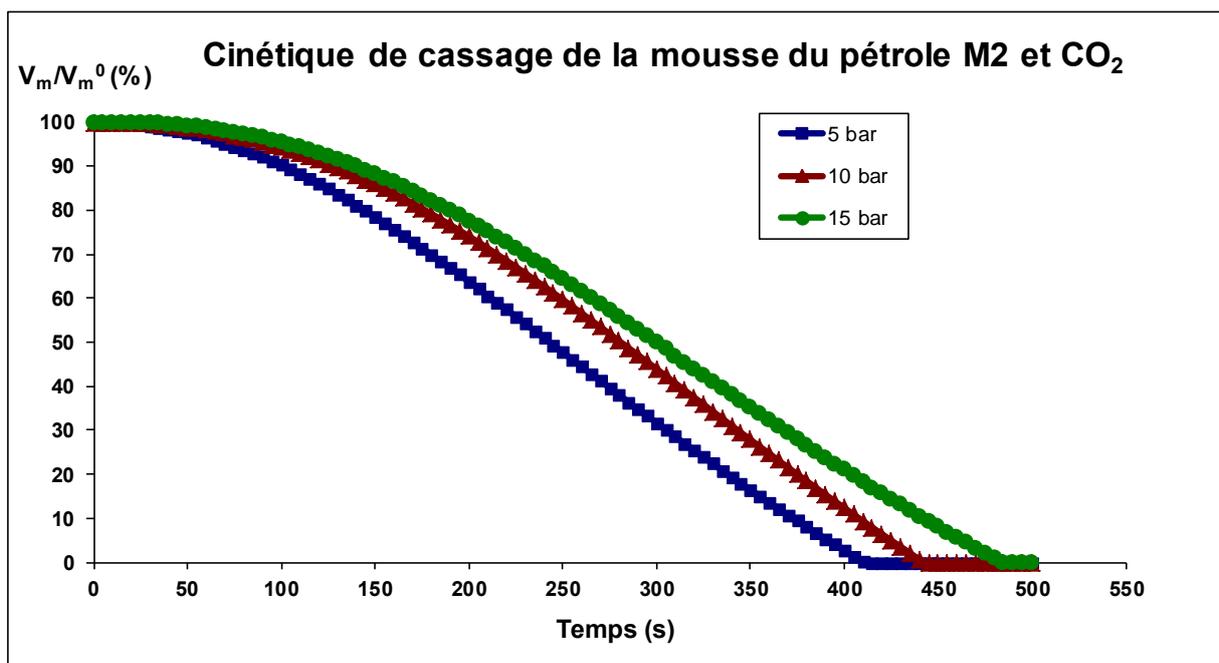


Figure IV-13 Cinétique de cassage du pétrole M2 et CO₂ avec différentes pressions de saturation

Sur ces deux figures il est possible de voir que plus la pression de saturation est grande, plus la mousse formée est stable. Une augmentation de la pression de saturation dans un système a comme conséquence une augmentation de la quantité de gaz dissous dans la phase liquide selon la Loi de Henry. De cette façon, si la quantité de gaz dissous dans le pétrole est supérieure, le temps nécessaire pour le dégazage après dépressurisation est a priori supérieur et donc le temps de vie de la mousse augmente. D'autre part, on peut voir également que plus

la pression est élevée, plus le temps nécessaire à l'observation d'un début de cassage est important (observation d'un plateau en début de courbe). Cet effet est plus marqué dans le cas du pétrole M2 (voir Figure IV-13) où le temps correspondant à une diminution du volume de mousse de 5 % est respectivement autour de 72s, 95s et 104s aux pressions de 5, 10 et 15 bar, alors qu'il est respectivement de 12s, 14s et 22s pour 5, 10 et 15 bar pour le pétrole Z1. En effet, le maintien de la hauteur de mousse est dû à la superposition de plusieurs mécanismes de natures différentes voire opposées : la nucléation et croissance des bulles, qui favorisent la création et l'expansion de la mousse d'une part, et le drainage du liquide, le mûrissement d'Ostwald et la coalescence des bulles qui favorisent la destruction de la mousse d'autre part. Il faut noter que si on augmente la pression de saturation du gaz, comme nous l'avons déjà fait remarquer, la quantité de gaz dissous augmente aussi. Une fois que tout le système est sous forme de mousse, une partie du gaz reste dissous jusqu'au moment où une partie de la mousse est détruite. De cette façon, l'apparition des bulles continue jusqu'à la stabilisation du fluide (une partie de gaz peut rester dissous en accord avec la loi de Henry). Par conséquent, si la vitesse de nucléation et croissance des bulles est égale à la vitesse de drainage et coalescence des bulles, la hauteur totale de la mousse ne variera pas.

Pour valider que les tendances montrées dans le cas du CO₂ sont extrapolables à un autre gaz, nous avons testé également le méthane comme gaz de saturation aux pressions de 5, 10 et 15 bar avec le pétrole M2. Sur la Figure IV-14, on a représenté les courbes cinétiques de cassage de la mousse obtenues après la modélisation des données expérimentales :

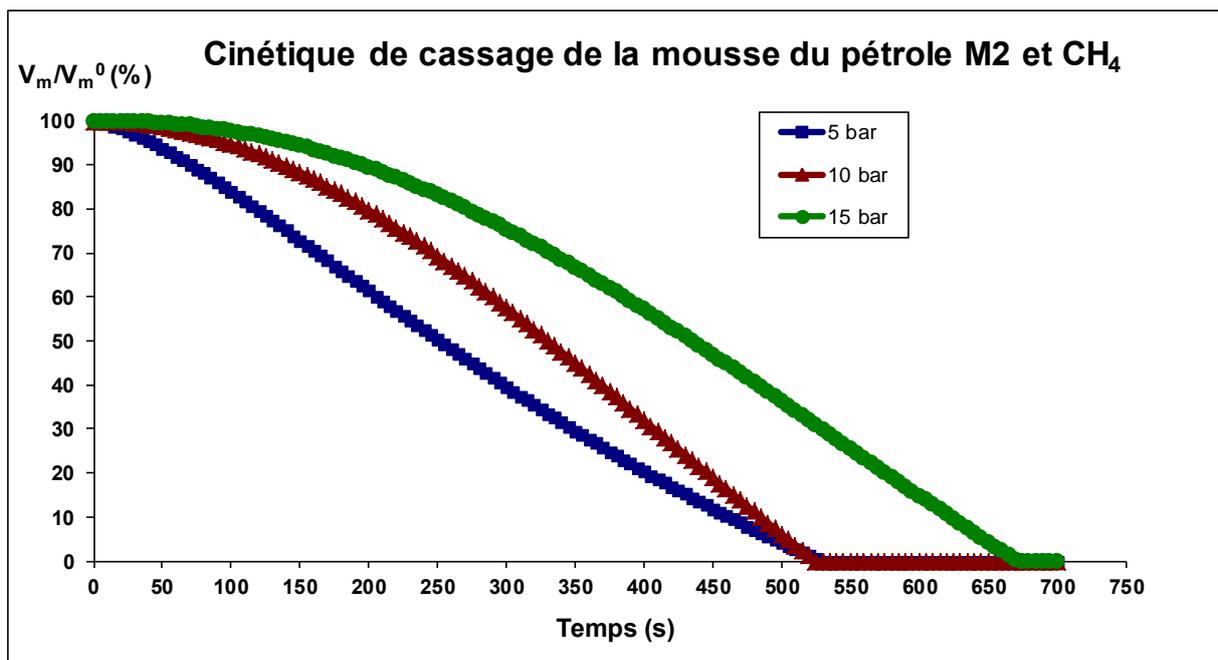


Figure IV-14 Cinétique de cassage du pétrole M2 et CH₄ avec différents pressions de saturation

Si on compare les Figures IV-13 et IV-14, on voit que les mousses faites avec du méthane sont plus stables que celles avec CO₂. Par contre, sur la Figure IV-14, on voit que le temps de vie de la mousse avec 5 bar et 10 bar de CH₄ est le même alors que les temps de demi-vie suivent la tendance observée dans les cas des mousses avec CO₂. Pour bien vérifier cet effet, les expérimentations avec CH₄ ont été faites plusieurs fois sur différents jours et on a confirmé cette observation. Une possible explication à ce phénomène est l'apparition d'un effet solvant dû à la dilution du méthane dans le milieu hydrocarboné mais, malheureusement, nous n'avons pas eu l'opportunité de poursuivre cette étude sur d'autres échantillons de pétrole.

4.2. Effet sur la moussabilité

Nous avons également tenté d'évaluer l'effet de la pression de saturation et du type de gaz sur la quantité de mousse créée dans les pétroles Z1 et M2. La Figure IV-15 montre les valeurs de l'indice de moussabilité obtenues avec le CO₂ comme gaz de saturation pour les pétroles Z1 et M2 et avec le CH₄ pour le pétrole M2.

