



HAL
open science

PRODUCTION D'HUILES LOURDES PAR DÉPRESSURISATION : ÉTUDE DES INTERFACES HUILE-AIR ET MODÉLISATION DU PROCÉDÉ

Fabrice Bauget

► **To cite this version:**

Fabrice Bauget. PRODUCTION D'HUILES LOURDES PAR DÉPRESSURISATION : ÉTUDE DES INTERFACES HUILE-AIR ET MODÉLISATION DU PROCÉDÉ. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Paris Sud - Paris XI, 2002. Français. NNT : . tel-00006787

HAL Id: tel-00006787

<https://theses.hal.science/tel-00006787v1>

Submitted on 1 Sep 2004

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N°D'ORDRE : |_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|_|

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

présentée

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCE

DE L'UNIVERSITE DE PARIS 11, ORSAY

Discipline : Physique des Liquides

par

Fabrice BAUGET

Soutenue le 14 octobre 2002

**PRODUCTION D'HUILES LOURDES PAR
DÉPRESSURISATION : ÉTUDE DES INTERFACES HUILE-AIR
ET MODÉLISATION DU PROCÉDÉ**

JURY

Mme D. LANGEVIN, Directeur

M. H. BERTIN, Rapporteur

M. P. CORDELIER, Examineur

M. J.P. HULIN, Président

M. R. LENORMAND, Examineur

M. L. TADRIST, Rapporteur

«La vérité est pareille à l'eau qui prend la forme du vase qui la contient»

Ibn Khaldun (1332-1406)

REMERCIEMENTS

Je remercie l'Institut Français du Pétrole promoteur de la thèse, Monsieur Jean-François Kalaydjian et Monsieur Vincent Richard les directeurs qui m'ont accueilli au sein de la division gisement.

Je tiens avant tout à remercier chaleureusement Madame Dominique Langevin, ma directrice de thèse, et Monsieur Roland Lenormand, mon responsable IFP. Je leur suis tout d'abord reconnaissant d'avoir accepté de me diriger pendant ces trois ans de thèse. J'ai eu la sensation d'être considéré de leur part plus comme un collaborateur qu'un étudiant et d'avoir été orienté plus que dirigé. Non seulement je n'aurais pu réaliser ce travail de thèse sans leurs conseils, mais je leur suis surtout reconnaissant de m'avoir montré une approche de la recherche audacieuse, intègre, critique et enthousiaste. Je tiens à préciser qu'il est difficile d'exprimer en quelques mots ma reconnaissance pour tout ce que j'ai appris à leurs côtés tant d'un point de vue scientifique qu'humain.

Je remercie sincèrement Monsieur Henri Bertin et Monsieur Lounes Tadrict d'avoir accepté la charge de rapporteur, de l'attention qu'ils ont porté à la lecture du manuscrit et de leurs remarques qui m'ont permis de prendre du recul sur l'ensemble de mon travail de thèse. Je remercie également Monsieur Philippe Cordelier et Monsieur Jean-Pierre Hulin d'avoir accepté de juger mon travail.

Le travail de recherche n'est possible que si il y a échange d'idées, je tiens donc à remercier Monsieur Jean-François Argillier, Monsieur Yves Bayon, Monsieur Philippe Cordelier, Monsieur Patrick Egermann, Madame Isabelle Hénaut et Monsieur Yanis Yortsos pour les discussions constructives qui m'ont permis d'avancer dans la compréhension et l'établissement de la modélisation.

Je remercie l'ensemble de la division gisement de l'Institut Français du Pétrole dans laquelle j'ai passé deux années de thèse, pour la bonne humeur et les différents échanges que j'ai pu avoir.

Je tiens également à remercier tous les membres de l'équipe de Madame Dominique Langevin, au Laboratoire de Physique des Solides à Orsay, parmi laquelle j'ai passé ma première année de thèse, pour la bonne ambiance qu'il y règne, pour avoir supporté les odeurs spécifiques aux bruts pétroliers que j'étudiais, et surtout pour l'ensemble de ce que j'ai appris à leur contact.

Je remercie enfin Monsieur Benoît Prempain et Mademoiselle Lakhchaf Laela de l'Institut Français du Pétrole, Monsieur Claude Germain et Madame Agnès Ranger du Laboratoire de Physique des Solides pour m'avoir enseigné quelques bases en technique de laboratoire qui ont été essentielles pour l'extraction des asphaltènes et des résines.

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION	9
1. LA PRODUCTION PAR DÉPLÉTION DES HUILES LOURDES	11
1.1. LA PRODUCTION PAR <i>SOLUTION GAS DRIVE</i>.....	13
1.2. LES HUILES LOURDES.....	17
1.2.1. Observations expérimentales.....	17
1.2.2. La terminologie "huile moussante"	19
1.2.3. Effet physico-chimique ou simple effet de viscosité ?	20
1.2.4. Conclusion	21
1.3. MODÉLISATION DU PROCESSUS DE <i>SOLUTION GAS DRIVE</i>	22
1.3.1. Notions de base	22
1.3.1.1. Approche "milieu poreux".....	23
1.3.1.2. Milieu continu.....	23
1.3.1.3. Volume élémentaire	23
1.3.1.4. Volume élémentaire représentatif.....	23
1.3.2. Modèles d'écoulement.....	24
1.3.2.1. Approche "Darcy"	24
1.3.2.2. Approche réseau de pores.....	30
1.3.2.3. Approche population de bulles.....	31
1.4. CONCLUSION.....	37
2. EFFET DES ASPHALTÈNES ET DES RÉSINES A L'INTERFACE HUILE-GAZ	39
2.1. PROPRIÉTÉS INTERFACIALES DES ASPHALTÈNES ET DES RÉSINES.....	41
2.2. STABILITÉ DES MOUSSES.....	45
2.3. MÉTHODES EXPÉRIMENTALES.....	49
2.3.1. Extraction des résines et des asphaltènes	49
2.3.2. Moussabilité	50
2.3.3. Temps de vie de films	50
2.3.4. Les propriétés de surface.....	51
2.3.5. Micromodèle.....	51

2.4. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS.....	53
2.4.1. Moussabilité.....	53
2.4.2. Temps de vie de films	56
2.4.3. Tension dynamique et viscoélasticité de surface	58
2.4.3.1. Les solutions d'asphaltènes	58
2.4.3.2. Les solutions d'asphaltènes et de résines	64
2.4.4. Études en micromodèle.....	66
2.4.4.1. La nucléation.....	66
2.4.4.2. La coalescence.....	67
2.5. CONCLUSION	68
3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"	69
3.1. MODÉLISATION	71
3.1.1. Apparition de la phase gazeuse	71
3.1.1.1. Équilibre d'une bulle dans un liquide	71
3.1.1.2. Modèle thermodynamique "homogène"	75
3.1.1.3. Modèle thermodynamique "hétérogène"	76
3.1.1.4. Modèle de microbulles préexistantes	78
3.1.1.5. Discussion sur la terminologie et les modèles utilisés dans le domaine pétrolier	86
3.1.1.6. Relation entre nombre de bulles et taux de déplétion	89
3.1.1.7. Conclusion.....	93
3.1.2. Modélisation du transfert dans la phase gazeuse	94
3.1.2.1. Diffusion à l'échelle d'une bulle	94
3.1.2.2. Diffusion avec une population de bulles	96
3.1.2.3. Échelle de Darcy : diffusion/convection	98
3.1.3. Écoulement des phases	102
3.1.3.1. Écoulement du gaz dispersé	103
3.1.3.2. Écoulement des phases continues	105
3.1.4. Le code numérique.....	107
3.1.4.1. Système d'équations continues.....	107
3.1.4.2. Conditions limites	107
3.1.4.3. Discrétisation et schéma numérique	108
3.1.4.4. Les entrées-sorties du code.....	110
3.1.5. Récapitulatif du modèle.....	111
3.2. RÉSULTATS	112
3.2.1. Les seuils de mobilisation du gaz (S_g^{mob} et S_{gc}) sont des paramètres ajustables	112
3.2.1.1. Huile légère.....	112
3.2.1.2. Huiles lourdes	122
3.2.1.3. Conclusion.....	134
3.2.2. Utilisation d'un critère de mobilisation du gaz (λ_{mob}^*) indépendant des conditions de déplétion.....	137
3.3. CONCLUSION	140
CONCLUSION.....	143
RÉFÉRENCES.....	146

INTRODUCTION

Deux catégories de réservoirs pétroliers peuvent être distinguées : les réservoirs d'huiles légères et les réservoirs d'huiles lourdes et extra lourdes. La première catégorie est celle des champs du Moyen-Orient par exemple. Les réserves d'huiles lourdes, d'une importance équivalente à celles d'huiles légères, sont situées principalement au Canada et au Venezuela. Ces huiles lourdes sont par définition des huiles très visqueuses, de 1 à 55 Pa.s (1 000 cp à 55 000 cp), leur production est donc plus difficile. La technique la plus favorable pour pallier au problème lié à la viscosité est la méthode thermique. Celle-ci consiste à injecter par un premier puits horizontal de la vapeur afin de réduire la viscosité de l'huile en place et de récupérer celle-ci par gravité par un second puits parallèle au premier. Cette technique est fort coûteuse, et ne peut pas toujours être mise en œuvre pour des raisons telles que la présence d'une nappe d'eau, la concentration élevée en argile, etc.. Pour ces motifs, économiques ou techniques, un grand nombre de ces réservoirs est produit en production froide par déplétion du réservoir (*Solution Gas Drive*), ce type de production est moins coûteux et plus simple à réaliser.

Bien que l'on s'attende à un faible rendement de ces champs, les premiers historiques de production montrent un taux de récupération bien supérieur aux prédictions. En effet, pour un taux de récupération attendu inférieur à 5 %, on atteint jusqu'à 15 %. Pour des considérations économiques évidentes, la compréhension des phénomènes en jeu est indispensable afin d'obtenir des outils de prédiction fiables. Le sujet de la thèse est d'essayer d'élaborer un tel outil.

Deux mécanismes déduits d'observations sur champs sont mis en avant pour expliquer la production élevée des huiles lourdes. Le premier est géomécanique : dans certains réservoirs non consolidés des chenaux de haute perméabilité, appelés "*Wormholes*" ou "trous de vers", se forment par décompaction, augmentant ainsi le rayon de drainage du puits. Le second mécanisme est lié à un retard à l'équilibre dû au changement de phase, et au maintien du gaz sous forme dispersée pour des saturations en gaz plus élevées. Ce dernier point permet une production de l'huile plus importante par expansion du gaz. Selon certains auteurs, l'état hors équilibre et le maintien sous forme dispersée du gaz peuvent s'expliquer : soit par la forte viscosité des huiles lourdes qui intensifie l'état hors équilibre et limite la coalescence des bulles, soit par leur nature "moussante" impliquant des effets interfaciaux liés à leurs compositions. Cette dernière hypothèse très controversée vient du fait que certaines huiles au

Canada sont produites sous la forme d'une "mousse au chocolat" stable plusieurs heures hors milieu poreux.

Jusqu'à présent les simulateurs de réservoir permettaient la simulation d'un tel mécanisme pour les huiles légères. Un problème se pose maintenant avec les huiles lourdes. En effet, les simulateurs classiques ne prennent pas en compte ce type de mécanisme hors équilibre ni l'écoulement d'une phase gaz dispersée. Le sujet de la thèse est de fournir un modèle tenant compte de ces aspects. Pour cela, il est nécessaire de prendre en compte les divers mécanismes physiques afin d'obtenir un modèle cohérent permettant la simulation de la production par *Solution Gas Drive* pour des huiles lourdes et légères.

Bien que la compréhension de l'aspect géomécanique semble bien avancée et admise par des preuves tant en laboratoires que sur champs, il demeure des points d'ombre en ce qui concerne l'aspect "moussant" : aspect physico-chimique de l'interface, effet de viscosité, etc.. Dans un premier temps il était important de déterminer si l'on pouvait prendre en compte l'aspect physico-chimique. La première année de thèse a donc été consacrée à l'étude de mousses d'huile et de l'effet des asphaltènes et des résines sur celles-ci. Les deux années suivantes ont été consacrées à l'élaboration d'un modèle 1D avec une approche mécanique des fluides. Un grand nombre de travaux a déjà été réalisé essentiellement à l'échelle des pores. Or, dans l'optique du simulateur réservoir, il est nécessaire d'avoir un modèle à une échelle plus grande. C'est le propos principal de cette thèse : obtenir un modèle à une échelle du type "approche de Darcy" ne faisant intervenir que des grandeurs mesurables.

Le premier chapitre concerne l'état de l'art en matière d'huiles dites "moussantes", que ce soit expérimentalement ou d'un point de vue modélisation et simulation.

Le second chapitre sera consacré aux propriétés interfaciales de solutions modèles d'asphaltènes et de résines dans du toluène. Les deux premières parties porteront sur l'état de l'art concernant les propriétés physico-chimiques des asphaltènes et des résines, et sur la stabilité des mousses. Ensuite, les études hors milieu poreux des paramètres globaux (moussabilité, temps de vie de film, viscosité de volume) et des propriétés interfaciales (tension et rhéologie de surface) montreront un effet important des concentrations en asphaltènes et en résines. Enfin, des observations sur micromodèles avec les mêmes solutions seront données.

La dernière partie porte sur la modélisation du processus de *Solution Gaz Drive*. Dans un premier temps, une revue critique de la physique de la nucléation sera faite. Les notions de base nécessaires en thermodynamique seront rappelées, afin de comprendre la stabilité d'une bulle dans un liquide et permettant de décrire le mécanisme de nucléation. La croissance de ces bulles par transfert de masse sera alors discutée, et la notion de coefficient de transfert volumique permettant la modélisation du grossissement des bulles dans une "approche de Darcy" sera introduite. Enfin, les simulations d'expériences de dépressurisation avec différentes huiles lourdes et une huile légère seront présentées et discutées.

1. LA PRODUCTION PAR DÉPLÉTION DES HUILES LOURDES

1.1. LA PRODUCTION PAR <i>SOLUTION GAS DRIVE</i>	13
1.2. LES HUILES LOURDES	17
1.2.1. Observations expérimentales.....	17
1.2.2. La terminologie "huile moussante"	19
1.2.3. Effet physico-chimique ou simple effet de viscosité ?	20
1.2.4. Conclusion	21
1.3. MODÉLISATION DU PROCESSUS DE <i>SOLUTION GAS DRIVE</i>	22
1.3.1. Notions de base	22
1.3.1.1. Approche "milieu poreux"	23
1.3.1.2. Milieu continu	23
1.3.1.3. Volume élémentaire	23
1.3.1.4. Volume élémentaire représentatif.....	23
1.3.2. Modèles d'écoulement.....	24
1.3.2.1. Approche "Darcy"	24
1.3.2.2. Approche réseau de pores.....	30
1.3.2.3. Approche population de bulles.....	31
1.4. CONCLUSION	37

Cette partie est consacrée à une étude bibliographique concernant l'aspect "moussant" de la production par déplétion des huiles lourdes. Son propos est de faire ressortir la problématique du sujet, et non d'établir une liste détaillée des publications existantes. Deux très bonnes études bibliographiques ont été faites par Sheng *et al.* [Sheng 1999b], et Renard *et al.* [Renard 2000].

Plusieurs réservoirs d'huiles lourdes ont été mis en production froide au Canada [Loughead 1992, Smith 1988] et au Venezuela [Huerta 1996, Mirabal 1996a, Mirabal 1996b]. Dans tous les cas, ces champs montrent des taux de récupération bien supérieurs à ceux qui pouvaient être attendus [Renard 2000, Sheng 1999b]. La productivité des puits peut être 10 à 20 fois supérieure aux prédictions [Ehlig-Economides 2000, Maini 2001]. Deux phénomènes pourraient expliquer de telles productivités :

- l'augmentation de la perméabilité autour du puits par décompaction du milieu ;
- le maintien en phase dispersée du gaz.

Au Canada, les puits produisent simultanément du sable et de l'huile. L'excellente récupération y est donc en partie associée au phénomène de décompaction du milieu poreux qui se traduit par la formation de chenaux de haute perméabilité ou *Wormholes*, augmentant ainsi le rayon de drainage du puits [Elkins 1972, Solanski 1995, Wang 1997]. L'aspect géomécanique ne sera pas abordé dans cette thèse, une revue détaillée a été publiée par Renard *et al.* [Renard 2000]. Au Venezuela, la décompaction n'est pas la cause principale de la forte production [Mirabal 1996b]. L'excellente productivité peut donc avoir une autre origine liée aux caractéristiques des huiles lourdes.

Dans une première partie le processus de *Solution Gas Drive* est décrit. Les expériences d'huiles lourdes sont ensuite abordées. Il est montré que celles-ci se caractérisent par une très faible mobilité du gaz et une production de celui-ci sous forme discontinue. Selon certains auteurs, le gaz s'écoule sous la forme d'une phase homogène de gaz dispersé dans l'huile. L'observation en tête de puits et en laboratoire de la production de l'huile sous la forme d'une mousse a conduit à l'utilisation du terme "huile moussante". La stabilité de la mousse pouvant être contrôlée par la viscosité de l'huile et/ou les propriétés de surface. D'autres auteurs considèrent que le gaz produit par intermittence peut être traité sous forme continue. La terminologie et les travaux relatifs à l'importance des effets physico-chimiques sont ensuite discutés. Enfin, une revue des modèles existants pour la simulation de la production d'huile par déplétion sera faite. Elle montrera la nécessité de bien déterminer les modèles pertinents pour chaque mécanisme physique et de travailler dans une "approche de Darcy", c'est-à-dire une approche continue à une grande échelle par rapport à celle des pores.

1.1. LA PRODUCTION PAR *SOLUTION GAS DRIVE*

Dans ce paragraphe une description simple du processus est donnée, la description détaillée des différents mécanismes est faite dans le chapitre consacré à la modélisation (chap. 3).

Considérons une huile saturée en éléments légers, par exemple du méthane. L'élément léger est appelé souvent "gaz en solution" par simplification. Sa concentration à l'équilibre va être donnée par la loi de Henry $C_{eq} = k_S P$, où P est la pression du liquide (cf. § 3.1.1.1). Si la pression du système liquide-gaz est abaissée, la concentration d'équilibre l'est aussi, l'huile devient alors sursaturée. Cet écart à l'équilibre correspond à la différence entre la concentration en éléments légers et la valeur qu'elle devrait avoir à l'équilibre : $C - C_{eq} = C - k_S P$. Des bulles apparaissent afin de rétablir l'équilibre et vont croître, tant que l'huile sera sursaturée, par transfert de l'élément léger en solution vers le gaz.

Le transfert de masse n'est pas instantané, mais est contrôlé par la diffusion moléculaire et par des effets convectifs si le liquide s'écoule. **Ce processus est donc par définition hors équilibre.**

Remarque : La sursaturation peut aussi s'exprimer par une différence de pression : entre la pression d'équilibre correspondant à la concentration C et la pression du système, $P_{eq} - P = \frac{C}{k_S} - P$. Notons que ce raisonnement ne tient pas compte de la pression capillaire, et correspond à une interface gaz-liquide plane.

Considérons le cas de la production d'huile par déplétion d'un milieu poreux. L'huile est saturée en éléments légers à une pression P_b communément appelée pression de bulle. La concentration initiale est donc $C_{ini} = k_S P_b$, le système est initialement placé à une pression supérieure à P_b . Nous commençons l'expérience à un taux de déplétion constant a , ce taux est la vitesse de décroissance de la pression dP/dt :

- jusqu'à la pression de bulle, l'huile est produite par expansion du fait de sa compressibilité ;
- la pression du système passe sous le point de bulle. Il y a nucléation de bulles et le transfert de masse commence ;
- tant que l'huile reste sursaturée le transfert se poursuit. Le volume de la phase gaz augmente et entraîne la production de l'huile. Pour le moment le gaz ne s'écoule pas. Lors de la nucléation, les bulles apparaissent dispersées dans l'huile et sont piégées par capillarité.

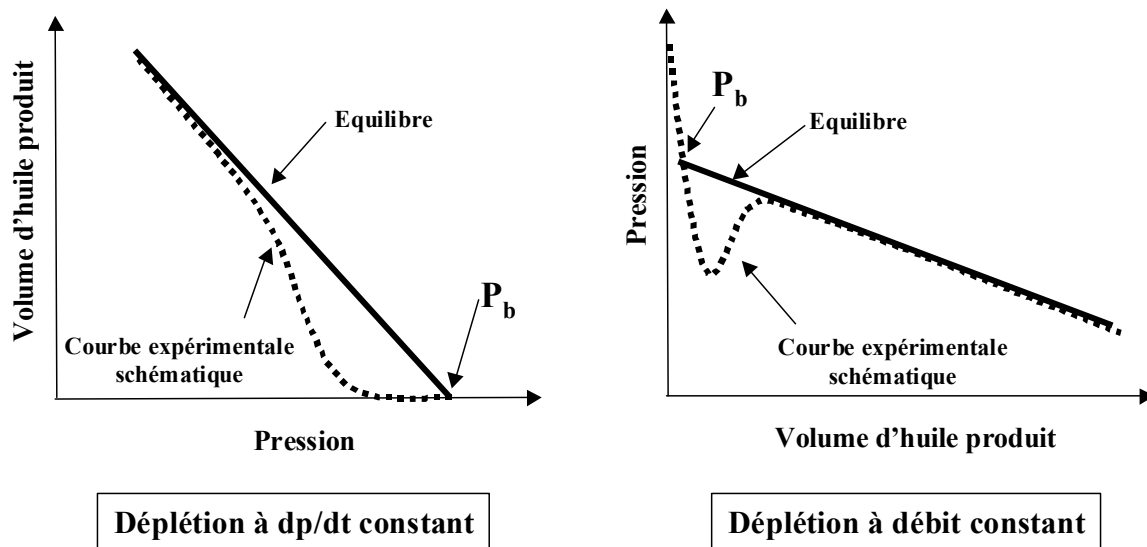


Figure 1.1 : Représentation schématique de l'écart à l'équilibre que l'on a lors d'une déplétion, P_b est la pression de bulle.

L'augmentation du volume de gaz, par transfert de l'élément léger en solution vers les bulles, est le moteur de production de l'huile. Le taux de production va donc dépendre de l'état de sursaturation du liquide. Expérimentalement la sursaturation se caractérise par une production d'huile inférieure à ce que l'on aurait à l'équilibre, c'est-à-dire si l'ensemble de l'élément léger était instantanément transféré dans la phase gaz (Figure 1.1) [Firoozabadi 1992, Kortekaas 1991, Kumar 2000, Moulu 1989a, Moulu 1989b, Scherpenisse 1994]. Les volumes produits et les volumes en place étant dépendants les uns des autres, ce type de courbe peut aussi être représenté par la saturation en gaz, notée S_g , en fonction de la pression (Figure 1.2).

Définition : La saturation pour une phase i est la fraction volumique de cette phase par rapport au volume poreux. Elle est notée S_i , i pouvant être du gaz, de l'eau, de l'huile, un gel, etc..

Cette sursaturation est donc contrôlée par deux processus : le transfert de masse, qui tend à rétablir l'équilibre, et la décroissance de la pression, qui tend à augmenter l'écart à l'équilibre. Donc plus la déplétion est rapide plus la sursaturation sera importante. Cette augmentation du retard à l'équilibre avec le taux de déplétion est très bien observée expérimentalement [Firoozabadi 1999b, Kumar 2000, Moulu 1989a, Moulu 1989b, Scherpenisse 1994]. La Figure 1.2 montre les simulations des expériences à taux de déplétion constant de Moulu *et al.* [Moulu 1989a]. Les simulations sont réalisées sans écoulement du gaz (cf. § 3.2.1.1). La ligne représentant l'équilibre correspond à la saturation en gaz que l'on aurait si tout l'élément léger en excès était instantanément transféré dans la phase gaz.

La production de l'huile va donc dépendre fortement du taux de déplétion.

L'écoulement du gaz n'a pas été pris en compte pour le moment alors qu'il affecte la production de l'huile. En effet, lorsque plusieurs fluides s'écoulent simultanément dans un échantillon, la perméabilité de chaque fluide diminue [Cossé 1988].

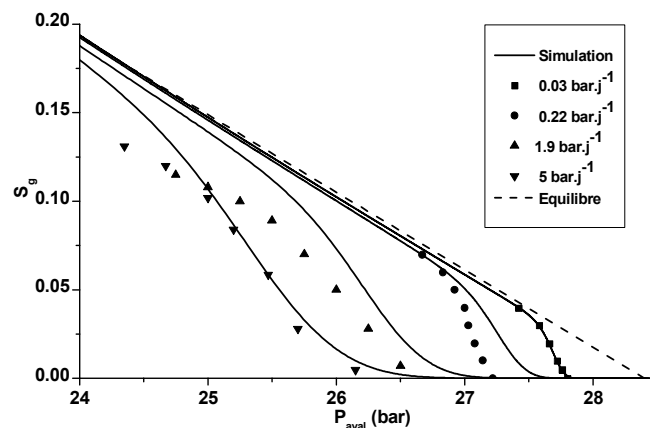


Figure 1.2 : Saturation en gaz en fonction de la pression pour différent taux de déplétion [Moulu 1989a]. Les simulations sont réalisées sans écoulement du gaz.

Initialement, les bulles sont dispersées. En grossissant, elles vont atteindre un volume critique de connexion ou une saturation critique en gaz que l'on note S_{gc} . A partir de ce seuil la phase gaz forme une phase continue. Celle-ci est alors produite préférentiellement, du fait de sa faible viscosité, et la production d'huile diminue fortement. Cette saturation critique est donc un paramètre important de la production d'huile par dépressurisation. Expérimentalement il est connu que la saturation en gaz critique, S_{gc} , augmente avec le taux de déplétion, que ce soit pour des huiles légères [Firoozabadi 1992, Kamath 1995, Kortekaas 1991, Moulu 1989b, Scherpenisse 1994] ou pour des huiles lourdes [Firoozabadi 1999b, Kumar 2000, Urgelli 1999].

Le gaz peut en fait s'écouler sous deux formes : discontinue et continue. Les bulles sont piégées par capillarité au niveau des restrictions ou seuils de pore. Lorsque le gradient visqueux le long de la bulle est suffisamment grand elles peuvent être mobilisées (cf. § 3.1.3.1). Egermann *et al.* ont montré pour une huile non visqueuse, que la mobilité du gaz dispersé était bien plus faible que lorsque celui-ci s'écoule sous forme continue [Egermann 2000]. Le grossissement se poursuivant, il peut y avoir formation d'une phase continue de gaz à partir d'une saturation critique S_{gc} . **Donc, plus le gaz reste dispersé longtemps, plus la production de l'huile sera importante.**

Définitions : La définition du terme S_{gc} prête souvent à confusion. Il existe deux manières de définir le S_{gc} : comme seuil critique à partir duquel le gaz forme une phase continue [Maini 2001] ou comme saturation caractérisant le début de la production de gaz [Firoozabadi 2001]. Avec la première définition, le gaz peut être produit sous forme dispersée avant le S_{gc} . Avec la seconde, le gaz est produit dès le S_{gc} , mais aucune précision n'est donnée quant à l'aspect de la phase gaz qui s'écoule.

Nous allons définir deux autres paramètres importants pour la production par déplétion : le GOR et le S_{wi} . Les initiales GOR correspondent à Gas-Oil Ratio. Le GOR de solution est le

rapport Gaz/Huile en volume que l'on a à pression et température standards ($P = 1$ bar, $T = 20$ °C). Si l'on prend une huile de gisement en condition réservoir et que l'on abaisse la pression à un bar, l'élément léger est alors transféré vers la phase gaz. A l'équilibre nous obtenons un certain volume de gaz pour un volume donné d'huile. Ce rapport est le GOR de solution. Il correspond donc à la concentration initiale en éléments légers. Kortekaas *et al.* ont montré, sur des expériences de dépressurisation avec des huiles légères, que le GOR de solution avait un effet important sur l'évolution de la saturation en gaz, mais aucun effet notable sur le S_{gc} [Kortekaas 1991]. Dans le cas d'huiles lourdes, Tang *et al.* observent une augmentation du S_{gc} avec le GOR de solution et une réduction de la sursaturation [Tang 2001].

S_{wi} est la notation pour la saturation irréductible en eau, qui "correspond pratiquement" à la quantité initiale d'eau en place. McDougall *et al.* observent sur micromodèle que la présence d'eau influe sur le processus de nucléation [McDougall 1998]. Tang *et al.* observent également un effet sur la densité de bulles nucléées, et donc sur le S_{gc} et la production [Tang 2001].

Le processus de *Solution Gas Drive* peut donc être décrit par trois mécanismes qui seront discutés en détail dans le chapitre 3 :

- la nucléation (cf. § 3.1.1) qui correspond à l'apparition des bulles de gaz ;
- le transfert de masse (cf. § 3.1.2) qui est à l'origine du grossissement des bulles de gaz par transfert de l'élément léger en solution dans l'huile vers les bulles ;
- l'écoulement du gaz (cf. § 3.1.3) sous forme dispersée puis continue.

La production de l'huile va dépendre fortement de l'état hors équilibre et de l'écoulement du gaz. Ces deux aspects dépendent du taux de déplétion. Plus le taux de déplétion est fort :

- plus l'écart à l'équilibre s'accroît ;
- plus le S_{gc} est élevé, donc plus le gaz reste dispersé longtemps.

La production de l'huile sera plus importante si le gaz reste dispersé. En effet, la mobilité du gaz sous forme dispersée est plus faible que celle de la phase gaz continue.

Nous allons voir dans la partie suivante que, dans le cas des huiles lourdes, le gaz reste dispersé pour des saturations en gaz élevées. Ceci permet d'expliquer la très faible mobilité du gaz et les forts taux de production d'huile qui lui sont associés.

1.2. LES HUILES LOURDES

Les expériences de production par déplétion des huiles lourdes montrent des taux de production supérieurs à ce que prédisent les modèles classiques. Cette forte production est associée à un taux de production de gaz extrêmement faible [Firoozabadi 1999b, Kumar 2000, Maini 1998, Pooladi-Darvish 1999, Sahni 2001, Tang 2001, Tang 1999]. Selon les auteurs les interprétations sont différentes.

Certains considèrent que la forte production d'huile est due au maintien du gaz sous forme dispersée. Comme nous venons de le voir, plus le gaz reste dispersé "longtemps", i.e. pour de fortes saturations en gaz, plus la production cumulée de l'huile sera importante. La faible mobilité du gaz indique dans ce cas l'existence d'une pseudo-monophasse de gaz dispersé dans l'huile ayant l'apparence d'une mousse, d'où l'utilisation du terme "huile moussante". La stabilité de cette phase, i.e. la limitation de la coalescence des bulles, pourrait s'expliquer non seulement par la forte viscosité de l'huile, mais également par des effets physico-chimiques.

D'autres auteurs considèrent que cette faible mobilité du gaz est due à la forte viscosité de l'huile, et que la terminologie d'huile moussante est erronée. Le gaz peut dans ce cas être traité comme une phase continue, la forte viscosité de l'huile serait à l'origine d'une production par intermittence du gaz.

Les observations expérimentales menant à ces deux interprétations sont données dans une première partie. La terminologie "d'huile moussante" est ensuite discutée. Enfin, une revue des travaux existants, réalisés pour déterminer l'importance de la viscosité et de la nature de l'huile (effet physico-chimique), sera donnée.

1.2.1. Observations expérimentales

Dans le cas des expériences de dépressurisation avec des huiles lourdes l'aspect hors équilibre et le retard à la connexion vont être accentués. Les effets hors équilibre sont forts bien observés dans les mesures de caractérisation thermodynamique, appelées mesures PVT (Pression Volume Température). Ces mesures s'effectuent hors milieu poreux et sont destinées à déterminer les propriétés d'une huile de gisement à l'équilibre en fonction de la pression et de la température.

Considérons par exemple une expérience où l'on détermine le volume des phases en place à P et T donnés. Dans le cas des huiles lourdes, les expériences montrent qu'une partie du gaz reste dispersée dans l'huile visqueuse plusieurs jours [Andarcia 2000, Huerta 1996, Islam 1999] (Figure 1.3).