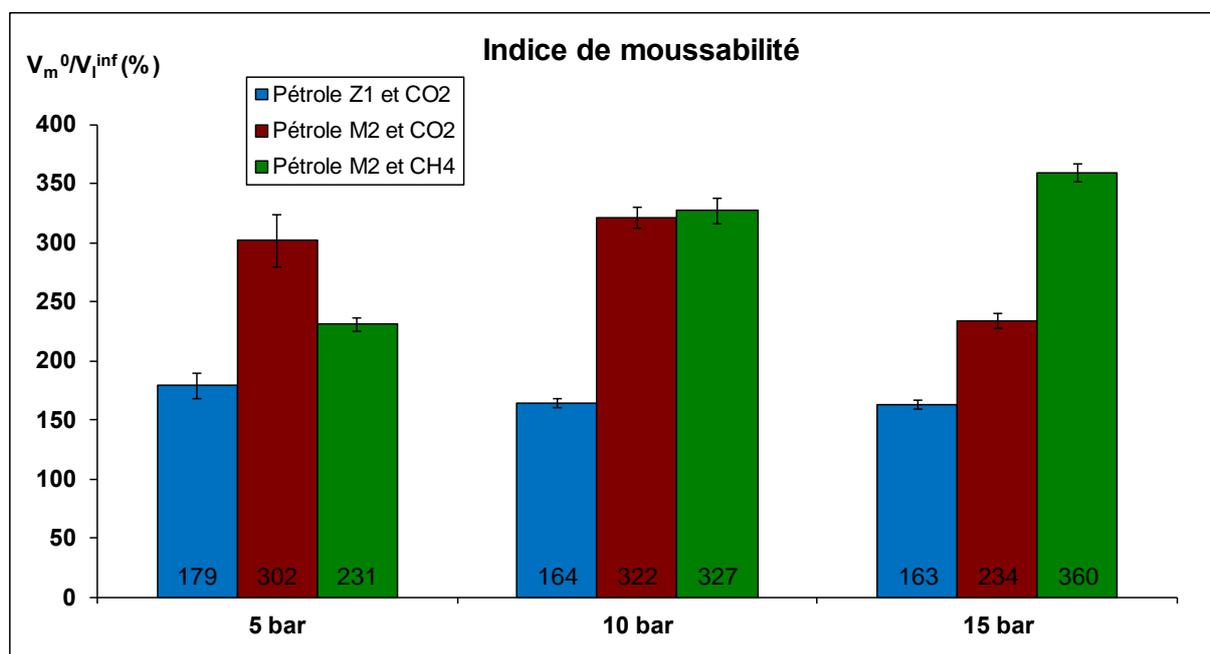


Figure IV-15 Indice de moussabilité des pétroles Z1 avec CO₂ et M2 avec CO₂ et CH₄ avec différentes pressions de saturation

Dans le cas du pétrole Z1 avec CO₂, on peut voir que cet indice reste presque constant indépendamment de la pression de saturation. On peut donc penser que dans le cas de ce pétrole Z1, il existe une limite dans la moussabilité, c'est-à-dire qu'à partir d'une quantité

critique de gaz, la quantité de mousse créée par dépressurisation est indépendante de la quantité de gaz dissous. En revanche, si on compare aux résultats obtenus avec le pétrole M2 avec CO_2 , on voit que la quantité de mousse formée avec ce pétrole est plus importante que la quantité formée avec le pétrole Z1 dans les mêmes conditions. Cette différence dans l'indice de moussabilité peut a priori être expliquée par la différence dans la composition de ces deux pétroles. Le pétrole M2 est un pétrole plus lourd que le pétrole Z1 et donc il contient plus des composés surfactants naturels (comme les résines et les asphaltènes) et donc, en augmentant la concentration de ces composants, on tend à augmenter aussi la moussabilité du pétrole.

D'autre part, si on observe l'évolution de l'indice de moussabilité en fonction de la pression de saturation pour le pétrole M2, on constate que cet indice évolue (contrairement au cas du pétrole Z1). Une augmentation de 5 bar à 10 bar de la pression de saturation entraîne une augmentation logique de la quantité de mousse créée. Par contre, si on utilise une pression de saturation de 15 bar, cet indice diminue fortement en donnant une quantité de mousse formée inférieure à celle de l'essai à 5 bar. Il est très intéressant de noter qu'avec CH_4 comme gaz de saturation, l'augmentation de la pression de saturation produit une augmentation de l'indice de moussabilité sur toute la gamme étudiée. Cet effet est vraisemblablement lié à la composition du pétrole, notamment à la présence de composés basiques dans le pétrole M2 ($\text{TBN} > 1$) et une analyse plus détaillée sera proposée dans le chapitre suivant.

Enfin, si on compare l'indice de moussabilité obtenu sur le pétrole M2 avec 5 bar de CO_2 et de CH_4 , on voit qu'il est supérieur dans le cas du CO_2 , alors qu'on s'attendrait à ce que CH_4 soit plus soluble dans le pétrole que le CO_2 car il s'agit d'un gaz hydrocarbure (en effet c'est l'hydrocarbure le plus simple). Nous tenterons d'interpréter ces résultats dans le prochain chapitre en nous appuyant sur des calculs et des mesures expérimentales de solubilités des gaz dans ces pétroles.

5. Remarques sur la morphologie des bulles et l'évolution de la fraction liquide de la mousse

L'évolution de la taille des bulles dans la mousse est un paramètre important dans le comportement de la mousse. On a essayé de faire des mesures de taille des bulles dans nos tests mais, malheureusement, nous n'avons pas réussi à réaliser des mesures vraiment quantitatives à cause du manque de résolution des images extraites de la vidéo et utilisées avec le logiciel de traitement d'image. De plus, il n'est pas possible de faire la mesure de taille des bulles les plus petites sans l'utilisation d'outils optiques plus précis (comme un

microscope, par exemple). Cependant, il est possible de donner un ordre de grandeur de la taille de ces bulles. Pour les petites, normalement observées dans les premières étapes de la vie de la mousse, le diamètre est inférieur à 0,5 mm ; pour les bulles de taille moyenne, qui est la taille la plus communément observée dans nos essais, on trouve des diamètres entre 0,5 et 2 mm et pour les plus grosses bulles (formées dans le cas des pétroles qui montrent des cassages très rapides ou dans le cas de certains essais avec additifs), la taille peut dépasser 0,5 cm jusqu'à 1 cm. Il est important de noter que lors de nos essais, on a remarqué que dans tous les cas la forme des bulles restait sphérique ou quasi-sphérique. De plus, nous n'avons jamais observé de mousse polyédrique sur les pétroles dans nos conditions expérimentales.

La Figure IV-16 montre l'évolution d'une mousse formée avec le pétrole M2 et 5 bar de CO₂. Pour mieux voir la forme des bulles, on a utilisé une cuve de mesure carrée.

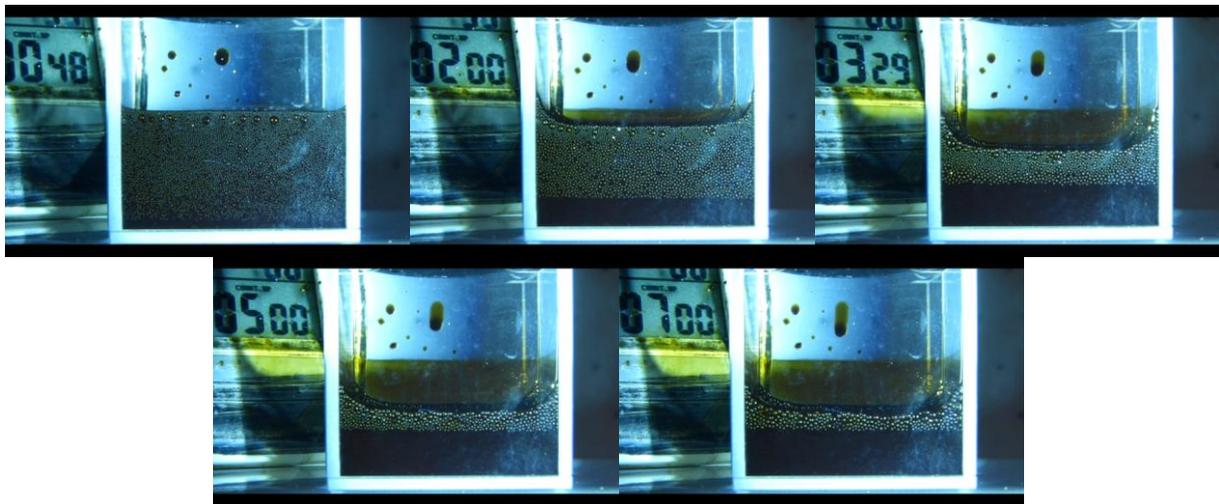


Figure IV-16 Variation de la taille des bulles dans le pétrole M2 et 5 bar de CO₂

D'après la bibliographie sur les mousses aqueuses, la mousse polyédrique commence à apparaître quand la mousse devient sèche (la fraction volumique de liquide devient très faible). Si on observe la Figure IV-16, on voit qu'il existe une quantité de liquide importante dans la mousse. Pour vérifier ce paramètre, nous avons calculé la fraction volumique de liquide dans la mousse Φ_l^v de la façon suivante :

$$\phi_l^v = \frac{V_l^m}{V_m} = \frac{V_l^{\text{inf}} - V_l(t)}{V_m} \quad (4.1)$$

Sur la Figure IV-17 on peut voir l'évolution de la fraction volumique du liquide dans la mousse de pétrole M2 avec 5 bar de CO₂. Il s'agit d'une mousse humide avec des fractions liquides supérieures à 10% dans la mousse. On a vérifié que cette tendance est générale pour tous les pétroles, c'est-à-dire que la quantité de liquide dans la mousse est toujours élevée.

Dans le Tableau IV-6 on montre les valeurs minimales approximées de la fraction volumique de liquide calculées pour les pétroles et dilutions de pétrole testés. Ces valeurs correspondent à la moyenne des derniers points sur la courbe d'évolution de la fraction volumique de liquide (Figure IV-17).

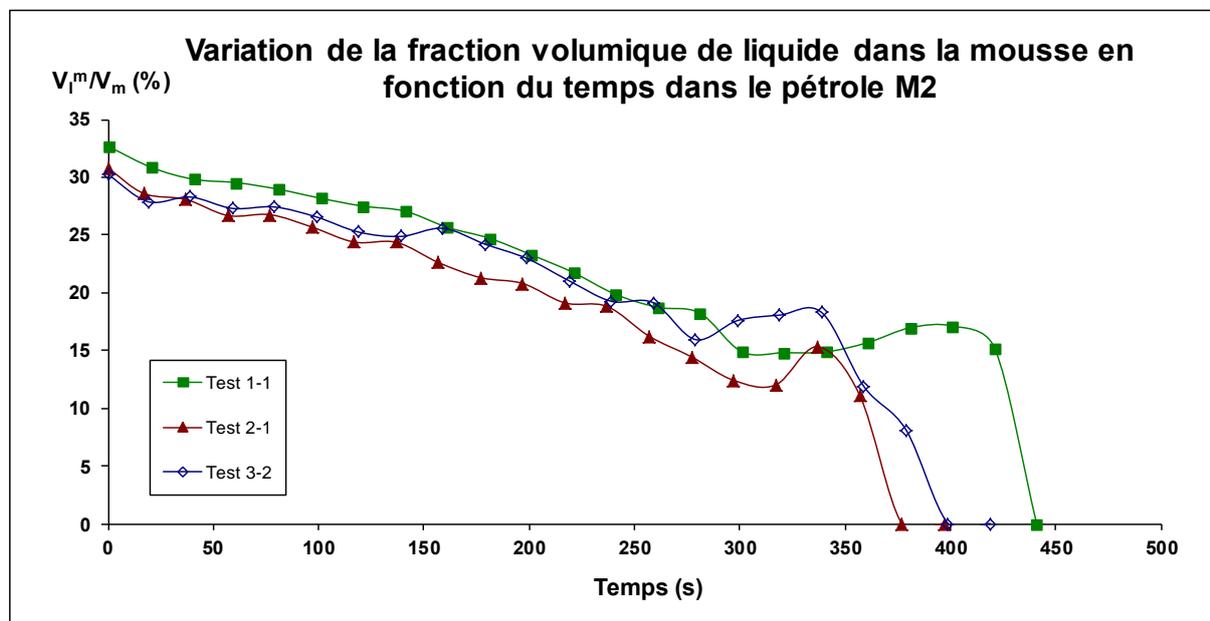


Figure IV-17 Variation de la fraction liquide dans la mousse de pétrole M2 et 5 bar de CO₂

Tableau IV-6 Valeur minimale approximée de la fraction volumique de liquide dans les essais de mousse avec 5 bar de CO₂

Pétrole	ϕ_l^V (%)	Pétrole	ϕ_l^V (%)	Pétrole	ϕ_l^V (%)
F	27	M1	27	DS2	20
Z1	30	M2	17	DH1	13
Z2	26	DS1	27	DH2	13

On constate donc que l'on ne forme pas de mousses sèches dans nos essais de moussage par dépressurisation et que les mousses restent humides pendant leur durée de vie. On peut aussi estimer l'évolution de la fraction volumique de liquide dans la mousse en utilisant les modèles développés pour l'étude des cinétiques de cassage de la mousse et de l'évolution du liquide libre :

$$\phi_l^V = \frac{V_l^{\text{inf}} - V_l(t)}{V_m} = \frac{100 - \frac{V_l}{V_l^{\text{inf}}}}{\frac{V_m}{V_l^{\text{inf}}}} \quad (4.2)$$

6. Etude du cassage de mousse par des additifs chimiques

Le cassage des mousses par des additifs chimiques est le procédé le plus communément utilisé dans l'industrie de par sa simplicité de mise en œuvre et son efficacité. En utilisant la modélisation présentée précédemment, il est possible d'analyser les effets de différents additifs chimiques sur les mousses pétrolières. Les additifs purs ont été dilués dans le solvant approprié (voir Tableau IV-7) jusqu'à 30% en volume. Dans tous les essais, la quantité d'antimousse ajoutée est de 40 ppm en poids en matière active dans le pétrole, dosage recommandé par les fabricants pour tester l'efficacité des additifs. Il faut en effet éviter le surdosage d'additif qui pourrait avoir l'effet opposé à celui souhaité, c'est-à-dire, un effet moussant (Wylde [2010]). Dans tous les cas, un test de référence (test blanc) est systématiquement réalisé pour vérifier les caractéristiques antimousses ou démoussantes du solvant utilisé avec l'additif. Notons que parmi tous les additifs testés, seule la fluorosilicone FS2 nécessite l'utilisation d'un solvant (méthyl isobutyl cétone) qui présente un léger effet antimoussant ($V_m^0/V_1^{inf}=162\pm 7\%$ par rapport à $179\pm 10\%$ pour le pétrole Z1) dans le test de référence avec le pétrole.

Tableau IV-7 Additifs testés dans les pétroles et solvants utilisés

Additif	Type	Solvant	Effet solvant
S1	PDMS	Cyclohexane	Non
S2	PDMS	Cyclohexane	Non
S3	PDMS	Cyclohexane	Non
S4	PDMS	Cyclohexane	Non
S5	PDMS modifié	Cyclohexane	Non
S9	PDMS modifié	Xylène	Non
SOH1	PDMS-OH	Xylène	Non
SOH2	PDMS-OH	Xylène	Non
SOH3	PDMS-OH	Xylène	Non
FS1	Fluorosilicone	Cyclohexane	Non
FS2	Fluorosilicone	Méthyl isobutyl cétone (MIBK)	Oui

6.1. Définition de l'Effet Démoussant (ED) et de l'Effet Antimousse (EA)

Afin de pouvoir comparer facilement les différents additifs en termes d'effet antimoussant et d'effet démoussant, on a défini deux critères qui sont basés sur les paramètres des modèles

présentés dans le chapitre précédent. Ces nouveaux indices permettent de quantifier l'effet antimousse (EA) et l'effet démoussant (ED).

6.1.1. Effet Antimousse (EA)

L'effet antimousse d'un additif est normalement défini comme la capacité du tensioactif à prévenir ou empêcher la formation des mousses ou à réduire la quantité de mousse créée. Pour mesurer cette propriété, on utilisera l'expression suivante :

$$EA = \frac{A'_{1,additif} - A'_{1,sans\ additif}}{A'_{1,sans\ additif}} \quad (4.3)$$

Ce nouvel indice EA exprimé en % correspond à la différence entre les indices de moussabilité obtenus avec l'Equation 3.13 dans les tests avec additif et sans additif par rapport à l'indice de moussabilité du pétrole seul. En fonction de la valeur d'EA, on peut aisément classer les additifs selon leur effet :

- Si EA>0, l'additif a un effet moussant, c'est-à-dire qu'il favorise la formation de mousse.
- Si EA=0, l'additif n'a pas d'effet.
- Si EA<0, l'additif a un effet antimoussant. Plus la valeur de EA est négative, plus l'effet antimousse est important.

De cette façon il est possible de comparer différents additifs pour sélectionner le meilleur antimousse.

6.1.2. Effet Démoussant (ED)

L'effet démoussant est défini comme la capacité d'un additif à casser la mousse déjà formée le plus rapidement possible. Dans nos essais, on a observé une différence de la vitesse de cassage suivant les additifs en fonction du temps. Cela se traduit par le fait que certains démoussants agissent plutôt dans les premiers instants de la vie de la mousse tandis qu'autres ont plus d'effet dans l'étape finale de cassage de la mousse. Pour rendre compte de ce comportement, on a défini l'effet démoussant en comparant deux temps caractéristiques de la cinétique de cassage de la mousse : le temps de demi-vie ($t_{50\%}$) et le temps de vie total de la mousse (t_f) :

$$EDI = \frac{t_{50\% \text{ additif}}}{t_{50\% \text{ sans additif}}} \quad (4.4)$$

$$EDII = \frac{t_{f, \text{ additif}}}{t_{f, \text{ sans additif}}} \quad (4.5)$$

Les valeurs du temps sont calculées selon l'Equation 3.14. En fonction des valeurs d'EDI et EDII, on peut classer les additifs de la façon suivante :

- Si $EDI < 1$ et $EDII < 1$, l'additif a un effet nettement démoussant.
- Si $EDI < 1$ et $EDII > 1$, l'additif a un effet démoussant au départ suivi d'un effet stabilisant de la mousse.
- Si $EDI > 1$ et $EDII < 1$, l'additif a un effet stabilisant au départ suivi d'un effet démoussant à la fin.
- Si $EDI > 1$ et $EDII > 1$, l'additif a un effet stabilisant de la mousse.

Cette classification pourra aider à mieux sélectionner l'agent démoussant selon le problème considéré.

6.2. Effet des additifs chimiques dans les pétroles et 5 bar de CO₂

6.2.1. Pétrole Z1 et 5 bar CO₂

Les premières silicones testées ont été les polydiméthylsiloxanes (PDMS) et les fluorosilicones sur le pétrole Z1. Les cinétiques de cassage sont montrées sur la Figure IV-18 et les effets antimousse et démoussant sur les Figures IV-19 et IV-20 respectivement. On voit que tous les cas, les additifs ont un effet démoussant (Figure IV-18 et IV-20) ainsi qu'un effet antimousse (Figure IV-19) sauf la fluorosilicone FS2 qui a tendance à former un peu plus de mousse (+7% par rapport au pétrole). En revanche, cet additif agit ensuite très rapidement pour casser complètement la mousse (voir la Figure IV-18), même si l'essai blanc avec le solvant MIBK montre un léger effet démoussant. On n'observe pas de différences significatives entre les PDMS et les fluorosilicones. Cependant, de tous les additifs testés, le S2 est le plus performant. Dans le Tableau IV-8 on a résumé les performances des silicones sur le pétrole Z1.