En s'appuyant sur l'observation d'une production de mousse en tête de puits, Smith [Smith 1988] fut le premier à émettre l'hypothèse de l'existence in situ d'une phase de microbulles dispersées dans l'huile (phase mixte) pour expliquer la faible mobilité du gaz.

La plupart des auteurs observent des saturations en gaz critiques (S_{gc}) anormalement élevées, jusqu'à 40 %, caractérisant un retard à la connexion [Maini 1993, Sarma 1992]. Sur des expériences sur sable non-consolidé, Maini *et al.* observent la production du gaz sous la forme d'une phase homogène de gaz dispersé dans l'huile [Maini 1993, Sarma 1992, Treinen 1997]. Sarma *et al.* en se basant sur le modèle de Smith sont alors les premiers à utiliser le terme "d'huiles moussantes" [Maini 2001, Sarma 1992].

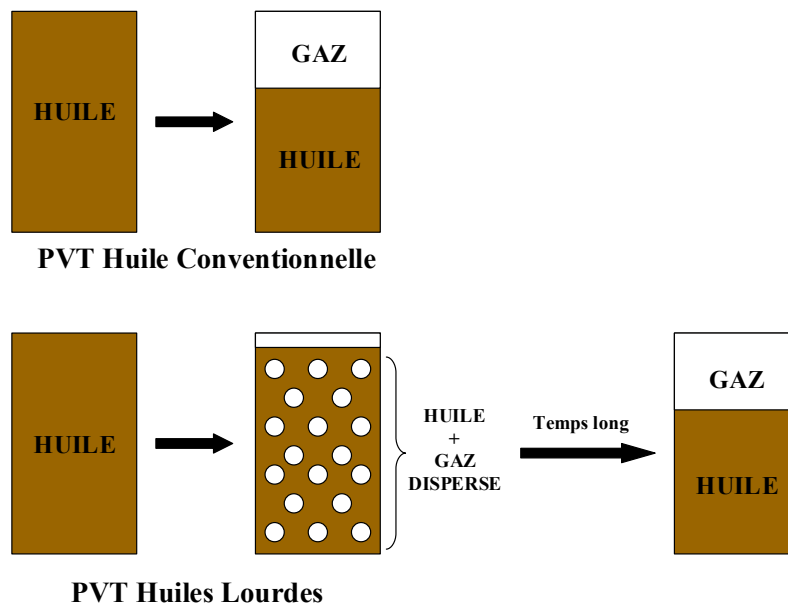


Figure 1.3 : Représentation schématique d'une dépressurisation en cellule PVT : cas d'une huile conventionnelle et d'une huile lourde.

Le micromodèle est un dispositif de visualisation qui simule un milieu poreux en 2D. Schématiquement, il correspond à la superposition de deux plaques transparentes. Une des plaques a une surface plane, l'autre surface est un motif en relief photogravé. C'est ce relief qui modélise la structure du milieu poreux (pores, restrictions, chenaux, etc.). Des expériences de visualisation sur ce type de dispositif confirment l'existence d'une phase gaz dispersée sous forme de bulles dans l'huile pouvant être décrite comme une mousse [Bora 1997], avec une limite de une bulle par pore [Lago 2000].

Plusieurs auteurs observent la formation d'une mousse dans des expériences de dépressurisation hors milieu poreux [Huerta 1996, Sheng 1997].

En utilisant l'imagerie scanner, Treinen *et al.* observent des amas ayant des tailles centimétriques [Treinen 1997]. L'aspect de la phase de gaz dispersé n'est donc pas forcément celle d'une mousse, comme Smith l'a définie.

La terminologie "d'huile moussante" est contestée par certains auteurs [Firoozabadi 1999b, Pooladi-Darvish 1999, Tang 1999]. Sur des expériences de déplétions à débit constant, ces derniers observent une production intermittente de gaz caractérisée par des fluctuations de pression. N'observant pas la production d'une phase homogène, les auteurs concluent alors que le terme "d'huile moussante" est erroné [Firoozabadi 2001]. Ils considèrent que

l'écoulement du gaz peut être traité comme une phase continue, la discontinuité de la production serait alors due à la forte viscosité de l'huile.

1.2.2. La terminologie "huile moussante"

a. Définition topologique d'une mousse :

La pertinence de cette dénomination dépend de la définition que l'on donne à une mousse. Hors milieu poreux, une mousse aqueuse classique est une population de bulles séparées par des lamelles liquides [Weaire 1999]. En milieu poreux, les bulles ont une taille comparable, voir supérieure, à celle des pores. Certains auteurs définissent la mousse comme une dispersion de gaz dans un liquide, c'est-à-dire qu'une partie de la phase gaz est discontinue [Hirasaki 1989]. En se limitant à cette définition, la terminologie "huile moussante" est correcte puisque la phase gaz est bien discontinue [Andarcia 2000, Bora 1997, Firoozabadi 2001, Firoozabadi 1999b, Maini 2001, Tang 1999, Treinen 1997], tout du moins jusqu'au S_{gc} [Maini 1999b, Maini 1993].

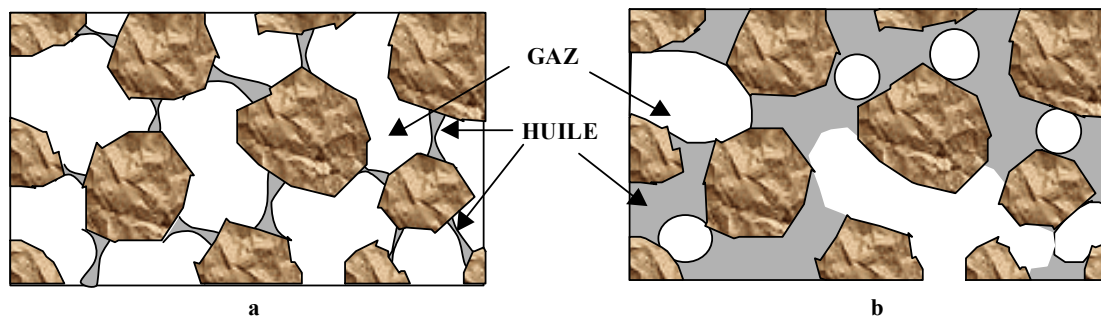


Figure 1.4 : schémas de phases gaz dispersées : a) mousse conventionnelle, b) ce que peut être l'huile moussante.

Remarque : Pour les mousses conventionnelles, le rapport volume de gaz sur le volume total se situe entre 50 % et 99 %. Ici le volume de gaz représente 5 à 40 % du volume poreux, si l'on tient compte des S_{gc} maximums obtenus dans la littérature [Maini 1993]. Il y a donc une différence importante entre les mousses conventionnelles et la phase gaz dispersée qui nous concerne. Pour des mousses conventionnelles en milieu poreux, les bulles sont séparées par des films liquides (ou lamelles) plus ou moins épais (Figure 1.4.a) [Kovscek 1994]. Dans le cas des huiles dites "moussantes", la phase gaz discontinue correspond plus à une dispersion de bulles de gaz, la notion de lamelles n'a plus de sens (Figure 1.4.b) [Bora 1997, El Yousfi 1992, Heny 2001, Lago 2000].

b. Définition physico-chimique d'une "huile moussante" :

Une mousse créée à partir d'un liquide pur est très instable. Sa stabilité va s'accroître avec la présence de composants pouvant s'absorber à l'interface : les tensioactifs (cf. § 2.2). De ce point de vue, on peut dire d'une solution qu'elle est de "nature moussante" si elle contient de tels agents. Les bruts pétroliers ont des constituants qui ont des propriétés tensioactives tels que les asphaltènes et les résines (cf. § 2.1). Claridge & Prats [Claridge 1995] font alors l'hypothèse d'une phase mixte constituée de microbulles stabilisées par l'absorption des asphaltènes à l'interface gaz/huile. Ce sont donc les premiers à émettre l'hypothèse d'une stabilisation des bulles sous l'action de constituants tensioactifs en place.

c. Maintien du gaz sous forme dispersée :

Deux explications sont possibles quant au maintien sous forme dispersée du gaz :

- la première définition ne fait pas forcément intervenir d'effet de surface, et la non-coalescence des bulles peut s'expliquer par la forte viscosité de l'huile ;
- la seconde définition implique un effet physico-chimique.

Quel que soit le terme utilisé pour nommer la phase de gaz dispersé dans l'huile, il y a donc encore quelques questions sur la caractérisation des phases en place :

- Quelle est la nature de la phase de gaz dispersé dans l'huile ?
- Quels sont les phénomènes expliquant son existence ?

1.2.3. Effet physico-chimique ou simple effet de viscosité ?

Dans ce qui suit, il est fait état des observations expérimentales cherchant à déterminer s'il y a un effet physico-chimique à l'origine du maintien du gaz en phase dispersée ou s'il ne s'agit que d'un effet de viscosité.

Pour différencier les deux effets, plusieurs auteurs ont effectué des expériences avec des huiles visqueuses sans constituants tensioactifs, telles qu'une huile de silicone [Tang 1999] ou une huile minérale synthétique (par exemple PAO 100) [Maini 1995], et des bruts de viscosités équivalentes. Tang *et al.* n'observent pas de différences notables entre l'huile de silicone et le brut. Ils excluent donc tout effet de surface. Maini *et al.* observent une meilleure récupération avec un brut qu'avec une huile minérale synthétique de même viscosité. Ils concluent donc que la concentration en asphaltènes peut jouer un rôle important dans le processus de *Solution Gas Drive*.

Turta *et al.* ont effectué des expériences d'écoulement de mousses d'huile en milieu poreux afin de déterminer leurs viscosités effectives [Turta 2001]. Il s'agit d'expériences d'injection, les mousses étant formées préalablement hors milieu poreux. Ils obtiennent des résultats similaires pour un brut et une huile synthétique (PAO-40) de viscosité équivalente.

Sheng a étudié, hors milieu poreux, la stabilité de mousses formées par déplétion à partir d'huiles synthétiques et de bruts [Sheng 1997]. Il n'observe, à viscosité équivalente, qu'un temps de vie légèrement supérieur pour les bruts. Il conclut alors que l'effet de la concentration en asphaltènes est négligeable, et que les paramètres principaux contrôlant la

stabilité de ces mousses sont la viscosité, la concentration initiale en éléments légers et le taux de déplétion.

Dans des expériences de déplétion avec deux huiles lourdes, Andarcia *et al.* mesurent une meilleure production pour l'huile de plus faible viscosité [Andarcia 2000]. Les auteurs en déduisent que la viscosité seule ne permet pas d'expliquer les forts taux de récupération associés aux huiles lourdes.

En utilisant des micromodèles et des huiles désasphalténisées ou non, Bora *et al.* observent que la présence d'asphaltènes retarde la coalescence et augmente la sursaturation [Bora 1997, Maini 1999b]. Ils précisent que le *snap-off*, scindement d'une bulle lors de son passage à une constriction (cf. § 1.3.2.3.a), est favorisé par les hauts débits, et que la viscosité est aussi un facteur important pour le maintien du gaz en phase dispersée.

Islam *et al.* [Islam 1990] observent que les asphaltènes contribuent à la formation de plus petites bulles et à une meilleure récupération.

Il faut préciser que la concentration en asphaltènes va influencer sur la viscosité de l'huile, la tension interfaciale et la mouillabilité (cf. chap. 2). Il est donc très difficile de différencier les causes du maintien du gaz en phase dispersée : propriétés interfaciales, viscosité, etc. D'autre part le processus *Solution Gas Drive* dépend de nombreux autres paramètres : taux de déplétion, concentration initiale en éléments légers, présence d'eau.

1.2.4. Conclusion

Certains auteurs considèrent qu'il existe bien une phase homogène de gaz dispersé, qu'ils appellent huile moussante, lors de la production par déplétion d'huile lourde [Maini 2001]. Pour d'autres, l'aspect "huile moussante" n'a pas de sens. Le système peut alors être modélisé avec le formalisme usuel de Darcy (cf. § 1.3.2.1) [Firoozabadi 2001]. Les hypothèses sur la nature topologique des phases en place sont donc importantes du point de vue de la modélisation. En effet, la première approche mène à la notion de pseudo-phase à laquelle on peut associer des propriétés effectives telles que : la viscosité, la compressibilité, etc. La seconde approche mène à la notion de pseudo-perméabilités relatives, c'est-à-dire à une approche où l'on corrige les paramètres, utilisables dans les simulateurs conventionnels, afin de tenir compte des spécificités du processus étudié.

1.3. MODÉLISATION DU PROCESSUS DE *SOLUTION GAS DRIVE*

Nous allons d'abord rappeler les notions de bases sur les différentes approches utilisées pour modéliser les écoulements en milieu poreux. Le but est de situer l'approche proposée dans la thèse par rapport aux simulations existantes de type "réseau" ou "population balance".

Ensuite, les modèles existants pour simuler les expériences de production d'huile par déplétion sont présentés. Une analyse détaillée de la bibliographie sur la modélisation des différents processus physiques intervenant dans la production par *Solution Gas Drive* est faite dans le chapitre 3. Dans une partie consacrée aux modèles ayant une "approche de Darcy", nous allons voir que les simulateurs basés uniquement sur le formalisme de Darcy pour l'écoulement polyphasique ne peuvent ni simuler ni prédire une série de courbes de productions pour des expériences à différents taux de déplétion. Ceci est dû au fait qu'ils ne prennent pas en compte l'aspect hors équilibre ni l'écoulement du gaz sous forme dispersée.

1.3.1. Notions de base

Pour l'étude des écoulements en milieu poreux, on distingue classiquement 3 approches (voir Figure 1.5)

- l'approche milieu poreux "idéal" souvent appelée "approche de Darcy" ;
- l'approche milieu poreux "homogénéisé" ;
- l'approche "pores et grains".

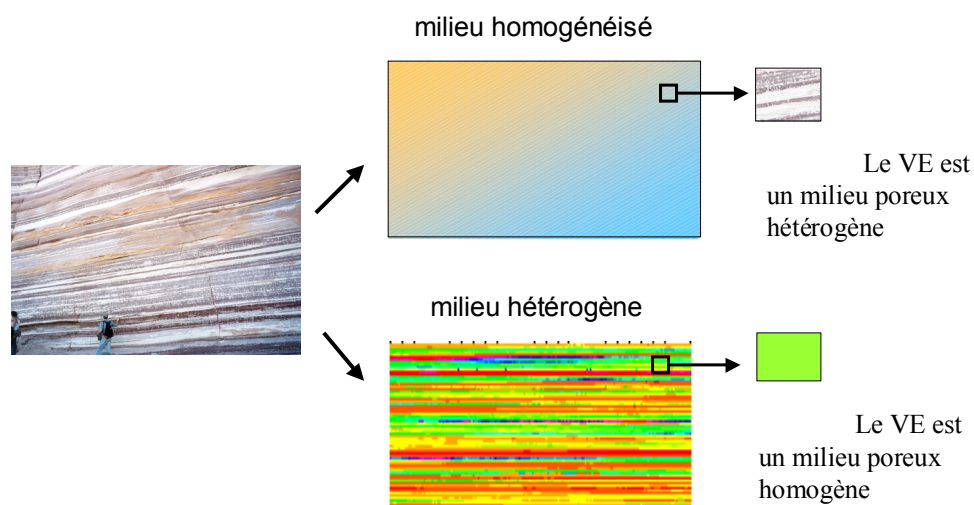


Figure 1.5 : Les différentes approches pour décrire les écoulements en milieu poreux.

1.3.1.1. Approche "milieu poreux"

Le solide et les fluides ne sont pas considérés séparément (comme dans les simulations réseaux), mais comme un milieu équivalent. Ce milieu n'est ni le fluide ni le liquide, mais devient le "milieu poreux" avec des propriétés nouvelles qui traduisent les interactions entre les fluides et le milieu (notion de perméabilité K , de perméabilités relatives K_r , de pression capillaire P_c , etc.).

1.3.1.2. Milieu continu

La première notion liée aux équations de Darcy est celle de milieu continu avec des propriétés définies en tout point de l'espace et des évolutions se traduisant par des équations aux dérivées partielles (espace et temps).

Remarque : lorsqu'on utilise des méthodes numériques de résolution, on admet que la discrétisation est suffisamment fine pour que le résultat soit équivalent à celui du milieu continu.

1.3.1.3. Volume élémentaire

La deuxième notion, qui est générale en physique, est que chaque "point" du milieu continu que l'on observe comporte une structure à une échelle plus petite. Cela implique la notion de volume élémentaire VE (pas nécessairement représentatif). En mécanique des fluides, le VE est constitué de molécules. Pour le milieu poreux, nous distinguons deux approches (ou échelles) dans une représentation en milieu continu :

- L'approche milieu poreux "idéal" lorsque le VE est un milieu poreux homogène. La structure sous jacente est constituée de pores et de grains.
- L'approche "homogénéisée" lorsque le VE est un milieu poreux hétérogène. La structure sous jacente est constituée d'un milieu poreux idéal. On pourrait aussi imaginer plusieurs cascades d'homogénéisation.

Il est préférable d'utiliser le terme "d'approche" plutôt que "d'échelle" car ce n'est pas nécessairement lié à la dimension du système étudié. Une membrane multicouche de quelques microns d'épaisseur peut être traitée dans une approche homogénéisée.

1.3.1.4. Volume élémentaire représentatif

La troisième notion est celle de **volume élémentaire représentatif VER** qui s'applique a priori aux deux approches. Les propriétés du volume élémentaire (VE) doivent respecter certaines conditions pour que les propriétés soient bien définies. Pour un fluide, il faut un grand nombre de molécules pour que les notions de viscosité et de température aient un sens. Pour l'approche milieu poreux "idéal" il faut un grand nombre de grains et des propriétés de répartition homogènes des fluides. Par exemple, dans le cas de deux fluides, il faut être loin d'un seuil de percolation.

1.3.2. Modèles d'écoulement

1.3.2.1. Approche "Darcy"

"L'approche de Darcy" sera définie comme une approche milieu poreux "idéal" avec existence d'un VER pour toutes les propriétés étudiées. A l'échelle du VER, par exemple une carotte homogène en laboratoire, l'écoulement d'une phase continue est décrit par l'équation de Darcy [Dullien 1992] :

$$\mathbf{u} = \frac{K}{\mu} (-\nabla(P) + \rho \mathbf{g}) \quad (1)$$

où \mathbf{u} est la vitesse de Darcy du fluide, \mathbf{g} est la constante de gravité (\mathbf{u} , \mathbf{g} et $\nabla(P)$ sont des vecteurs), P est la pression du fluide, μ est la viscosité, ρ est la masse volumique, K est la perméabilité absolue. La vitesse est définie par $u = q/A$, A étant l'aire de la section de l'échantillon perpendiculaire à l'écoulement et q le débit. Lorsqu'il y a plusieurs fluides qui s'écoulent on peut utiliser l'équation de Darcy en introduisant la notion de perméabilité relative, l'équation (1) devient alors pour chaque fluide [Dullien 1992] :

$$\mathbf{u}_i = \frac{K K_{ri}}{\mu_i} (-\nabla(P_i) + \rho_i \mathbf{g}) \quad (2)$$

où i est un indice faisant référence à la phase (i : eau, huile ou gaz), K_{ri} est la perméabilité relative. La notion de perméabilité relative du fluide i rend compte de l'influence des autres fluides sur son écoulement. La perméabilité relative dépend de la saturation du fluide. Il est très important de noter que ce formalisme implique la continuité et l'équilibre des phases. Nous verrons que ces deux points font défaut aux simulateurs "classiques" dans le cas du processus de *Solution Gas Drive*.

Puisque l'on est dans une approche milieu poreux "idéal" avec existence d'un VER, les propriétés comme les perméabilités relatives (K_r) et la pression capillaire (P_c) ne varient pas avec les conditions de l'expérience, la taille du milieu ou les conditions limites. Cette invariance des propriétés permet de déterminer en laboratoire des paramètres utilisables en condition réservoir. Là encore nous verrons que c'est un point qui fait souvent défaut aux modèles existants.

En réservoir pétrolier, ces propriétés sont déterminées sur des carottes hétérogènes avec un calcul monodirectionnel et une saturation moyenne sur une tranche. Il s'agit donc d'un milieu "homogénéisé" et la détermination de propriétés comme les K_r - P_c est un problème d'inversion (*downscaling*). Ensuite, les propriétés sont utilisées pour modéliser des réservoirs dans lesquels les hétérogénéités inférieures à la dizaine de mètres ne sont pas prises explicitement en compte. Il s'agit alors d'un problème d'homogénéisation (*upscaling*). Cette approche est illustrée sur la Figure 1.6.

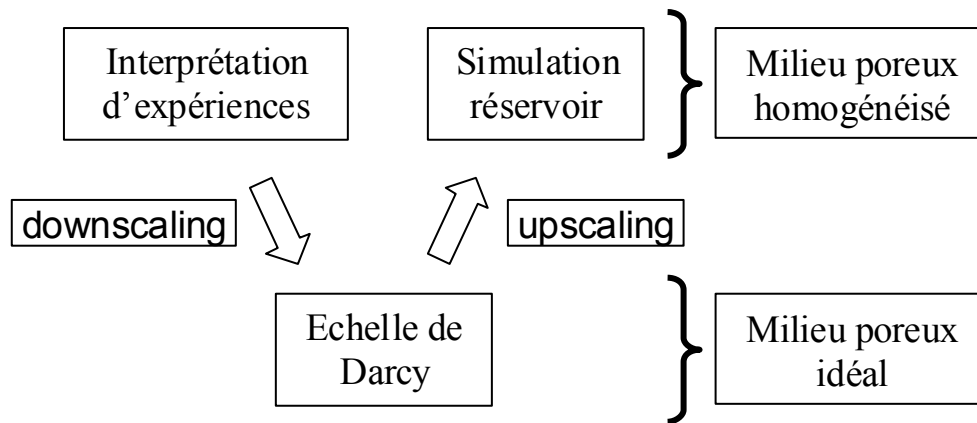


Figure 1.6 : Schéma de l'approche utilisée en réservoir pétrolier.

Si les données expérimentales ne sont pas accessibles, il existe des formes analytiques permettant de calculer des courbes de perméabilités relatives, par exemple les relations de type Corey [Dullien 1992] :

$$\begin{aligned}
 K_{ro} &= K_{ro}^0 \cdot \left(\frac{1 - S_{or} - S_{wi} - S_g}{1 - S_{or} - S_{wi} - S_{gc}} \right)^{n_o} \\
 K_{rg} &= K_{rg}^0 \cdot \left(\frac{S_g - S_{gc}}{1 - S_{or} - S_{wi} - S_{gc}} \right)^{n_g}
 \end{aligned}
 \tag{3}$$

où S_{or} est la saturation résiduelle en huile, les K_{ro}^0 et K_{rg}^0 sont des constantes, n_g et n_o sont les exposants de Corey. Ces courbes sont bien souvent utilisées comme paramètres de calage et perdent alors leur signification physique, nous parlerons dans ce cas de pseudo-perméabilités relatives, notées $\langle K_r \rangle$. C'est le cas de la simulation des expériences de production par déplétion pour une huile légère ou lourde. En effet, les phases ne sont pas l'équilibre et le gaz peut s'écouler sous forme dispersée. L'utilisation de l'équation (2) n'est donc plus physique mais devient un outil de calage.

Une expérience simple pour déterminer les K_r est le déplacement d'un fluide par l'injection d'un second. La terminologie "perméabilité relative de déplacement" sera parfois utilisée par la suite en opposition aux pseudo-perméabilités relatives de calage.

a. Les simulateurs réservoirs classiques

Les simulateurs usuels (black oil, compositionnels) sont basés sur l'équilibre des phases. Le système d'équations comprend la conservation de la masse, la loi de Darcy, etc. Ils ne tiennent absolument pas compte d'un état hors équilibre. La méthodologie est de déterminer par calage des historiques de production les paramètres spécifiques au système, le couple K_r - P_c (perméabilités relatives - pression capillaire), puis de pouvoir les utiliser en prédiction.

Ce type de simulateurs a d'abord été utilisé pour simuler les expériences de production par déplétion des huiles lourdes. Des historiques de production ont pu être calés en ajustant des

paramètres tels que : les pseudo-perméabilités relatives, la saturation en gaz critique [Kumar 2000, Kumar 2001b, Loughhead 1992]. Cela a mis en évidence les caractéristiques de ces champs :

- Faible mobilité du gaz ($\langle K_r \rangle \sim 10^{-4} - 10^{-6}$ [Firoozabadi 1999b, Kumar 2000, Maini 1998, Pooladi-Darvish 1999, Sahni 2001, Tang 2001, Tang 1999]).
- Haute valeur du S_{gc} .

Mais cela ne permet ni de décrire la physique en jeu, ni de prédire des expériences dans d'autres conditions. Sur des expériences utilisant le même fluide à des taux de déplétion différents, le calage est obtenu en changeant le jeu de perméabilités relatives. Puisque l'on ne connaît pas les lois de variation en fonction des conditions, on ne peut pas utiliser les $\langle K_r \rangle$ en conditions réservoir. En effet comme nous l'avons vu précédemment, le processus de *Solution Gas Drive* dépend d'un grand nombre de paramètres, ces dépendances se répercutent évidemment sur les pseudo-perméabilités relatives. Entre autres, le taux de déplétion joue sur l'écart à l'équilibre, le S_{gc} et les taux de production des fluides. Kumar *et al.* obtiennent des résultats satisfaisants, mais le $\langle K_r \rangle$ gaz doit être adapté pour chaque expérience en fonction du taux de soutirage et de la viscosité des huiles [Kumar 2000, Kumar 2001b]. Tang *et al.* calculent des pseudo-perméabilités relatives des expériences de production par déplétion d'huiles lourdes [Tang 2001, Tang 1999]. Les $\langle K_r \rangle$ obtenus dépendent fortement des taux de soutirage et du S_{wi} . Les S_{gc} introduits dépendent également de ces trois paramètres. Andarcia *et al.* obtiennent par calage (ou *history matching*) d'une expérience de dépressurisation une pseudo-perméabilité relative au gaz qui ne peut pas être appliquée aux cas sur champs [Andarcia 2001].

Ceci pose donc le problème du changement d'échelle au sens physique [Heny 2001, Kamp 2001a]. En effet, les échelles sur champ sont complètement différentes. Entre autres les taux de déplétion sont extrêmement faibles, les volumes en place sont nettement plus grands. Il est donc nécessaire de revoir la physique utilisée dans les simulateurs conventionnels afin de tenir compte de la phase de gaz dispersé dans l'huile. Une cinétique décrivant l'accroissement du gaz et son transfert vers une phase continue doit alors être prise en compte dans les modèles.

Dans ce qui suit, les modèles basés sur la modification des données conventionnelles sont d'abord énumérés. La description est succincte car il est admis depuis longtemps que ce type de modèles ne permet pas de prédire les productions. Ensuite des modèles à une échelle macroscopique sont présentés. Je les classe sous le terme de "modèles cinétiques", terminologie utilisée par plusieurs auteurs [Maini 2001, Sheng 1999b], car ils modélisent le transfert de masse et le transfert entre les phases dispersée et continue de gaz par des taux de relaxation ou de transfert.

b. Modèles de modification des données conventionnelles

Les premiers modèles ne prennent pas en compte de cinétique, mais correspondent plus à des méthodes de correction des paramètres permettant d'utiliser les simulateurs conventionnels [Bayon 2002, Maini 2001, Sheng 1999b] :

- Le **modèle de pseudo-point de bulle** développé par Kraus *et al.* [Kraus 1993] permet de simuler les huiles moussantes en modifiant les données PVT

conventionnelles. Le gaz libéré reste entraîné dans l'huile jusqu'à ce que la pression passe sous ce pseudo-point de bulle, qui est un paramètre ajustable. Une fois celui-ci passé, une fraction du gaz seulement reste entraînée avec l'huile, fraction qui décroît avec la pression. La compressibilité de la phase huile + gaz est une fonction de la pression. Cette compressibilité modifiée est ensuite introduite dans un simulateur classique. Ce modèle fait ressortir une forte récupération de l'huile et le maintien de la pression, mais ne tient pas compte de l'aspect hors équilibre.

- Lebel [Lebel 1994] utilise un **modèle d'écoulement fractionnaire modifié**. Dans la phase mousse le débit fractionnaire du gaz augmente linéairement avec la saturation jusqu'à une valeur critique, après quoi le gaz est libre. La viscosité de la mousse est plus faible que celle de l'huile. Ceci revient à modifier les perméabilités relatives au gaz. Ce modèle permet de prendre les données PVT conventionnelles, mais là encore il ne tient pas compte de la cinétique.
- Le **modèle de viscosité réduite** [Claridge 1995] suppose que l'adsorption des asphaltènes à l'interface réduit la viscosité de l'huile. Ce point est contredit par les observations expérimentales, qui ne montrent aucune augmentation de la mobilité de l'huile après la nucléation [Kumar 2000, Maini 2001, Maini 1993].

Ces modèles rendent donc compte de certains aspects de la production par déplétion d'huiles lourdes mais ne prennent pas en compte l'aspect hors équilibre. On se retrouve alors dans le cas non prédictif des pseudo-perméabilités relatives au gaz calculées à partir de données laboratoires. En effet, les paramètres ainsi déterminés varient avec les conditions de déplétion (taux de déplétion ou taux de soutirage).

c. Les modèles cinétiques

Simulateur STARS :

La compagnie canadienne CMG a implanté dans son simulateur STARS un modèle prenant en compte trois composants dans la phase huile et la phase gaz continu [Coombe 1994, Maini 2001] :

- l'huile morte (huile sans éléments légers en solution) ;
- l'élément léger en solution dans l'huile ;
- le gaz dispersé dans l'huile ;
- le gaz continu.

Les échanges entre phases gaz sont traités sous forme de réactions chimiques. L'élément léger en solution passe en phase gaz dispersée selon un taux, et le gaz dispersé en gaz libre selon un second taux. Les phénomènes hors équilibre sont pris en compte mais les taux sont déterminés par *history matching* [Maini 2001]. Bayon *et al.* obtiennent d'excellents résultats avec un même jeu de paramètres pour plusieurs expériences [Bayon 2002]. Mais ici encore les paramètres de calage n'ont pas de signification physique.

Le modèle de Sheng :

Le modèle de Sheng est basé sur le même principe [Sheng 1997, Sheng 1999a]. Il prend en compte deux processus : la formation de gaz dispersé à partir du liquide, et le passage de ce gaz en phase continue. La nucléation est considérée instantanée. Le grossissement des bulles est modélisé par une loi puissance ou exponentielle. Le passage du gaz dispersé en gaz

continu est modélisé par une exponentielle, cette expression provient d'observations de stabilité de mousses hors milieu poreux :

$$\frac{dU}{dt} = -\lambda U \quad (4)$$

où U est un paramètre de la mousse (densité volumique de bulle par exemple) et λ est un coefficient de décroissance.

La perméabilité relative utilisée pour la phase gaz continue est fonction de la saturation en gaz mobile. Le gaz dispersé s'écoule avec l'huile. Ce modèle donne de très bons résultats quant à la simulation d'expériences en laboratoire. Il reste tout de même quelques améliorations à apporter pour le rendre réellement prédictif [Sheng 1999b]. En effet, les taux contrôlant le grossissement et la coalescence sont ajustés en fonction du taux de déplétion.

Ces deux modèles, STARS et celui de Sheng, donnent de bons résultats préliminaires avec les inconvénients qui ont été cités. D'autre part, ils ne font dépendre la production et la coalescence des bulles dans la phase dispersée que du temps et non des gradients de pression locaux [Maini 2001]. Or ce point est important : Egermann *et al.* ont montré que les propriétés d'écoulement étaient différentes suivant le gradient local de pression [Egermann 2000]. De même, Sahni *et al.* concluent, en fonction de leurs propres résultats et d'une analyse des différents travaux existants, que "l'effet moussant" sera important aux abords de puits (là où le gradient de pression est le plus important) [Sahni 2001]. Ce qui revient à dire, si l'on oublie le terme "huile moussante", que les propriétés d'écoulement de la phase dispersée de gaz vont être fortement fonction du gradient local de pression. Expérimentalement d'ailleurs, certains travaux montrent une saturation en gaz augmentant vers la sortie du milieu poreux [Bayon 2002, Sahni 2001].