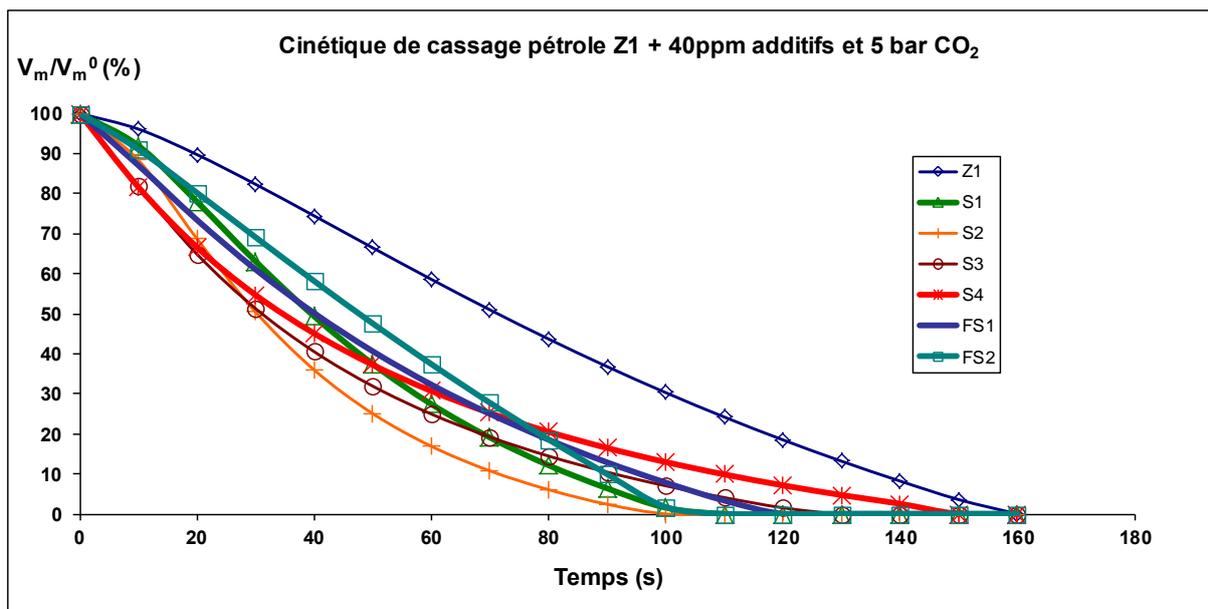


Figure IV-18 Cinétiques de cassage de la mousse sur le pétrole Z1 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

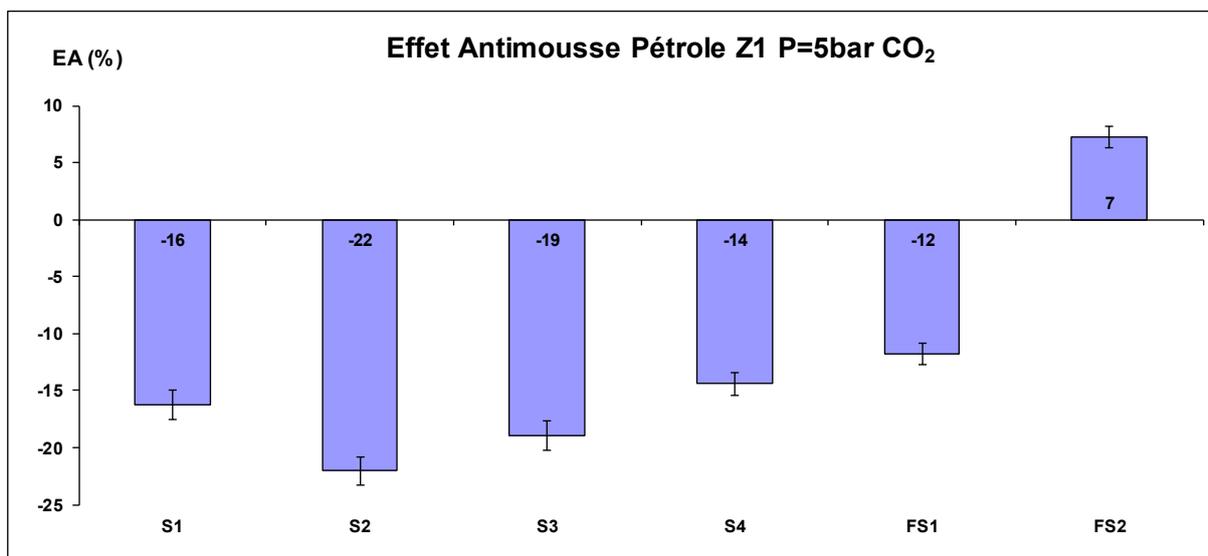


Figure IV-19 Effet Antimousse dans le pétrole Z1 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

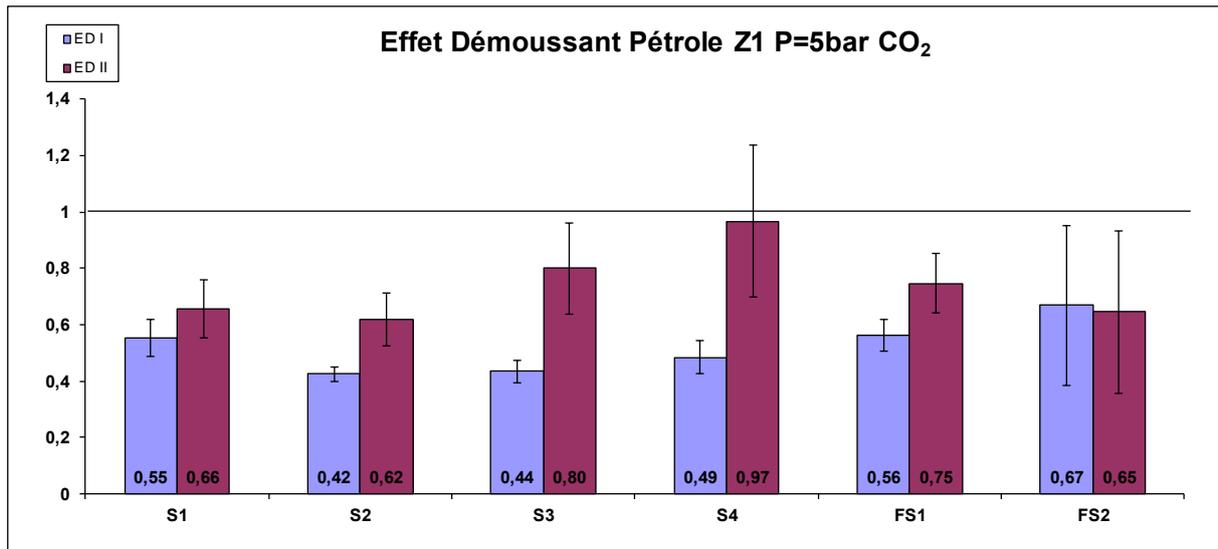


Figure IV-20 Effet Démoussant dans le pétrole Z1 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

Tableau IV-8 Tableau récapitulatif des performances des additifs sur le pétrole Z1 et 5 bar de CO₂. Le symbole ✓ montre l'existence d'un effet et le symbole X montre l'opposé

Additif	Effet Antimousse?	EA (%)	Effet Démoussant?	ED I	ED II
S1	✓	-16±1	✓✓	0,55±0,06	0,66±0,10
S2	✓	-22±1	✓✓	0,42±0,03	0,62±0,09
S3	✓	-19±1	✓✓	0,44±0,04	0,80±0,16
S4	✓	-14±1	✓X	0,49±0,06	0,97±0,27
FS1	✓	-12±1	✓✓	0,56±0,06	0,75±0,11
FS2	X	7±1	✓✓	0,67±0,28	0,65±0,29

6.2.2. Pétrole M1 et 5 bar CO₂

On a testé les mêmes additifs que dans le cas du pétrole Z1 à l'exception du FS2 à cause de l'effet constaté sur l'essai blanc avec le solvant MIBK. Les résultats obtenus sont montrés sur les Figures IV-21, IV-22 et IV-23. Dans le cas du pétrole M1, les effets des additifs sont plus marqués que dans le cas du pétrole Z1. Si on regarde l'effet démoussant (Figure IV-23), seules les silicones S1 et S4 ont un net effet. Même si tous les additifs ont le même EDI, les silicones S2 et S3 se démarquent par un EDII voisin de 1 (pas d'effet sur le temps total de cassage) et la fluorosilicone FS1 exhibe un effet très stabilisant en fin de processus de cassage (EDII=1,35). En ce qui concerne l'effet antimousse, tous les additifs ont une efficacité comparable (ils réduisent la formation de la mousse de presque moitié), la fluorosilicone FS1 étant la meilleure. Le Tableau IV-9 résume les performances des silicones avec le pétrole M1.