Modèle de Kamp *et al.* :

Récemment, Kamp *et al.* ont proposé un modèle basé sur l'hypothèse d'un écoulement homogène [Joseph 2002a, Kamp 2001b]. Ils considèrent que le gaz est dispersé dans l'huile sous forme de bulles, et que les vitesses locales des deux phases sont identiques. Ceci revient à un modèle de pseudo-monophasé, l'ensemble gaz huile étant une mousse. La vitesse de la mousse est donnée par l'équation de Darcy avec la perméabilité absolue du milieu et une viscosité effective. Cette viscosité s'exprime en fonction de la saturation en gaz, en supposant que la mousse correspond à une dispersion de bulles sphériques. En appliquant la formulation de la viscosité pour une suspension de sphères solides, ils obtiennent :

$$\mu(S_g) = \mu(0)(1 - S_g)^{-m} \quad (5)$$

où m est un exposant ajustable, $\mu(0)$ la viscosité de l'huile saturée sans bulle. Ce point est contestable car plusieurs observations montrent que la taille des bulles est supérieure à la taille des pores, on peut donc difficilement les assimiler à une suspension de sphères solides.

Pour traiter l'aspect hors équilibre, ils introduisent un temps de relaxation. A l'équilibre la relation entre la saturation en gaz et la pression peut s'exprimer comme suit [Joseph 2002a, Kamp 2001b] :

$$\frac{P_b - P}{P} = \zeta \frac{S_g}{1 - S_g} \quad (6)$$

où P_b est la pression de bulle, ζ est une constante caractéristique du système à l'équilibre dépendant entre autre de la solubilité du gaz. Les auteurs modifient alors cette équation en introduisant un terme qui traduit la relaxation de la saturation vers la valeur d'équilibre :

$$\tau \frac{D}{Dt} \left(\frac{S_g}{1 - S_g} \right) = \frac{P_b - P}{P} - \zeta \frac{S_g}{1 - S_g} \quad (7)$$

où τ est un temps de relaxation.

Les auteurs simulent les expériences de Maini *et al.* [Maini 1993]. Ces expériences de déplétion sont effectuées sur un sable non consolidé, à l'entrée la pression est maintenue au-dessus du point de bulle, à la sortie la pression est abaissée. Les expériences sont de deux types :

- Écoulement permanent : la pression de sortie est abaissée par paliers, et les mesures sont effectuées quand l'écoulement stationnaire est atteint pour chaque palier. Ces mesures sont faites avec deux huiles lourdes différentes.
- Taux de déplétion constant : la pression de sortie est abaissée suivant un taux constant. Les mesures sont prises à plusieurs instants. Un seul fluide est étudié.

Kamp *et al.* [Joseph 2002a, Kamp 2001b] obtiennent de bons résultats en simulant les expériences en écoulement permanent avec un même jeu de paramètres, τ et m , pour les deux huiles. Par contre, la simulation de l'expérience à taux constant est moins bonne.

L'inconvénient de ce modèle est, comme pour les précédents, le fait que la dépendance du paramètre de relaxation avec les conditions de déplétion ne soit pas connue, ce qui pose encore le problème de la prédictibilité. D'ailleurs il faudrait tester le modèle sur des expériences à différents taux de déplétion et vérifier si le jeu de paramètres est le même. Dans un article soumis à publication [Joseph 2002b]¹, Joseph et Kamp introduisent un nouveau taux de relaxation afin de simuler des expériences sous différentes conditions de déplétion :

$$\tau_1 \frac{D}{Dt} \left(\frac{S_g}{1 - S_g} \right) + \tau_2 \frac{D}{Dt} \left(\frac{P_b - P}{P} \right) = \frac{P_b - P}{P} - \zeta \frac{S_g}{1 - S_g} \quad (8)$$

Les auteurs sont obligés d'introduire des taux de relaxation sous la forme d'exponentielles pour obtenir des simulations satisfaisantes : $\tau_i \propto \exp(-b_i S_g)$, où b_i est une constante. Le nombre de paramètres est alors augmenté, et la signification physique de leur expression difficilement accessible.

Remarque : Le processus de *Solution Gas Drive* étant un processus hors équilibre, l'introduction de taux de relaxation permet forcément de rendre compte de l'écart à l'équilibre. De même, plus le nombre de paramètres augmentent, plus il est simple de caler des données expérimentales. Tout comme avec un

¹ Document obtenu sur le site Internet du Professeur Joseph : www.aem.umn.edu/people/faculty/joseph/

polynôme, plus le degré augmente, plus on passe par un grand nombre de points expérimentaux.

1.3.2.2. Approche réseau de pores

Il s'agit d'une approche de type discontinue, dans laquelle les fluides et les solides gardent leur autonomie contrairement à l'approche "milieu poreux". De plus, il s'agit d'une modélisation discrète, dont le maillage est censé correspondre au réseau de pores.

L'approche "réseau de pores" peut être complémentaire à "l'approche de Darcy". Un simulateur réseau peut être utilisé pour calculer les propriétés du modèle de Darcy à partir des propriétés à l'échelle des pores. Avec les moyens actuels de calculs, les réseaux peuvent simuler des cubes contenant de l'ordre de 1000 pores sur une arête, ce qui est tout à fait acceptable pour représenter un volume élémentaire. Si les simulations sont bien choisies (homogénéité de la répartition des fluides, etc.), le réseau peut être considéré comme un VER et servir à déterminer les propriétés dans "l'approche de Darcy". C'est une alternative à la détermination expérimentale des propriétés. C'est le cas par exemple pour le calcul de perméabilités relatives (K_r) triphasiques (eau-gaz-huile) [Jaffrenou-Laroche 1999].

Il faut bien noter que le réseau doit représenter un VER avec des fluides uniformément distribués à l'intérieur. Il faut donc pouvoir éliminer tout effet d'extrémité, effet d'entrée ou effet capillaire à la sortie, en utilisant des conditions périodiques ou en n'utilisant qu'une région limitée du réseau.

Parfois le réseau est assimilé à une carotte (ou même à une portion du réservoir), en perdant toute vraisemblance dans les tailles mises en jeu (voir travaux de Fredd *et al.* [Fredd 1998] en acidification). En fait, le réseau est utilisé comme un simulateur numérique de type différences finies.

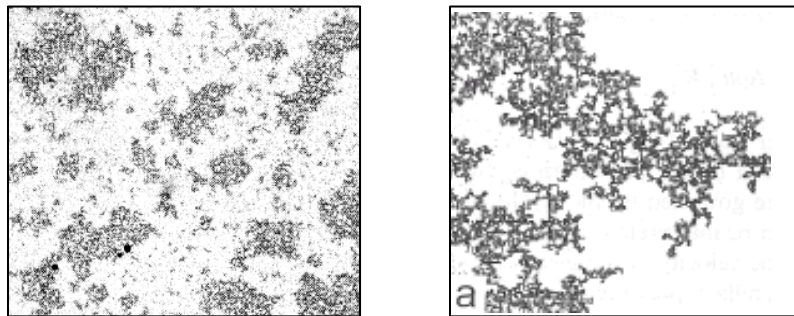


Figure 1.7 : Exemples de simulations par réseau du déplacement d'un fluide par un autre : à gauche, fluides uniformément répartis et résultat assimilable à un VER, à droite, fluides distribués suivant un amas de percolation ne pouvant pas être assimilés à un VER (d'après [Lenormand 1988a]).

Plusieurs travaux existent sur la modélisation du processus de *Solution Gas Drive* avec des simulateurs réseaux [Li 1991, Li 1993, Li 1994, Li 1995a, Li 1995b, Parlar 1989, Yortsos 1989]. Ils ont permis de mettre en évidence et de comprendre la loi d'échelle reliant le nombre total de bulles nucléées et la saturation critique en gaz de connexion (S_{gc}) [Du 1999, Li 1995a,

Parlar 1989]. La physique qui est implémentée dans ces modèles est discutée dans le chapitre 3.

1.3.2.3. Approche population de bulles

C'est une approche de type milieu poreux, mais l'échelle des mécanismes physiques modélisés est intermédiaire entre l'approche de Darcy et l'approche réseau de pore. En effet, les modèles sont basés sur la gestion de la population de bulles qui est régie par des mécanismes à l'échelle des bulles. Dans un premier temps ces mécanismes seront présentés. Ensuite deux types de modèles seront discutés :

- le premier correspond au modèle utilisé pour la modélisation de l'écoulement des mousses en milieu poreux ;
- le second est un modèle basé sur la gestion discrète du processus de *Solution Gas Drive*.

a. Mécanismes de génération et de destruction d'une mousse en milieu poreux

Les mousses sont habituellement caractérisées par la densité volumique de bulles ou celle des lamelles liquides. Cette densité détermine la structure de la mousse. Dans le cas des mousses classiques les films ont une taille comparable à celle du pore. L'évolution de la mousse lors de l'écoulement est donc gérée par des phénomènes à cette échelle.

La structure évolue suivant des mécanismes de génération et de destruction de bulles ou de lamelles [Kovscek 1994] :

- le *snap-off* : formation de deux bulles lorsqu'une bulle rencontre une constriction et se scinde par effet capillaire ;
- *lamella division* : c'est la séparation d'une bulle en deux lorsqu'elle rencontre un embranchement ;
- le *leave-behind* : lorsque deux interfaces se rencontrent et forment une lamelle immobile ne gênant pas l'écoulement.

La destruction des lamelles va dépendre de la pression capillaire. Khatib *et al.* [Khatib 1988] observent, pour une solution donnée, que le taux de coalescence augmente brutalement à partir d'une valeur limite de la pression capillaire P_c^* . Au-dessus de P_c^* , les films sont instables, la coalescence devient prédominante, la vitesse du gaz augmente. Cette valeur seuil change selon la solution, c'est-à-dire en fonction de la nature du tensioactif et de sa concentration, P_c^* rend alors compte des propriétés interfaciales. Ils concluent que la stabilité de la mousse va décroître avec la vitesse du gaz et la pression capillaire, mais la coalescence devient moins critique avec les mousses de faible qualité [Alvarez 1999].

b. Population Balance Modeling (PBM)

L'écoulement d'une mousse en milieu poreux va dépendre de sa structure [Falls 1989, Hirasaki 1985]. La densité de bulles ou de lamelles est un paramètre physique qui n'apparaît pas dans le formalisme de Darcy, d'où le formalisme d'équilibre des populations PBM qui décrit l'évolution de la densité de bulles d'une mousse en milieu poreux [Falls 1986, Kovscek 1997, Kovscek 1994, Patzek 1988]. Son expression a la même forme qu'une équation de

conservation de l'énergie ou de masse, elle permet d'introduire les mécanismes de production et de destruction. L'équation de "population balance" s'écrit comme suit [Patzek 1988] :

$$\frac{\partial}{\partial t} [\phi S_g \chi_f n_f + \phi S_g (1 - \chi_f) n_t] + \nabla \cdot (n_f \mathbf{u}_f) = \phi S_g (G_f - C_f) + Q \quad (9)$$

où ϕ est la porosité du milieu, S_g la saturation en gaz, χ_f la fraction de gaz en mouvement, n_f la densité de bulles en mouvement, n_t la densité de bulles piégées, u_f est la vitesse du gaz, Q un terme source. G_f et C_f sont respectivement le taux de production de bulles en mouvement et le taux de coalescence.

Le terme source est pris nul si la mousse est produite au sein du milieu poreux [Bertin 1998]. Plusieurs expressions de G_f existent dans la littérature [Falls 1986, Friedmann 1991, Kovscek 1994]. La formulation la plus utilisée est celle proposée par Kovscek et Radke [Apaydin 2000, Bertin 1998, Fergui 1998, Kovscek 1994] :

$$G_f = k_g v_f^{1/3} v_l \quad (10)$$

avec k_g un coefficient de production, v_f et v_l sont les vitesses interstitielles respectivement du gaz et du liquide, $v_i = \frac{u_i}{\phi S_i}$, $i = f, l$.

Le taux de coalescence a lui aussi plusieurs formulations, l'expression de Ettinger *et al.* [Ettinger 1992] est la plus utilisée :

$$C_f = k_c n_f v_f \quad (11)$$

avec

$$k_c = k_c^0 \left(\frac{1 - S_l}{S_l - S_l^*} \right)$$

avec k_c^0 une constante, S_l^* est la saturation liquide correspondant à la pression capillaire limite P_c^* . Cette formulation tient compte des propriétés interfaciales par l'intermédiaire de P_c^* (cf. paragraphe précédent), et des effets de vitesses.

Pour décrire l'écoulement on peut utiliser l'équation de Darcy pour les phases en place, puisque la mousse est considérée comme une pseudo-phase continue [Bertin 1998, Fergui 1998, Kovscek 1994]. Nous savons que la mobilité du gaz dépend de la texture, donc dans la formulation de l'écoulement une viscosité effective est introduite pour la mousse. Suivant Hirasaki *et al.* [Hirasaki 1985] l'expression pour la viscosité utilisée par la plupart des auteurs est :

$$\mu_f = \mu_g + \alpha \frac{n_f}{v_f^c} \quad (12)$$

où μ_f est la viscosité de la mousse, μ_g celle du gaz, α est fonction de la tension de surface, de la viscosité et de la taille caractéristique des pores [Ettinger 1992, Falls 1986, Falls 1989,

Hirasaki 1985]. La valeur de c est théoriquement $1/3$ [Falls 1986, Falls 1989, Hirasaki 1985], Friedmann *et al.* [Friedmann 1991] ont trouvé une valeur empirique égale à 0.29 .

La perméabilité relative pour la mousse est généralement celle du gaz libre corrigée par la fraction de gaz dispersé en mouvement :

$$k_{rf} = \chi_f k_{rg} \quad (13)$$

où k_{rf} est la perméabilité relative de la mousse, k_{rg} celle du gaz libre.

Pour compléter le système il faut tenir compte de la pression capillaire, $P_C = P_g - P_L$. On sait que la pression capillaire va dépendre de la tension interfaciale. Si un tensioactif est présent en solution, il faut ajouter une équation de dispersion pour sa concentration [Fergui 1998].

Dans le cas du processus de *Solution Gas Drive*, il faut ajouter plusieurs termes prenant en compte :

- le grossissement de la phase gazeuse par diffusion pour les bulles piégées, r_{Dt} et pour les bulles en mouvement, r_{Df} ;
- la nucléation et la coalescence des bulles piégées, respectivement r_{nt} et r_{ct} ;
- la mobilisation des bulles, r_m .

On obtient alors le système d'équation suivant, d'après Arora *et al.* [Arora 2001] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [\phi S_g (1 - \chi_f) n_t] &= \phi S_g (r_{nt} - r_{ct} + r_{Dt} - r_m) \\ \frac{\partial}{\partial t} (\phi S_g \chi_f n_f) + \nabla \cdot (n_f \mathbf{u}_f) &= \phi S_g (G_f - C_f + r_{Df} + r_m) \end{aligned} \quad (14)$$

Les auteurs utilisent un taux de nucléation basé sur le modèle de nucléation hétérogène, ce choix contestable sera discuté dans le chapitre sur la nucléation. Le taux de grossissement est exprimé suivant une expression dérivée par Firoozabadi *et al.* [Firoozabadi 1996], qui est une fonction explicite du temps [Arora 2001]. Ce dernier point est discutable car le transfert de masse est lié aux conditions de dépressurisation (cf. § 3.1.1.6) : taux de déplétion constant, taux de soutirage constant, saut instantané en pression. Or une expression explicite du temps suppose que l'évolution de pression est connue et continue.

Dans leurs travaux, Arora *et al.* n'ont abordé que la première partie d'expériences de déplétion, c'est-à-dire avant la mobilisation et l'écoulement du gaz. Ils obtiennent des résultats satisfaisants pour la simulation d'expériences d'huiles lourdes [Arora 2001].