Si on compare ces résultats avec ceux obtenus dans le cas du pétrole Z1 (meilleure silicone PDMS S2), dans le cas de M1, ce sont les PDMS S1 et S4 qui exhibent les meilleures performances. Il est intéressant de noter que la fluorosilicone FS1 a un effet contraire à celui observé dans le cas du pétrole Z1, à savoir qu'elle a tendance à stabiliser la mousse en fin de processus avec M1. En revanche, elle présente de meilleures performances antimousses avec M1 qu'avec Z1. Ces résultats montrent que la composition du pétrole joue un rôle très important dans l'efficacité des additifs. Un produit qui se montre très efficace dans un pétrole peut pas l'être dans un autre, comme c'est le cas également avec les additifs casseurs d'émulsion.

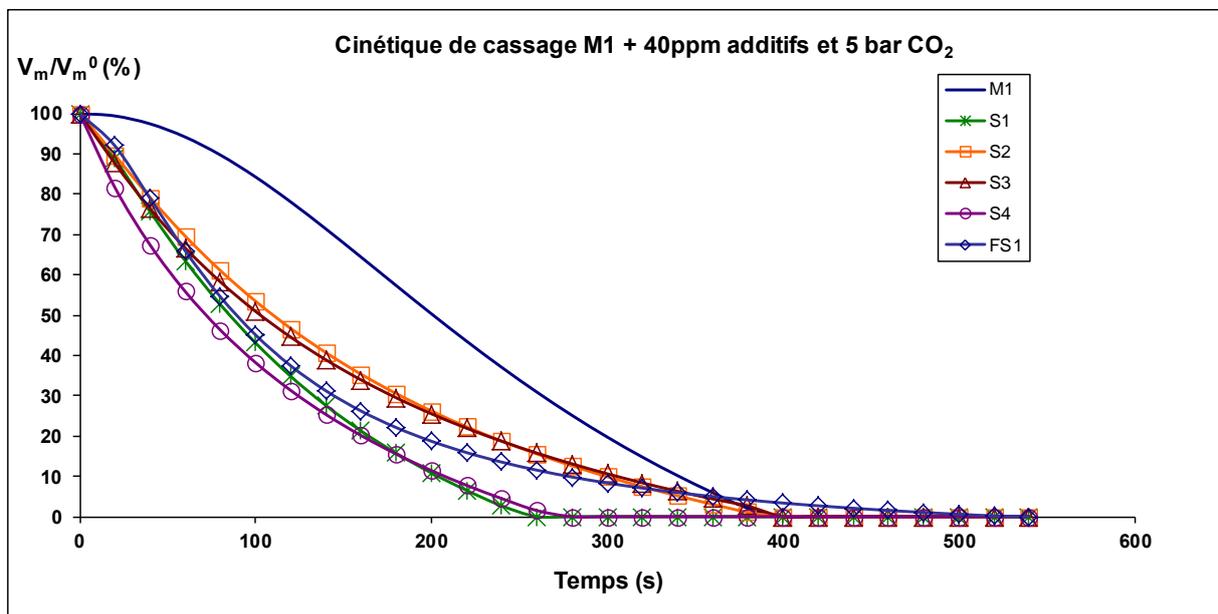


Figure IV-21 Cinétiques de cassage de la mousse sur le pétrole M1 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

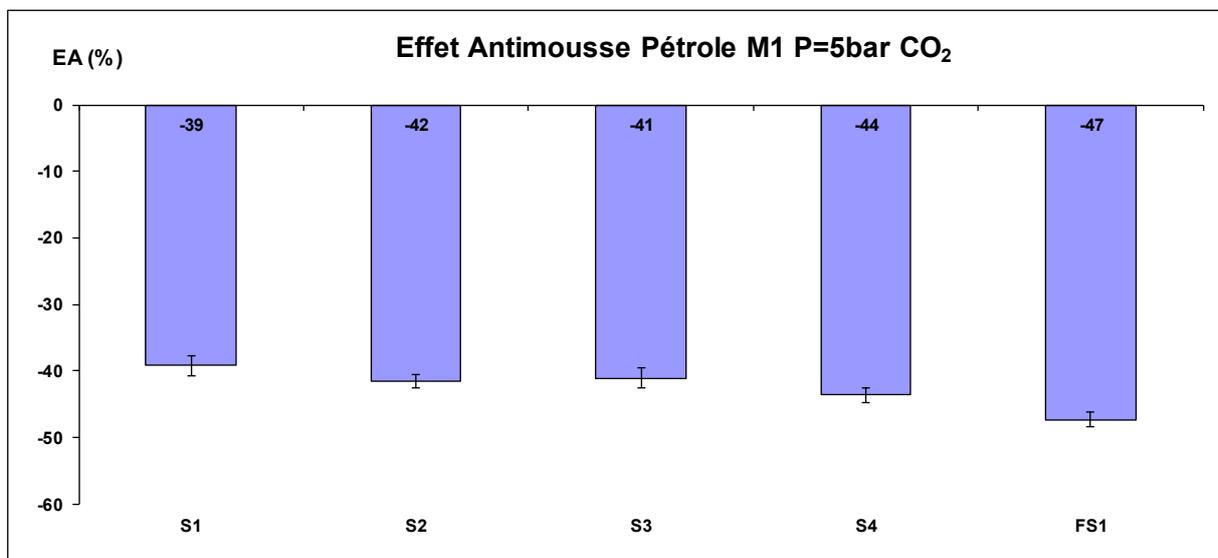


Figure IV-22 Effet Antimousse dans le pétrole M1 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

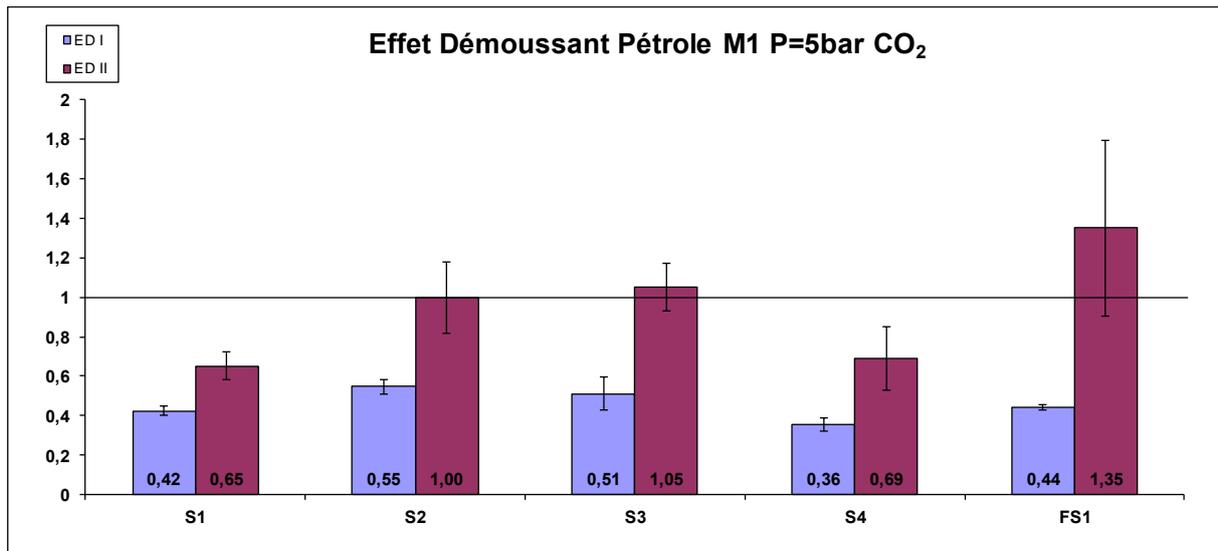


Figure IV-23 Effet Démoussant dans le pétrole M1 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

Tableau IV-9 Tableau récapitulatif des performances des additifs sur le pétrole M1 et 5 bar de CO₂. Le symbole ✓ montre l'existence d'un effet et le symbole X montre l'opposé

Additif	Effet Antimousse?	EA (%)	Effet Démoussant?	ED I	ED II
S1	✓	-39±1	✓✓	0,42±0,02	0,65±0,07
S2	✓	-42±1	✓X	0,55±0,04	1,00±0,18
S3	✓	-41±2	✓X	0,51±0,08	1,05±0,54
S4	✓	-44±1	✓✓	0,36±0,03	0,69±0,16
FS1	✓	-47±1	✓X	0,44±0,01	1,35±0,45

6.2.3. Pétrole Z2 et 5 bar CO₂

Les silicones PDMS-OH ont été testées dans le pétrole Z2, car nous nous sommes trouvés en rupture de stock de pétrole Z1. Cela rend impossible la comparaison entre les familles PDMS et PDMS-OH sur le même échantillon de pétrole Z. Les résultats obtenus d'après la modélisation des données et le traitement selon nos critères des effets antimoussant et démoussant sont montrés sur les Figures IV-24, IV-25 et IV-26 respectivement.

Comme on peut le voir, les silicones SOH1 et SOH2 ont presque le même effet en termes d'EA et d'ED. La silicone SOH3 a un effet antimoussant légèrement plus faible que les autres PDMS-OH mais c'est le meilleur additif démoussant. Il faut noter que la formulation à base de PDMS S9 a un effet très particulier : même si elle est très légèrement moussante, son effet démoussant est très intéressant. Au départ, elle stabilise la mousse et ensuite elle produit un cassage très rapide avec un temps final de vie similaire à celui de SOH3. Si on regarde la Figure IV-26, on voit que son EDI est supérieur à son EDII, ce qui montre que le temps de

demi-vie, utilisé pour la majorité des auteurs pour comparer les additifs chimiques, n'est pas suffisant pour qualifier la performance de l'additif. Les performances des produits sur le pétrole Z2 sont résumées dans le Tableau IV-10.