L'inconvénient de cette approche est le grand nombre de paramètres, cela permet forcément de simuler les expériences, mais leurs dépendances en fonction des conditions expérimentales sont difficilement accessibles. Ce dernier point pose le problème du changement d'échelle au sens physique, comme nous l'avons vu pour être prédictif il faut pouvoir extrapoler les paramètres du modèle à des conditions différentes. D'autre part, la phase de gaz dispersé ne peut pas être forcément assimilée à une mousse conventionnelle (Figure 1.4). Dans ce cas, le choix de la viscosité effective est contestable.

c. Le simulateur nucléation de l'Institut Français du Pétrole (IFP) [Egermann 2000]

Le simulateur de nucléation réalisé à l'IFP par Moulu [Moulu 1989a] et repris par [Egermann 2000] est un modèle qui gère une population de bulles. Il ne s'agit pas d'un simulateur réseau, mais d'une approche de type "milieu poreux". La différence avec Darcy est qu'il ne s'agit pas d'une approche de milieu continu. Cette approche est basée sur un maillage du milieu et elle introduit des lois d'évolution des propriétés dans les mailles et des lois de transfert entre mailles.

C'est une approche que l'on retrouve souvent en physique où il est souvent plus facile d'écrire une évolution discrète du système qu'une équation continue. Par exemple, pour un phénomène de diffusion, on peut utiliser des particules qui se déplacent sur un espace maillé avec une probabilité $\frac{1}{2}$ de faire un saut à droite ou à gauche pendant un temps Δt . Le nombre $N(I)$ de particules dans la maille I au temps $t + \Delta t$ peut s'écrire comme étant égal au nombre au temps t , plus ce qui provient de la droite et de la gauche, et moins ce qui est perdu par saut :

$$N_I^{t+\Delta t} = N_I^t + 0.5N_{I-1}^t + 0.5N_{I+1}^t - 0.5N_I^t \quad (15)$$

Il est bien connu que cette équation est la représentation discrétisée d'une équation continue de diffusion :

$$\frac{dN}{dt} = D \frac{d^2N}{dx^2} \quad (16)$$

avec un coefficient de diffusion $D = \Delta x^2 / 2\Delta t$, si Δx est la distance entre deux sites.

Le modèle de nucléation a été développé dans le but de simuler des expériences de déplétion (Figure 1.8), où de l'huile est continuellement injectée en amont, pendant qu'en aval la pression est progressivement diminuée à une pression donnée en dessous du point de bulle. Le profil de saturation en gaz est mesuré à l'aide d'un scanner. Le fluide utilisé est un mélange C_1-C_7 , dont la viscosité est 0.3 cp à 64 bars.

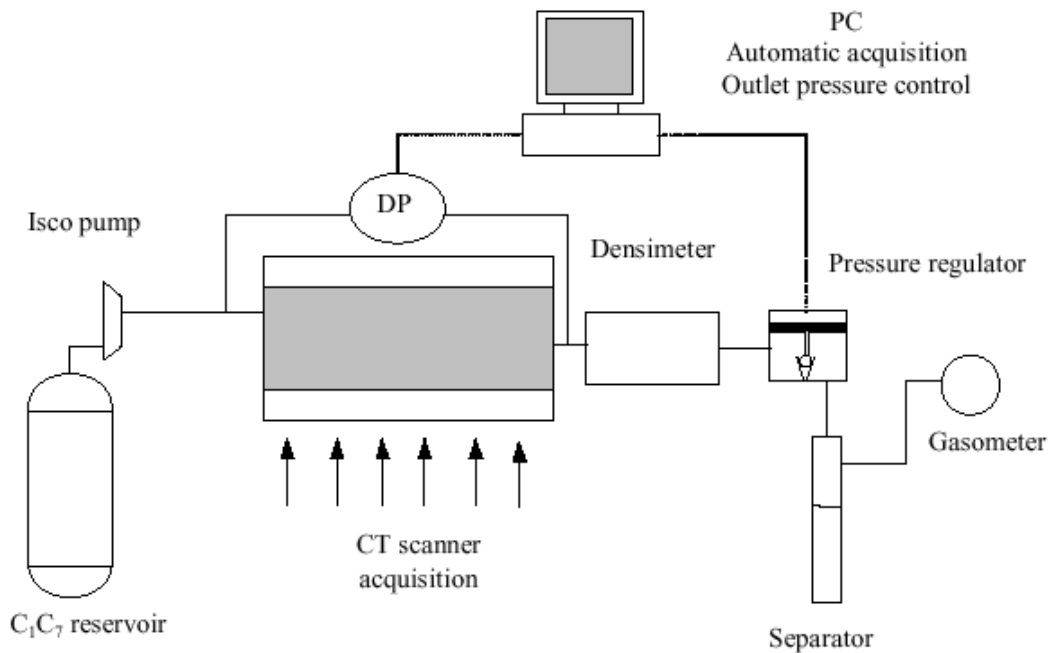


Figure 1.8 : Schéma du dispositif expérimental de Egermann *et al.* [Egermann 2000].

Description synthétique du modèle :

- Le gaz est considéré comme dispersé jusqu'à une valeur critique en gaz, S_{gc} .
- La nucléation suit un modèle hétérogène.
- Les bulles sont classées en fonction de leur âge afin de tenir compte du taux de nucléation dans le processus de diffusion. En effet, la diffusion dépend de la surface et donc de l'âge de la bulle.
- La mobilisation du gaz est contrôlée par les effets capillaires.
- La mobilité du gaz est modélisée par une fonction ajustable. Celle-ci correspond au volume de gaz transféré d'une maille à l'autre en fonction de la saturation en gaz.
- Le S_{gc} est la valeur de la saturation en gaz, au moment où le volume effectif des bulles est égal au volume de maille, ce volume effectif étant le produit du volume de gaz en milieu infini par un facteur de forme.

Bien que les auteurs obtiennent de bons accords entre l'expérience et la simulation, on peut discuter certains aspects du modèle. La nucléation, comme nous le verrons, n'est pas décrite par le modèle hétérogène (cf. § 3.1.1). Pour décrire l'écoulement du gaz, les auteurs n'utilisent pas le formalisme de Darcy, mais une fonction ajustable dépendant de la saturation. Cette fonction représente la fraction de gaz qui est transmise d'une maille à l'autre. Par définition celle-ci va rendre compte de la mobilisation, mais sa signification physique n'est pas connue. Là encore, la dépendance de certains paramètres en fonction des conditions de dépressurisation n'est pas accessible, ce qui rend le modèle peu prédictif. D'autre part, les bulles sont comptées et classées afin de tenir compte de leur histoire, ce qui à l'échelle d'un réservoir, du fait des volumes en place, est difficilement réaliste. Enfin, c'est un modèle

1. LA PRODUCTION PAR DÉPLÉTION DES HUILES LOURDES

discret, l'écoulement des bulles est géré par une fonction de maille à maille et la formation du gaz continu dépend du volume de la maille.

Le point fort de ce modèle est la prise en compte des gradients locaux de pression qui permet la modélisation des profils de saturation [Egermann 2000].

1.4. CONCLUSION

Les observations expérimentales concordent sur deux points :

- La production de gaz est très faible pour les saturations existantes, ce qui se traduit par l'intermédiaire du formalisme de Darcy par de faibles pseudo-perméabilités relatives.
- Le gaz est maintenu sous forme dispersée.

Par contre, plusieurs hypothèses existent quant à la nature de la phase gaz dispersée dans l'huile :

- Elle peut être interprétée comme une pseudo-monophasé continue à l'échelle du milieu. Cette caractérisation mène à la notion "d'huile moussante" [Maini 2001].
- Elle ne peut être assimilée à une mousse. Le système est constitué de deux phases continues (en négligeant l'eau), leurs écoulements peuvent donc être interprétés en terme de pseudo-perméabilités [Firoozabadi 2001].

Ces interprétations mènent à des approches en modélisation différentes. L'interprétation du gaz dispersé dans l'huile en terme de pseudo-monophasé permet de traiter le système avec trois phases : le liquide (huile + éléments légers en solution), le gaz dispersé dans l'huile et le gaz continu à l'échelle du milieu. Plusieurs modèles existent :

- Ceux basés sur la gestion du nombre de bulles donnent de bons résultats, mais ils sont à une échelle intermédiaire entre celle du pore et Darcy, ce qui les rend difficilement utilisables à l'échelle du réservoir. D'autre part, ils font intervenir un grand nombre de paramètres, dont la dépendance physique en fonction des conditions n'est pas connue. Ils permettent donc d'interpréter des expériences mais ne sont pas prédictifs.
- D'autres modèles introduisent des fonctions de relaxation entre les phases : entre l'élément léger en solution et le gaz dispersé, entre le gaz dispersé et le gaz continu. Ceci permet de tenir compte de l'aspect hors équilibre du processus de *Solution Gas Drive*. Selon les modèles plusieurs inconvénients existent. Le simulateur de la compagnie CMG semble simuler plusieurs expériences dans des conditions différentes, mais les taux de réaction (\approx taux de relaxation) sont déterminés par *history matching* et l'on ne connaît pas leur dépendance physique. Le modèle de Sheng permet d'interpréter plusieurs expériences mais le jeu de paramètres change pour chaque taux de déplétion. Le modèle de Joseph et Kamp fait intervenir un grand nombre de paramètres ajustables.

D'autre part, les observations expérimentales montrent que le gaz dispersé dans l'huile est topologiquement différent d'une mousse classique. Dans ce cas, l'utilisation de propriétés monophasiques, telles que la viscosité et la compressibilité, pour caractériser l'ensemble gaz dispersé et huile est contestable.

L'interprétation diphasique usuel (écoulement de phases continues que l'on peut modéliser par la loi de Darcy) mène à une approche conventionnelle de modélisation de l'écoulement, au sens où les simulateurs usuels peuvent être utilisés. Dans cette approche, l'écoulement du gaz,

bien que dispersé, peut être simulé par une pseudo-perméabilité relative. Cette approche ne permet que de mettre en évidence des caractéristiques de la production des huiles lourdes par déplétion, telles que les faibles perméabilités au gaz et des S_{gc} élevés. D'autre part, les pseudo-perméabilités trouvées dépendent des conditions expérimentales (le taux de déplétion, le S_{wi}), ce type d'approche ne peut donc pas être prédictif.

Pour être prédictif et pallier au problème de changement d'échelle, la modélisation ne doit faire intervenir que des grandeurs ayant un sens à l'échelle du milieu (carotte ou réservoir) et dont la signification physique est connue. Ces deux points permettront l'extrapolation des paramètres mesurés à des paramètres champs (effet du taux de déplétion). Dans le dernier chapitre, le modèle élaboré pendant la thèse est présenté. Répondant à tous ces critères, il permet la simulation et la prédiction d'expériences de déplétion.

Plusieurs résultats expérimentaux indiquent que les différences de production entre plusieurs huiles ne peuvent pas s'interpréter uniquement par les différences de viscosités. Dans ce cas, certains auteurs supposent que l'on doit tenir compte des propriétés interfaciales qui vont avoir un impact sur l'écoulement de la phase dispersée. Les asphaltènes sont connus pour avoir des propriétés tensioactives. Leur concentration étant particulièrement élevée dans les huiles lourdes, une hypothèse serait que leur effet sur les propriétés interfaciales soit non négligeable. Pour le moment aucune expérience n'a permis de confirmer ou d'infirmer ce point. C'est pour cette raison que, dans un premier temps, leurs propriétés interfaciales ont été étudiées. Les résultats de cette étude sont présentés et discutés dans le chapitre suivant.

2. EFFET DES ASPHALTÈNES ET DES RÉSINES A L'INTERFACE HUILE-GAZ

2.1. PROPRIÉTÉS INTERFACIALES DES ASPHALTÈNES ET DES RÉSINES.....	41
2.2. STABILITÉ DES MOUSSES.....	45
2.3. MÉTHODES EXPÉRIMENTALES.....	49
2.3.1. Extraction des résines et des asphaltènes	49
2.3.2. Moussabilité	50
2.3.3. Temps de vie de films	50
2.3.4. Les propriétés de surface.....	51
2.3.5. Micromodèle.....	51
2.4. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS.....	53
2.4.1. Moussabilité.....	53
2.4.2. Temps de vie de films	56
2.4.3. Tension dynamique et viscoélasticité de surface	58
2.4.3.1. Les solutions d'asphaltènes.....	58
2.4.3.2. Les solutions d'asphaltènes et de résines.....	64
2.4.4. Études en micromodèle.....	66
2.4.4.1. La nucléation.....	66
2.4.4.2. La coalescence.....	67
2.5. CONCLUSION	68

Les taux de production anormalement élevés observés pour les huiles lourdes peuvent s'expliquer par le maintien du gaz sous forme dispersée dans l'huile. Cette phase peut s'écouler et être stable pour de fortes saturations en gaz, jusqu'à 40 % (cf. chap. 1). Certains auteurs, observant la production d'une mousse d'huile en laboratoire ou en tête de puits, utilisent le terme "huile moussante". Deux effets peuvent être à l'origine de la stabilité de cette phase dispersée de gaz :

- Un effet visqueux : les huiles lourdes se caractérisent par une forte viscosité.
- Un effet physico-chimique : les huiles lourdes ont une forte concentration en asphaltènes qui sont connus pour être tensioactifs. Leur adsorption pourrait alors stabiliser l'interface.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les différentes expériences, tentant de déterminer si la composition de l'huile avait un effet sur la production, donnent des résultats contradictoires. Il est impossible d'affirmer à partir de ces observations si les propriétés physico-chimiques de l'huile sont négligeables ou non. Il a semblé donc nécessaire d'essayer de déterminer si les propriétés interfaciales des asphaltènes et des résines (les éléments connus pour avoir des propriétés tensioactives) étaient susceptibles d'avoir un effet sur la moussabilité des huiles lourdes. Ce sont les résultats expérimentaux obtenus à ce sujet qui sont présentés dans ce chapitre. Dans un premier temps, l'état des connaissances sur les propriétés interfaciales des asphaltènes et des résines et sur la stabilité des mousses est présenté. Les expériences réalisées dans le cadre de la thèse sont ensuite décrites. Les résultats sont discutés dans la dernière partie.

2.1. PROPRIÉTÉS INTERFACIALES DES ASPHALTÈNES ET DES RÉSINES

Les bruts pétroliers sont des mélanges de composés organiques appartenant principalement à trois familles chimiques : les alcanes (paraffines), les cycloalcanes ou naphènes, les composés aromatiques. Ces familles peuvent être également classées sous deux groupes :

- les hydrocarbures non-polaires (paraffines, naphènes) et composés aromatiques de faible masse molaire,
- les composés polyaromatiques polaires de masse molaire plus importante : les résines et les asphaltènes, la masse molaire des résines étant plus faible que celle des asphaltènes.

Les asphaltènes et les résines ont une composition complexe et mal connue, définie par des propriétés de solubilité. Les asphaltènes sont définis comme la fraction d'huile insoluble dans les alcanes (n-C₅ norme américaine ASTM 893-69 ; n-C₇ norme française AFNOR T60-115) et soluble dans le toluène. Ils sont principalement composés de parties aromatiques polycondensées (jusqu'à 5 noyaux aromatiques) liées par des chaînes aliphatiques, et de groupes polaires [Speight 1999, Yen 1974]. Les résines sont définies comme la fraction insoluble dans le propane à la température ambiante. Ce sont des molécules, naphéno-aromatiques polaires, plus petites. Elles s'absorbent sur les surfaces tensioactives telles que la silice.

Le protocole habituel pour la séparation du brut, appelé technique SARA (Saturés, Aromatiques, Résines, Asphaltènes), correspond à la précipitation des asphaltènes par excès d'un alcane (n-C₅ ou n-C₇) avant une séparation chromatographique de la partie soluble, maltènes, sur de la silice. Notons que du fait même de la définition des composés polaires, la transition entre résines et asphaltènes va dépendre du précipitant utilisé. La quantité de précipitant diminue avec le nombre de carbone du solvant [Speight 1999]. Le pentane permet donc de récupérer une fraction en poids plus importante que l'heptane. Cela sous-entend qu'au pentane, une partie de ce qui est considérée comme résines à l'heptane est précipitée avec les asphaltènes [Loh 1999]. D'autre part, les asphaltènes peuvent former des agrégats de grande taille suivant les conditions expérimentales et leur concentration. Leur masse molaire varie énormément en fonction de l'origine de l'huile, de la nature et de la quantité d'alcane utilisée pour leur extraction [Firoozabadi 1999a, Speight 1999]. Ramos *et al.* obtiennent pour des asphaltènes en solution dans du toluène : 3250 g.mol⁻¹ pour les asphaltènes précipités au n-C₅, et 5430 g.mol⁻¹ pour ceux précipités au n-C₇ [Ramos 2001]. Yarranton *et al.* [Yarranton 2000a] observent l'existence de monomères aux faibles concentrations dans le toluène (~ 0.5 g.L⁻¹) de 1800 g.mol⁻¹, et la formation d'agrégats de 4000 à 10⁴ g.mol⁻¹ aux fortes concentrations (10-20 g.L⁻¹). Storm *et al.* [Storm 1995] observent des agrégats nanométriques d'environ 10⁵ g.mol⁻¹ constitués d'une centaine de monomères d'une masse molaire de 1000 g.mol⁻¹. Un grand nombre de travaux de diffusion des rayons X (SAXS) [Storm 1993, Xu 1995] ou des neutrons (SANS) [Sheu 1991] donnent des tailles nanométriques sous le seuil de

floculation. La forme de ces agrégats est fractale, la dimension variant de 1.8 à 3 suivant la concentration et le solvant utilisé (toluène, toluène/heptane) [Fenistein 2000, Liu 1995].