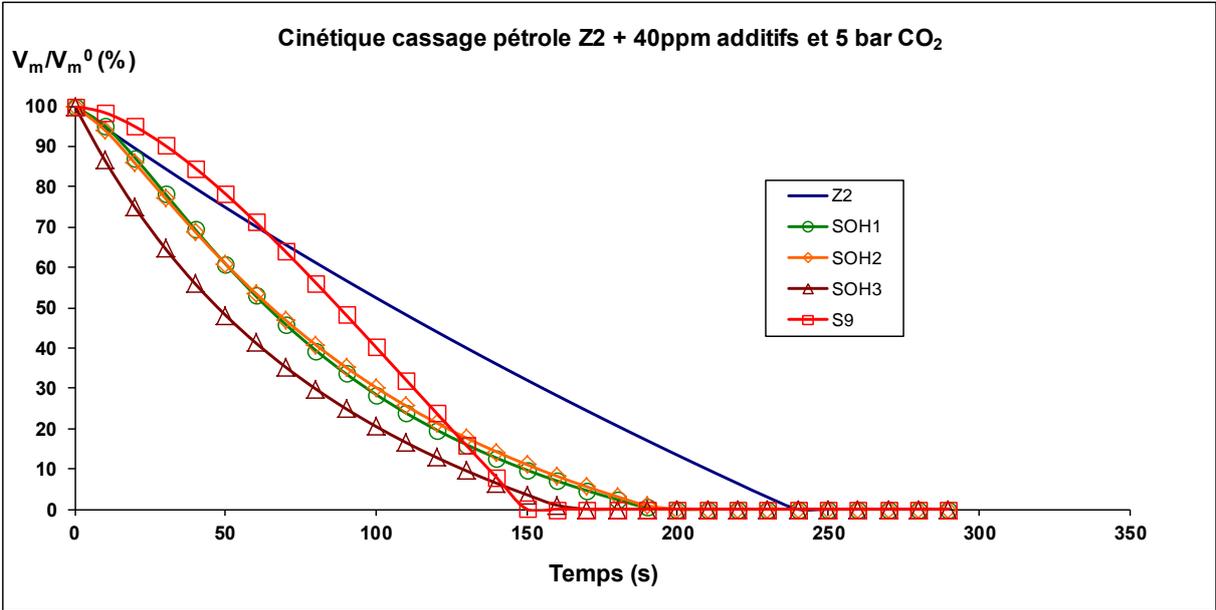


Figure IV-24 Cinétiques de cassage de la mousse sur le pétrole Z2 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

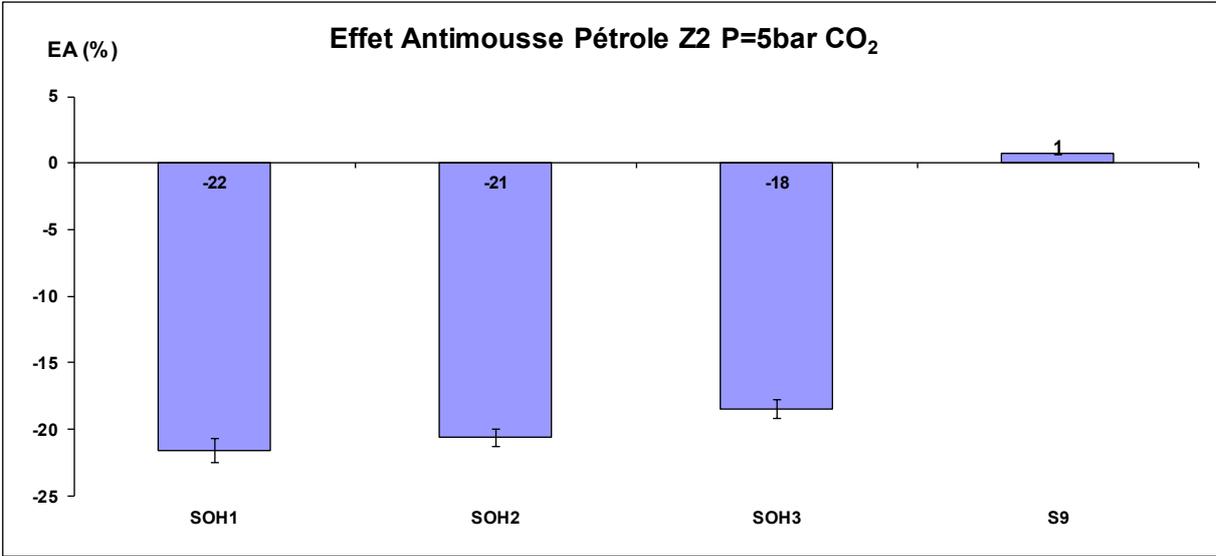


Figure IV-25 Effet Antimousse dans le pétrole Z2 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

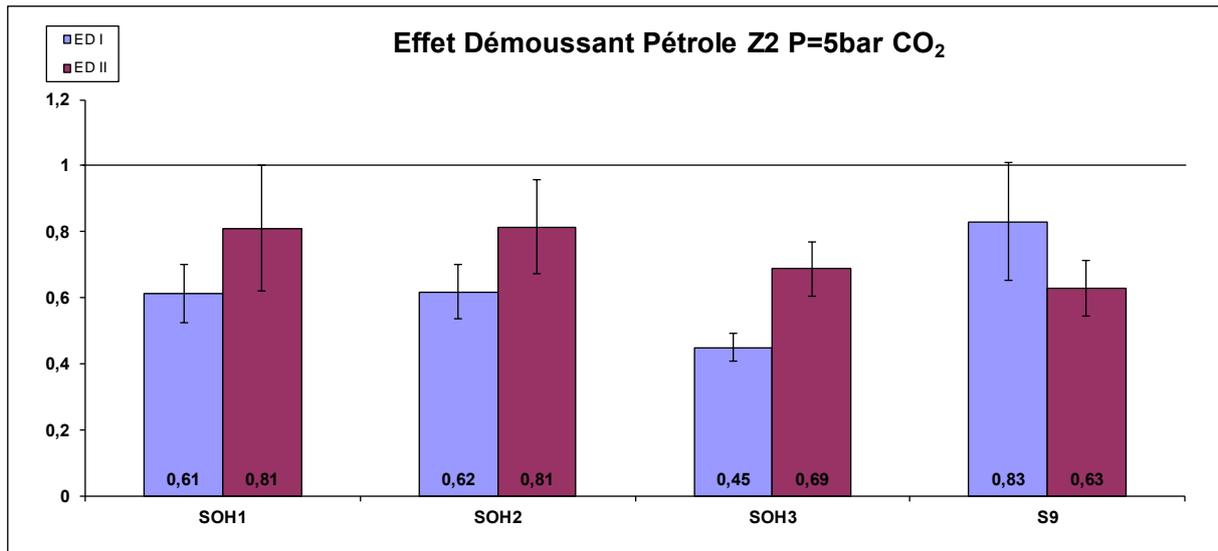


Figure IV-26 Effet Démoussant dans le pétrole Z2 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

Tableau IV-10 Tableau récapitulatif des performances des additifs sur le pétrole Z2 et 5 bar de CO₂. Le symbole ✓ montre l'existence d'un effet et le symbole X montre l'opposé

Additif	Effet Antimousse?	EA (%)	Effet Démoussant?	ED I	ED II
SOH1	✓	-22±1	✓✓	0,61±0,09	0,81±0,19
SOH2	✓	-21±1	✓✓	0,62±0,08	0,81±0,14
SOH3	✓	-18±1	✓✓	0,45±0,04	0,69±0,08
S9	X	0,7±0,1	✓✓	0,83±0,18	0,63±0,08

6.2.4. Pétrole M2 et silicones PDMS et PDMS-OH et 5 bar de CO₂

Avec cet échantillon de pétrole M2, nous avons testé différentes silicones PDMS et PDMS-OH pour pouvoir comparer leurs effets sur le même brut.