Leurs compositions confèrent aux résines et aux asphaltènes des propriétés tensioactives. La tension de surface ou interfaciale décroît avec la concentration d'asphaltènes dans différents solvants (toluène, pyridine, etc.), confirmant l'adsorption des asphaltènes aux interfaces eau/huile et air/huile [Loh 1999, Ramos 2001, Sheu 1994, Sheu 1992, Sheu 1991, Sheu 1995, Yarranton 2000a, Zaki 2000]. Certains auteurs observent une cmc (concentration micellaire critique) qui correspond à la formation de micelles. La valeur de la cmc dépend de l'alcane utilisé pour l'extraction, du solvant, de la température et de l'origine du brut [Loh 1999, Ramos 2001]. Les cmc mesurées pour des asphaltènes en solution dans différents solvants sont de l'ordre de quelques g.L^{-1} (0-15 g.L^{-1}) [Andersen 1993]. Pour des asphaltènes extraits à l'heptane en solution dans du toluène, certains auteurs trouvent 6.5 g.L^{-1} [Loh 1999, Ramos 2001].

D'autres auteurs, comme Yarranton *et al.* ne mesurent aucune cmc pour des concentrations allant jusqu'à 100 g.L^{-1} , alors qu'il y a accroissement de la masse molaire avec la concentration et donc agrégation [Yarranton 2000a]. Observant malgré tout la décroissance de la tension interfaciale, ils concluent que les agrégats comme les monomères sont absorbés à l'interface. Sheu *et al.* ont observé une cinétique d'adsorption plus lente pour les asphaltènes que pour les tensioactifs classiques [Sheu 1994, Sheu 1995]. Dans le cas de l'interface toluène/eau la cinétique d'adsorption dépend du pH de l'eau et de la concentration en asphaltènes [Sheu 1995]. En dessous de la cmc et quel que soit le pH, la cinétique d'adsorption est très lente. Ils émettent alors l'hypothèse que deux processus entrent en jeu : un processus d'adsorption contrôlé par la diffusion, suivi d'un processus de réarrangement des molécules à l'interface. Cette interprétation a déjà été faite dans le cas de macromolécules telles que les protéines [Serrien 1992, Serrien 1990]. Au-dessus de la cmc il existe un pH critique (dans les expériences de Sheu & al pH = 4). Au-dessus de celui-ci la cinétique est lente. En dessous la tension augmente au bout d'un certain temps. Sheu & al émettent l'hypothèse qu'il y a une réaction chimique à l'interface à laquelle correspond une énergie d'activation. La valeur du pH va donc jouer sur le potentiel interfacial, si ce dernier ne peut activer la réaction il y a alors désorption.

L'état de solubilisation des asphaltènes, ou stabilité, est primordial. En effet jusqu'à présent il n'était question que des asphaltènes avant le seuil de floculation, or une fois ce seuil atteint les asphaltènes atteignent des tailles micrométriques et sédimentent [Fenistein 2000]. Ce point peut s'avérer catastrophique en terme de productivité de puits, puisque les asphaltènes, en précipitant, peuvent réduire fortement la perméabilité par colmatage. Les études concernant la stabilité des bruts sont nombreuses, on pourra trouver une revue détaillée dans la référence suivante : [Speight 1999]. La stabilité d'un brut ne dépend pas uniquement de la concentration en asphaltènes. Une huile contenant 5 % en poids d'asphaltènes peut être plus stable qu'une huile en contenant moins de 1 % [Rogel 2001]. Il faut tenir compte non seulement du rapport résines/asphaltènes (R/A), mais également de leurs compositions : aromaticité, nombre d'hydrogènes [Rogel 2001, Speight 1999]. Un modèle de solubilisation des asphaltènes par les résines est admis [McLean 1997c, Pfeiffer 1940, Speight 1999], et permet de comprendre pourquoi la concentration en asphaltènes ne permet pas à elle seule de décrire la stabilité des bruts. Dans celui-ci les asphaltènes existent sous forme d'agrégats et de monomères, les

agrégats sont stabilisés par adsorption des résines à leur surface. Seuls les monomères sont susceptibles alors de précipiter [Firoozabadi 1999a, Pan 1998].

Les émulsions de bruts sont largement répandues dans l'industrie pétrolière ce qui en fait un sujet très largement étudié et une bibliographie conséquente existe. L'adsorption à l'interface eau/huile des asphaltènes est maintenant admise, ainsi que la formation d'un film rigide. Ce dernier est un paramètre critique de la stabilité des émulsions puisqu'il diminue le taux de coalescence [Jones 1978, McLean 1997b, McLean 1997c, Strassner 1968, Yeung 2000]. Tout comme dans le cas de la floculation des asphaltènes dans un brut, la stabilité des émulsions et la formation de ce film dépendent d'un grand nombre de paramètres : pH, quantité de résines, de saturés, d'aromatiques, de l'état de solubilité des asphaltènes, de l'origine du brut [Fordedal 1996, McLean 1997b, McLean 1997c, Strassner 1968, Yarranton 2000b]. McLean *et al.* ont étudié des émulsions dont l'huile est une solution d'asphaltènes et de résines dans un mélange de toluène et d'heptane [McLean 1997b, McLean 1997c]. Ils observent une stabilité optimum pour un mélange toluène/heptane à 30-40 % et un rapport résines/asphaltènes autour de 0.33. Le solvant est majoritairement de l'heptane donc tend à décroître la solubilité des asphaltènes, l'ajout de résines tend à solubiliser les asphaltènes. Précisons que l'ajout de résines est ensuite un facteur extrêmement déstabilisant.

Un grand nombre d'études systématiques (fonction des concentrations en résines et en asphaltènes, du pH, du solvant, etc.) ont donc été menées sur la physico-chimie de l'interface eau/huile dans lesquelles sont étudiées la tension dynamique ou statique [Lakatos 1999, Loh 1999, Ramos 2001, Sheu 1992, Sheu 1995, Yarranton 2000a, Zaki 2000], la rhéologie de surface [Ese 1999, Jones 1978, Lakatos 1999, Strassner 1968], la stabilité des émulsions (temps de vie) [Fordedal 1996, Jones 1978, McLean 1997b, McLean 1997c, Yarranton 2000b, Zaki 2000].

Dans le cas des mousses de brut et des études de l'interface huile/gaz, les travaux sont moins nombreux. Cassani *et al.* [Cassani 1992] observent l'augmentation de la stabilité des mousses de brut avec la concentration en asphaltènes des fluides étudiés. Il faut remarquer toutefois que la viscosité augmente avec la concentration en asphaltènes [Chakma 1994, Hénaut 2001, Ramos 2001]. Or, la stabilité des mousses est liée au drainage, lui-même inversement lié à la viscosité du fluide [Verbist 1999]. Il est alors difficile de différencier le rôle de la viscosité et des asphaltènes à partir de l'étude de bruts originaux. Callaghan *et al.* concluent que la stabilité d'une mousse de brut est non seulement liée à la viscosité, mais également à l'adsorption d'un élément polaire dont la masse molaire est au plus 400 g.mol^{-1} [Callaghan 1985, Callaghan 1981]. Dans ce cas il ne s'agirait pas des asphaltènes.

L'effet des asphaltènes et des résines sur les mousses de brut n'est donc pas clair. De même les études de tension de surface sont focalisées sur les asphaltènes, les propriétés interfaciales des résines et asphaltènes sont donc bien moins connues dans le cas des interfaces gaz/huile. Nous avons donc voulu approfondir cet aspect afin de déterminer si l'effet des tensioactifs naturels des bruts pouvait être crucial lors de la production par *solution gaz drive* des huiles lourdes.

Pour pallier aux problèmes pratiques liés à la nature visqueuse de l'huile, et afin de bien observer l'effet des constituants pris en compte indépendamment les uns des autres, nous avons travaillé avec des solutions modèles d'asphaltènes et de résines dans du toluène. La démarche suivie pour tenter de caractériser ces mousses d'huile est celle généralement utilisée

pour des mousses aqueuses [Bhattacharyya 2000]. Dans un premier temps des paramètres globaux, tels que la moussabilité, le temps de vie de film et la viscosité de volume, ont été étudiés en fonction des concentrations en asphaltènes et en résines. Ensuite les propriétés interfaciales (tension interfaciale statique et dynamique, rhéologie de surface) ont été abordées.

2.2. STABILITÉ DES MOUSSES

La stabilité d'une mousse est liée à la stabilité des films séparant les bulles de gaz. Dans le cas de l'eau pure une mousse est totalement instable. Par contre dès que l'on ajoute un tensioactif cette stabilité peut s'améliorer fortement. Ceci se comprend aisément par l'adsorption du tensioactif ionique à l'interface liquide/gaz. Un film entre deux bulles se compose de deux interfaces. Les tensioactifs s'absorbent sur chacune d'elle la partie polaire dans la phase liquide. Du fait de cette orientation des molécules, il y a un champ de force électrostatique répulsive qui se crée (Figure 2.1). La stabilité du film va donc être contrôlée par le jeu de forces telles que : les forces de van der Waals, les forces électrostatiques, des forces stériques, etc..

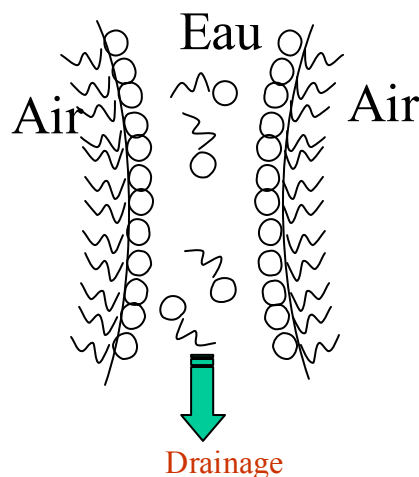


Figure 2.1 : Schéma simplifié d'un film entre deux bulles.

L'ensemble de ces forces va contrôler l'épaisseur du film. Une grandeur permettant d'interpréter les variations de l'épaisseur d'un film est la pression de disjonction : Π [Bergeron 1999, Langevin 1999]. Celle-ci correspond à la différence entre la pression normale à l'interface et la pression dans le liquide. L'état de couverture du film par le tensioactif peut s'étudier de plusieurs manières. La moussabilité, que nous définissons comme le rapport entre le volume de mousse et le volume de liquide initial, est d'autant meilleure que le tensioactif couvre rapidement les interfaces et que les films ne cassent pas trop vite.

La mesure de la tension de surface permet d'accéder à la concentration de surface, Γ . La présence d'une interface entre les phases implique l'existence de grandeurs thermodynamiques d'excès la caractérisant. La tension de surface correspond alors à l'excès d'énergie par unité de surface :

$$\gamma = \frac{\Delta F}{A}$$

où A est l'aire de la surface, F est l'énergie libre et ΔF l'excès d'énergie libre. Par définition on peut écrire pour un système à la température T comprenant N_i molécules i :

$$\Delta F = -T\Delta S + \sum_i \mu_i \Delta N_i + \gamma \Delta A \quad (17)$$

où ΔS est l'excès d'entropie, μ_i est le potentiel chimique des molécules i, ΔN_i l'excès de ces mêmes molécules. On obtient alors :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial \mu_i} = \frac{\Delta N_i}{A} = \Gamma_i \quad (18)$$

Et dans le cas d'une solution diluée on obtient l'équation de Gibbs :

$$\Gamma = \frac{-1}{RT} \frac{\partial \gamma}{\partial \ln(c)} \quad (19)$$

où c est la concentration en volume de l'élément absorbé à l'interface, R la constante des gaz parfaits. Notons qu'ici il s'agit d'une solution ne contenant qu'un élément. Le formalisme de Langmuir donne une équation d'état de l'interface reliant la tension de surface à la concentration de surface. Si l'on regarde le flux de matière à l'interface, en tenant compte de l'adsorption et de la désorption on a une équation de la forme :

$$\frac{d\Gamma}{dt} = \beta \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) c (\Gamma_\infty - \Gamma) - \alpha \exp\left(\frac{-E_d}{RT}\right) \Gamma \quad (20)$$

où β et α sont des constantes, E_a et E_d sont respectivement les énergies d'adsorption et de désorption. Dans le cas où ces énergies sont indépendantes de Γ , on a à l'équilibre :

$$\frac{d\Gamma}{dt} = 0 \Rightarrow \frac{c}{a} = \frac{\Gamma/\Gamma_\infty}{1 - \Gamma/\Gamma_\infty} \quad (21)$$

avec a la concentration de Szykowsky et Γ_∞ la concentration de surface à saturation. En utilisant l'équation de Gibbs on obtient :

$$\gamma_0 - \gamma = -RT\Gamma_\infty \ln\left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}\right) = RT\Gamma_\infty \ln\left(1 + \frac{c}{a}\right) \quad (22)$$

Rappelons que cette équation est valable à l'équilibre pour des tensioactifs non ioniques. Pour donner un ordre de grandeur pour des tensioactifs classiques tels que le SDS (Sodium Dodecyl Sulfate) et le Triton X-100, Γ_∞ est de l'ordre de 10^{-10} mol.cm⁻², ce qui correspond à des surfaces par molécule de l'ordre 60 à 90 Å² [Bonfillon 1994, Langevin 1999, Lin 1990].

Jusqu'à présent nous avons considéré le cas à l'équilibre, mais la connaissance de la dynamique d'adsorption donne plus d'information sur le processus. Dans le cas où l'adsorption est contrôlée par la diffusion, on peut utiliser la loi de Fick pour exprimer le transfert de masse entre la solution et l'interface. On peut ainsi trouver une solution pour la concentration

de surface [Miller 1991]. Les calculs ne seront pas détaillés, précisons toutefois deux approximations très utiles pour interpréter les données de tension dynamique lorsque le processus est contrôlé par la diffusion [Fang 1992, Langevin 1999] :

$$\Gamma(t) \underset{t \rightarrow 0}{\approx} 2 \left(\frac{D}{\pi} \right)^{1/2} c \sqrt{t} \quad (23)$$

$$\gamma \underset{t \rightarrow \infty}{\approx} \gamma_e + \frac{2RT\Gamma^2}{c} \left(\frac{\pi}{4Dt} \right)^{1/2} \quad (24)$$

où γ_e est la tension de surface à l'équilibre. Les équations (23) et (24) sont respectivement les approximations aux temps courts et aux temps longs.

Intuitivement nous pouvons conclure que : mieux les films seront couverts par les tensioactifs, meilleure sera la stabilité d'une mousse, mais la seule connaissance de la concentration de surface en tensioactifs ne suffit pas. La stabilité de la mousse est contrôlée par plusieurs processus [Bhattacharyya 2000, Langevin 1998, Langevin 2002] :

- Le mûrissement d'Ostwald : diffusion du gaz des petites bulles vers les plus grosses.
- Le drainage : amincissement du film par écoulement du liquide.
- La coalescence : rupture du film entre les bulles afin de créer une plus grande bulle.