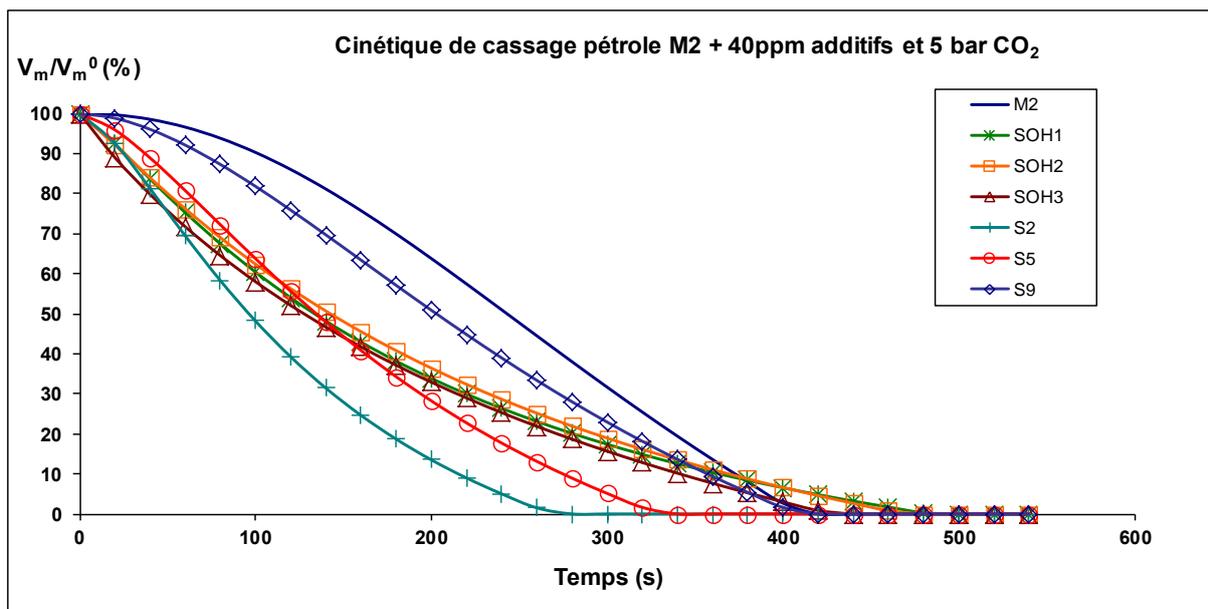


Figure IV-27 Cinétiques de cassage de la mousse sur le pétrole M2 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

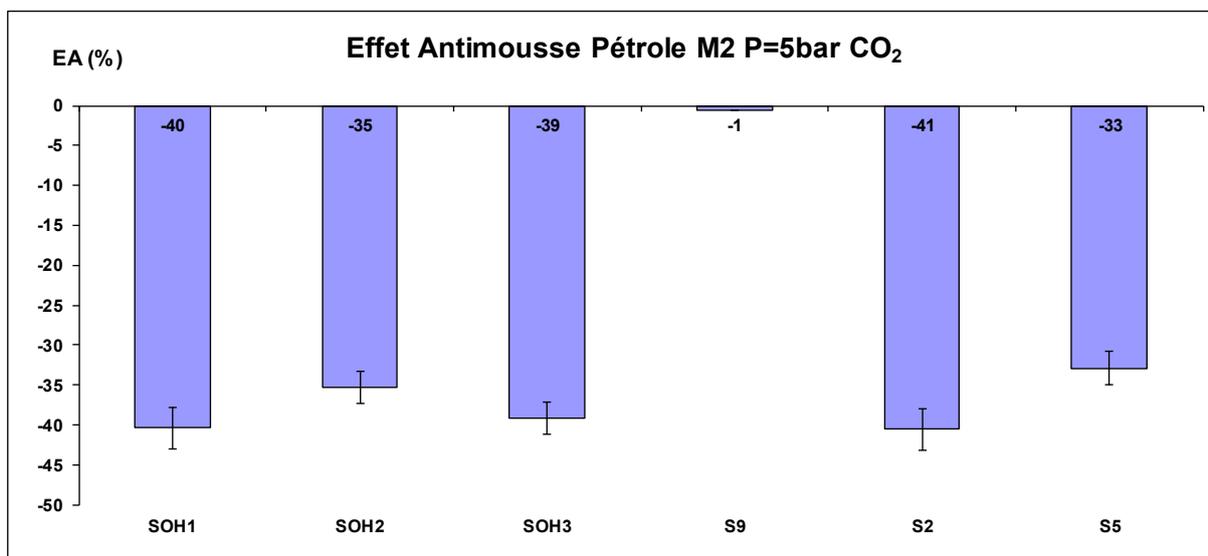


Figure IV-28 Effet Antimousse dans le pétrole M2 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

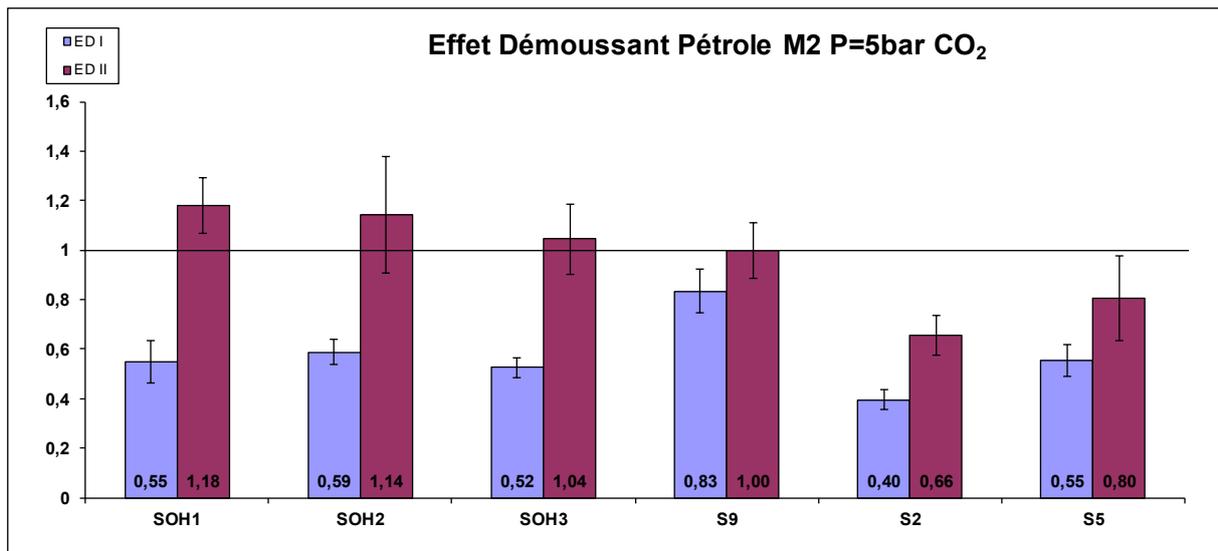


Figure IV-29 Effet Démoussant dans le pétrole M2 avec 40 ppm d'additif et 5 bar de CO₂

Sur les Figures IV-27 et IV-29 on voit que tous les additifs ont un effet démoussant au départ mais seules les silicones PDMS (S2 et S5) ont des caractéristiques nettement démoussantes (EDI et EDII < 1). La formulation silicone S9 a un léger effet démoussant au départ mais cet effet disparaît en fin de cassage. Si on compare les performances des additifs en tant qu'antimousses, on n'observe quasiment aucune différence entre les silicones PDMS et les PDMS-OH. En revanche, la formulation silicone S9 n'a pratiquement aucun effet antimousse. On peut donc conclure que, pour ce pétrole, les silicones PDMS présentent de meilleures performances que les PDMS-OH. Le Tableau IV-11 résume les performances des silicones sur le pétrole M2.

Si on compare les résultats obtenus avec la silicone S2 et les pétroles M1 et M2, on voit que dans les deux cas, l'additif présente le même effet antimousse, mais que l'effet démoussant est en revanche plus significatif dans le cas de M2, ce qui confirme l'intérêt de tester les additifs sur l'échantillon de pétrole le plus représentatif possible du champ pétrolier (rappelons que M1 et M2 correspondent à deux échantillons prélevés à des temps différents sur le même champ).

Tableau IV-11 Tableau récapitulatif des performances des additifs sur le pétrole M2 et 5 bar de CO₂. Le symbole ✓ montre l'existence d'un effet et le symbole X montre l'opposé

Additif	Effet Antimousse?	EA (%)	Effet Démoussant?	ED I	ED II
SOH1	✓	-40±3	✓X	0,55±0,08	1,18±0,59
SOH2	✓	-35±2	✓X	0,59±0,05	1,14±0,24
SOH3	✓	-39±2	✓X	0,52±0,04	1,04±0,14
S9	X	-0,6±0,1	✓X	0,83±0,09	1,00±0,11
S2	✓	-41±3	✓✓	0,40±0,04	0,66±0,17
S5	✓	-33±2	✓✓	0,55±0,07	0,80±0,17

6.3. Effet des additifs chimiques dans le pétrole M2 : effet du type de gaz

Nous avons également testé la silicone S2 dans le pétrole M2 saturé avec 5 bar de CH₄ (gaz davantage représentatif des conditions de champ) pour étudier l'effet du type de gaz qui permet de générer la mousse par dépressurisation sur les performances de l'additif. Les Figures IV-30, IV-31 et IV-32 permettent de comparer les courbes cinétiques et les valeurs de EA et ED obtenues pour les mousses faites avec 5 bar de CO₂ et CH₄.

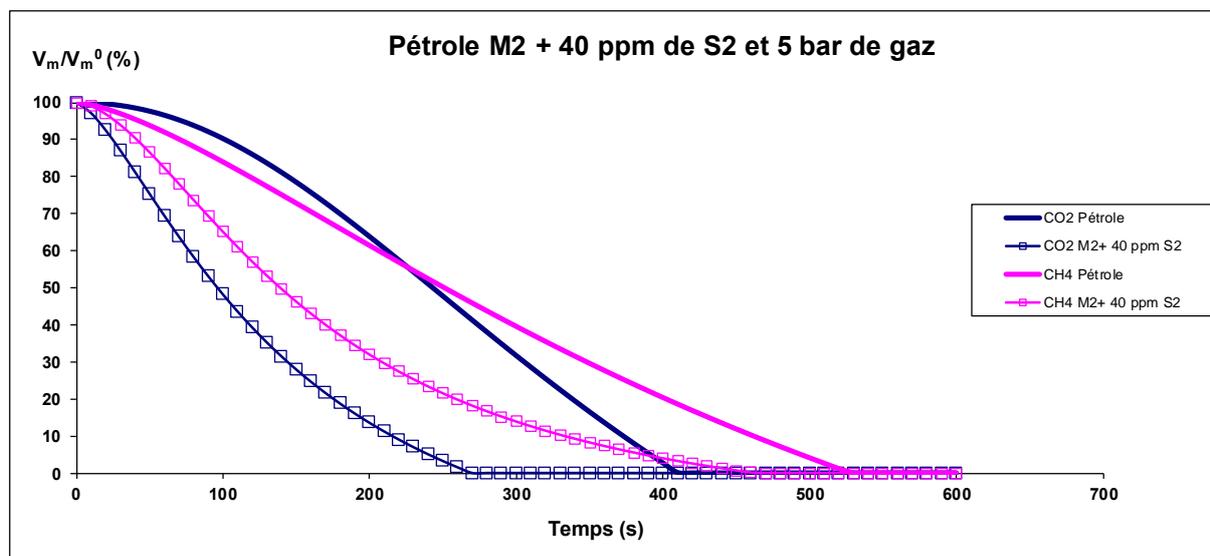


Figure IV-30 Cinétiques de cassage de la mousse sur le pétrole M2 avec 40 ppm de S2 et 5 bar de gaz

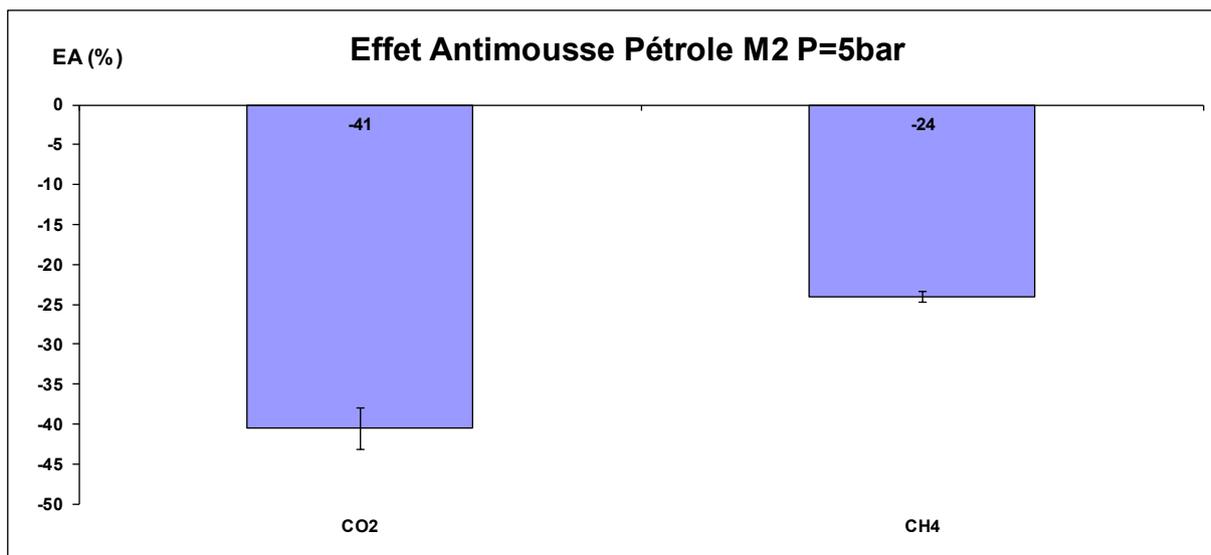


Figure IV-31 Effet Antimousse dans le pétrole M2 avec 40 ppm de S2 et 5 bar de gaz

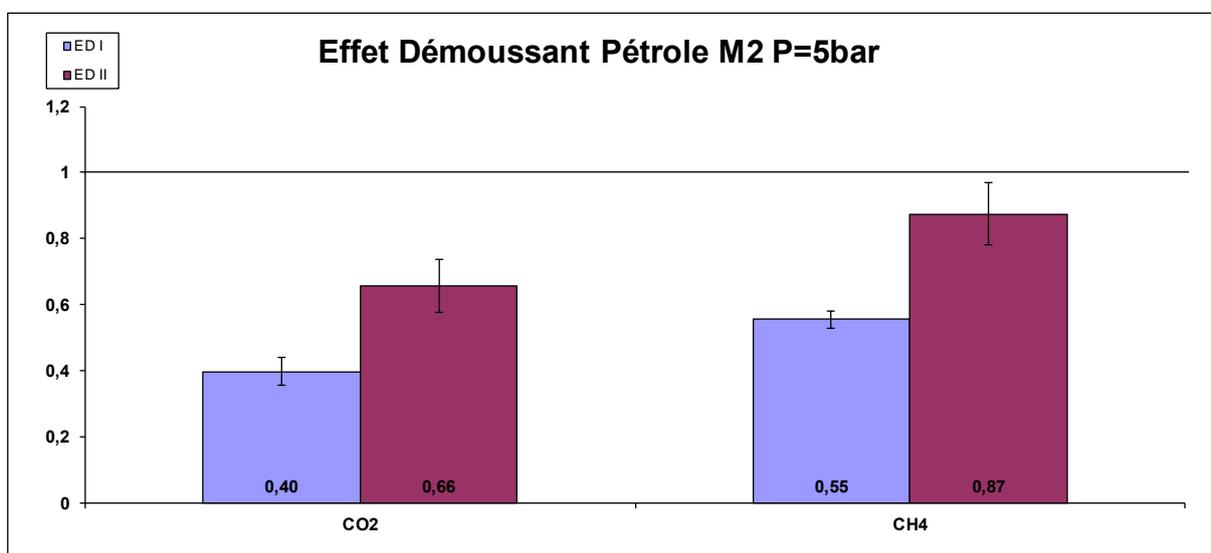


Figure IV-32 Effet Démoussant dans le pétrole Z2 avec 40 ppm de S2 et 5 bar de gaz

Comme on peut le voir sur la Figure IV-30, la silicone S2 a un effet démoussant dans la mousse faite avec les deux gaz suivant une tendance très similaire. La Figure IV-32 montre dans les deux cas un effet nettement démoussant mais cependant plus marqué dans le cas des mousses faites avec CO₂. Il faut noter qu'il en est de même concernant l'effet antimousse (Figure IV-31) qui est plus significatif avec le CO₂. Ces différences suivant la nature du gaz confirment l'intérêt de tester les additifs avec un système le plus représentatif possible des conditions de champ.

Tableau IV-12 Tableau récapitulatif des performances des additifs sur le pétrole M2 + 40 ppm de S2 et 5 bar de gaz. Le symbole ✓ montre l'existence d'un effet et le symbole X montre l'opposé

Gaz	Effet Antimousse?	EA (%)	Effet Démoussant?	ED I	ED II
CO ₂	✓	-41±3	✓✓	0,40±0,04	0,66±0,17
CH ₄	✓	-24±1	✓✓	0,55±0,02	0,87±0,09

7. Conclusion

Le test de démoissage par dépressurisation a été utilisé pour tester plusieurs pétroles de compositions et de propriétés physicochimiques différentes. Dans tous les cas, le modèle mathématique de type logistique utilisé pour la modélisation de la cinétique de cassage de la mousse comme pour l'évolution du liquide libre apparaît comme le plus approprié pour la modélisation empirique des données expérimentales.

Concernant l'étude du comportement moussant des pétroles, on a constaté que plus le fluide pétrolier (pétrole ou dilution de pétrole) est visqueux, plus la mousse formée est stable. D'autre part, la composition du pétrole joue également un rôle sur cette stabilité. Les pétroles contenant davantage de composés de nature tensioactive (comme les asphaltènes et les résines) tendent à produire des mousses plus stables. Il en va de même pour la moussabilité, puisqu'on constate que plus la concentration en composés dits tensioactifs est importante, plus on forme de mousse. Dans tous les cas, les mousses produites par dépressurisation sont humides avec des bulles sphériques ou quasi-sphériques.

Le type de gaz et la pression de saturation sont des paramètres qui jouent sur la stabilité et la moussabilité des systèmes. De façon générale, plus la pression de saturation est élevée, plus la mousse est stable. Par contre, on n'observe pas de relation directe entre l'augmentation de la pression de saturation et la quantité de mousse créée. Pour des pétroles à faible concentration en composés tensioactifs (comme le Z1), l'indice de moussabilité reste constant quelle que soit la pression de saturation (entre 5 et 15 bar) pour le cas du CO₂. En revanche, dans le cas du pétrole M2, la présence des composants basiques dans le milieu liquide a vraisemblablement comme conséquence une réduction de la moussabilité avec la pression. Si on compare l'effet du type de gaz (CO₂ et CH₄ à 5 bar) dans le pétrole M2, on constate que le CO₂ donne des quantités de mousse supérieures à celles obtenues avec le CH₄ mais, cependant la stabilité des mousses produites avec CH₄ est supérieure à celles avec CO₂.

L'étude de l'action de différents additifs chimiques antimousse ou démoissants (silicones PDMS, silicones PDMS-OH et fluorosilicones) sur le comportement des mousses pétrolières, a permis de mettre en évidence des modes d'action différents. Pour étudier ces effets et

classer les additifs selon leur efficacité en tant qu'antimousse ou démoissant, on a défini deux paramètres : l'effet antimousse, EA et l'effet démoissant, ED. Nous avons mis clairement en évidence la spécificité du couple système pétrolier/additif, et nous avons montré que l'on peut aisément sélectionner l'additif le plus pertinent en utilisant la méthodologie développée.

Dans le chapitre suivant, nous allons tenter d'analyser et d'interpréter plus en détail ces résultats expérimentaux en fonction des caractéristiques physiques, chimiques et physico-chimiques des différents systèmes étudiés.