Ces processus dépendent de la viscosité et de l'élasticité de surface. La coalescence est liée à la résistance d'un film à la rupture. L'étude du temps de vie d'un film mince en fonction des concentrations en résines et en asphaltènes est présentée et discutée dans une prochaine partie (cf. § 2.4.2). Le drainage correspond à l'amincissement des films qui est contrôlé essentiellement par la viscosité de volume, et est sensible à la viscoélasticité de surface. Le module de Gibbs caractérise la compressibilité d'une couche. Il est défini par [Langevin 1999] :

$$\varepsilon_0 = A \frac{\partial \gamma}{\partial A} \quad (25)$$

avec ε_0 le module de Gibbs, A l'aire de l'interface. Ce paramètre de compression peut être assimilé à un module élastique par analogie aux systèmes en volume, dans le cas d'une couche insoluble. Pour une couche soluble, le modèle de Levich [Levich 1962] (appelé parfois modèle LT de Lucassen-Tempel) suppose qu'il y a dissolution des tensioactifs lors de la compression de la surface, et adsorption lors de l'expansion [Bhattacharyya 2000, Bonfillon 1994, Langevin 1999, Monroy 1998]. La dissolution lors de la variation de l'aire implique donc un terme de dissipation supplémentaire. Dans ce cas la réponse à une déformation sinusoïdale est décrite par un nombre complexe :

$$\varepsilon = \varepsilon_r(\omega) + i\omega\kappa(\omega) \quad (26)$$

où κ est la viscosité de surface, ω est la fréquence d'oscillation. Si la fréquence est très faible le système a toujours le temps d'atteindre l'équilibre, $\varepsilon_r = \kappa = 0$. Dans le cas opposé à haute fréquence la couche n'a pas le temps de répondre et elle se comporte comme une monocouche insoluble, $\kappa = 0$ et $\varepsilon = \varepsilon_0$. Afin de déterminer l'effet des asphaltènes et des résines sur les

2. EFFET DES ASPHALTÈNES ET DES RÉSINES A L'INTERFACE HUILE-GAZ

propriétés viscoélastiques de l'interface, ce type de mesures a été réalisé avec la méthode de la goutte oscillante (cf. § 2.4.3).

2.3. MÉTHODES EXPÉRIMENTALES

2.3.1. Extraction des résines et des asphaltènes

Les résines et asphaltènes, utilisés pour cette étude, proviennent de la même huile de gisement qui est une huile lourde du Venezuela. Tous les solvants sont de grade Pur pour Analyse provenant de SDS, la silice est de taille 60 et de grade chromatographique.

La précipitation des asphaltènes a été effectuée au n-heptane selon le mode opératoire proposé par le Laboratoire Central des Ponts et Chaussées. La concentration en asphaltènes du brut est de 10 % en poids à l'heptane et 17 % au pentane. Le précipité est récupéré par filtration, nettoyé au toluène, puis séché. La fraction soluble est ensuite absorbée sur un gel de silice dans une colonne chromatographique. Après quoi, les résines sont extraites à l'aide d'une solution d'acétone (40 %), de MeCl ou chlorure de méthylène (28 %) et de toluène (32 %) [McLean 1997a] (Figure 2.2).

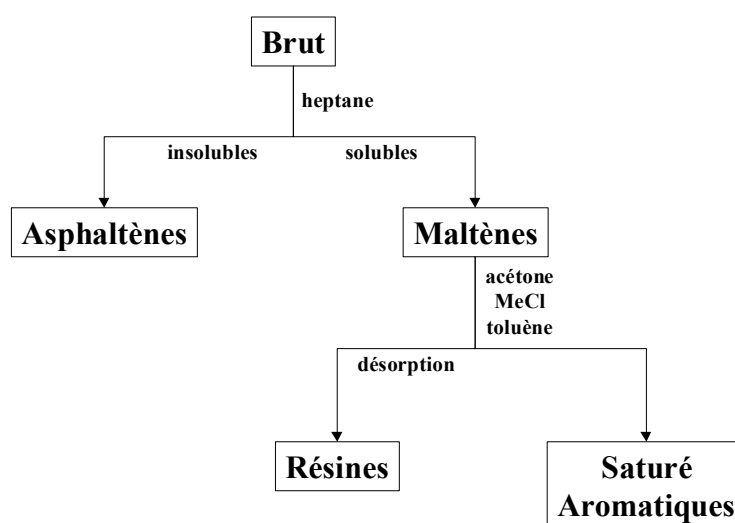


Figure 2.2 : Schéma d'extraction des asphaltènes et des résines.

Les asphaltènes et les résines sont ensuite mis en solution dans du toluène à différentes concentrations en poids. L'unité utilisée pour les concentrations est le % en poids.

2.3.2. Moussabilité

Les tests de moussabilité sont réalisés dans un tube de verre (hauteur 20 cm, diamètre 3 cm) à la base duquel est placé un fritté de verre (Figure 2.3). La mousse est produite par injection de gaz (azote).

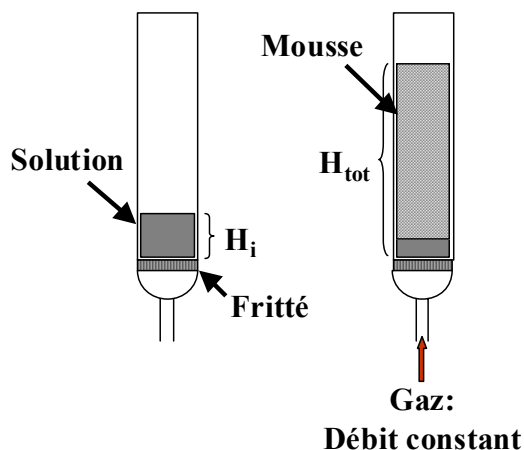


Figure 2.3 : Dispositif expérimental pour la mesure de la moussabilité.

Pour un débit donné, la moussabilité f est caractérisée par le rapport entre le volume total (mousse + liquide), et le volume initial de solution, c'est-à-dire : $f = H_{tot}/H_i$. Ce paramètre est purement qualitatif mais permet de comparer la capacité à mousser des solutions. D'autre part, il est lié au temps de vie des films puisque la hauteur maximum est atteinte quand la production de bulles contrebalance leur destruction.

Il faut préciser que ce type d'expérience donne des informations sur les effets des tensioactifs en place et non sur le processus réel en milieu poreux. Les échelles de temps pour la formation de bulles millimétriques sont de l'ordre de la seconde, alors que sur champs les temps sont supérieurs de plusieurs ordres de grandeurs. D'autre part, l'évaporation du toluène affecte grandement la mesure.

2.3.3. Temps de vie de films

Le dispositif utilisé pour ces mesures est composé d'un anneau en acier inoxydable (diamètre 1 cm) et d'un récipient fermé contenant la solution permettant de travailler en atmosphère sursaturée en vapeur de toluène (Figure 2.4). L'anneau horizontal est trempé dans la solution puis retiré formant ainsi un film. On mesure alors le temps de vie du film avant rupture à l'œil nu. Le processus de rupture de film mince étant aléatoire, la mesure est effectuée 50 fois.

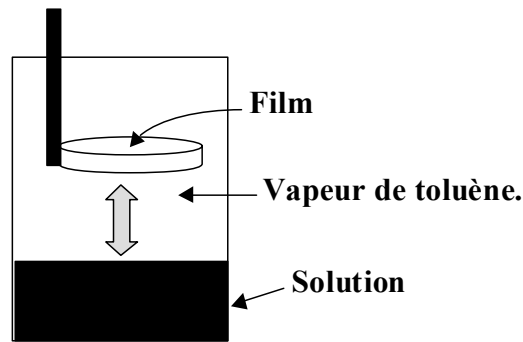


Figure 2.4 : Dispositif expérimental pour la mesure de temps de vie de film.

2.3.4. Les propriétés de surface

Les mesures de tension dynamique et des propriétés viscoélastiques sont obtenues avec un tensiomètre [Benjamins 1996] qui automatise les méthodes de la goutte pendante et oscillante [Johnson 1994, Johnson 1996, Lin 1990]. La géométrie de la goutte est déterminée par analyse d'images successives, et la tension dynamique est obtenue en fonction du temps après résolution de l'équation de Laplace :

$$\Delta P = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (27)$$

avec γ la tension interfaciale, R_1 et R_2 les rayons de courbure, et ΔP la différence de pression entre les deux phases.

Le volume de la goutte peut être soumis à de faibles oscillations sinusoïdales à une fréquence choisie. Cette variation du volume produit donc une variation sinusoïdale de l'aire A de la goutte. On obtient alors le module de Gibbs défini par l'équation (25). Précisons que les expressions précédentes négligent les effets de dissipation visqueuse dans le volume, et doivent être corrigés avec des liquides très visqueux [Johnson 1994].

La goutte est formée avec une seringue et se trouve en atmosphère sursaturée en vapeur de toluène. Un moteur contrôle le volume de la goutte. Toutes les mesures sont effectuées à volume constant, à pression atmosphérique et à 20 °C. Les expériences de rhéologie de surface ont été réalisées avec une variation de l'aire de 5 % et une période d'oscillations de 10 s.

2.3.5. Micromodèle

Le micromodèle est un dispositif de visualisation 2D constitué de deux plaques transparentes superposées. Une des plaques a une surface plane, sur l'autre un motif en relief est photogravé. C'est ce relief qui modélise la structure du milieu poreux (pores, restrictions, chenaux, etc.). Nous avons utilisé des micromodèles en verre. Les micromodèles sont utilisés

dans le but qualitatif d'observer des phénomènes tels que la coalescence, la nucléation, etc. (cf. la revue de Lenormand [Lenormand 1999]). Nous n'avions donc aucune exigence sur le motif utilisé.

Les plaques de verres sont rectangulaires de dimension : 22.8 cm × 5.5 cm × 0.1 mm. Il y a deux motifs (Figure 2.5), qui correspondent à des obstacles carrés de tailles différentes : les plus grands font 1.5 mm, les plus petits 0.5 mm. La largeur des chenaux varie de 0.1 à 0.5 mm.

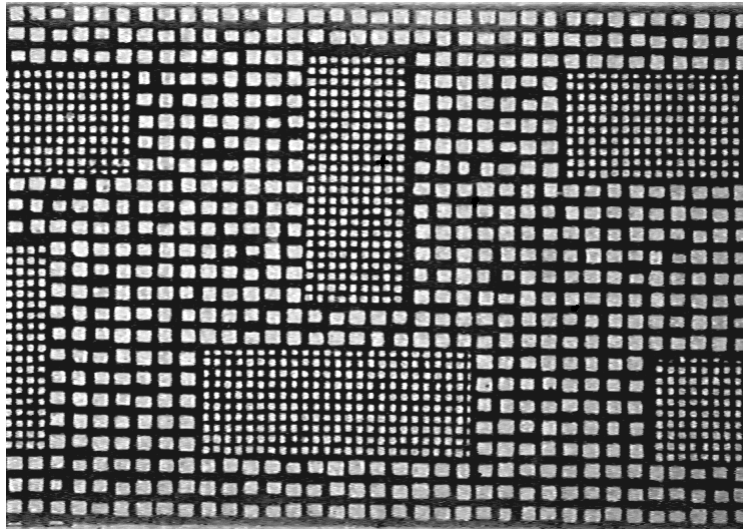


Figure 2.5 : Micromodèle en verre saturé avec une solution à 1 % d'asphaltènes, la phase liquide en sombre et le solide en claire.

Les fluides utilisés sont deux solutions de 1 et 20 % d'asphaltènes dans du toluène. Les solutions furent d'abord saturées en CO₂ à pression ambiante. Une fois le liquide mis en place dans le micromodèle, la déplétion a été réalisée par soutirage du fluide à débit constant (3 cm³.h⁻¹), une caméra CCD permettant d'enregistrer en continu l'expérience.

Dans un deuxième temps, afin d'étudier le facteur temps, le micromodèle a été saturé en huile, et des bulles de gaz ont été mises en place dans le réseau. Le dispositif a été laissé ainsi pendant plus d'un mois, après quoi le fluide en place a été déplacé par injection d'eau. Cette dernière expérience a été faite avec la solution à 20 % uniquement.

2.4. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

2.4.1. Moussabilité

La Figure 2.6 montre la variation de la moussabilité en fonction de la concentration d'asphaltènes (C_{asph}) en solution dans du toluène pour trois débits. On observe un changement de pente avec un déplacement aux plus faibles concentrations quand le débit augmente.

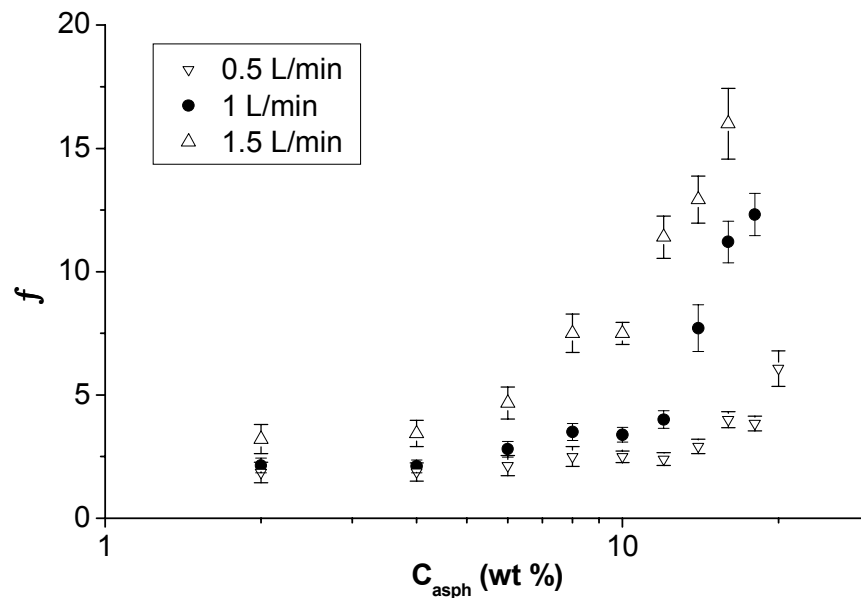


Figure 2.6 : Moussabilité en fonction de la concentration en asphaltènes pour trois débits différents.

La viscosité classique des solutions, appelée "viscosité de volume" pour la différencier de la viscosité de surface, est représentée en fonction de C_{asph} sur la Figure 2.7. On peut remarquer un changement de régime autour de 10 % d'asphaltènes. Ce résultat a déjà été observé pour des solutions d'asphaltènes dans différents solvants [Ramos 2001] ou dans les maltènes [Hénaut 2001]. Ce comportement est similaire à celui des solutions de polymères en régime semi-dilué qui entrent en contact à la concentration de transition c^* [Hénaut 2001]. L'enchevêtrement des molécules fait donc brutalement augmenter la viscosité.

Sur la Figure 2.8 est représentée la variation de la viscosité en fonction de la concentration en résines, pour des solutions contenant 10 % en poids d'asphaltènes. On remarque : d'une part

que la viscosité varie peu avec les résines, et d'autre part que les solutions contenant des résines sont beaucoup moins visqueuses que la solution sans résines. Ceci se comprend aisément en considérant le modèle de "micellisation" des asphaltènes par les résines. Les résines entourant les asphaltènes font alors écran, évitant l'enchevêtrement des molécules [Hénaut 2001].

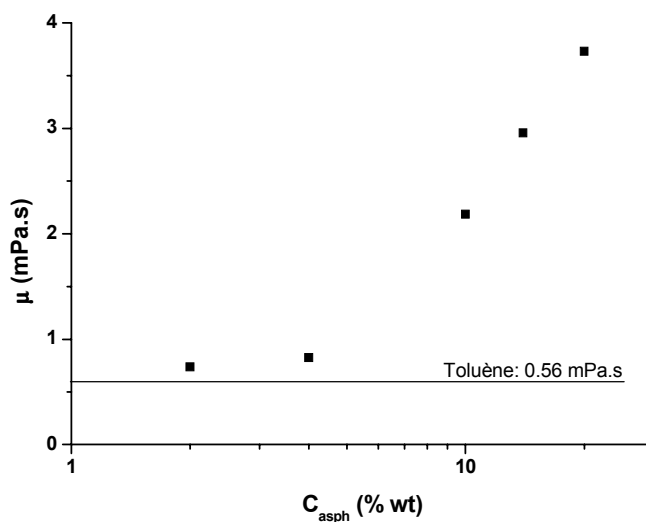


Figure 2.7 : Viscosité de volume en fonction de la concentration d'asphaltènes.

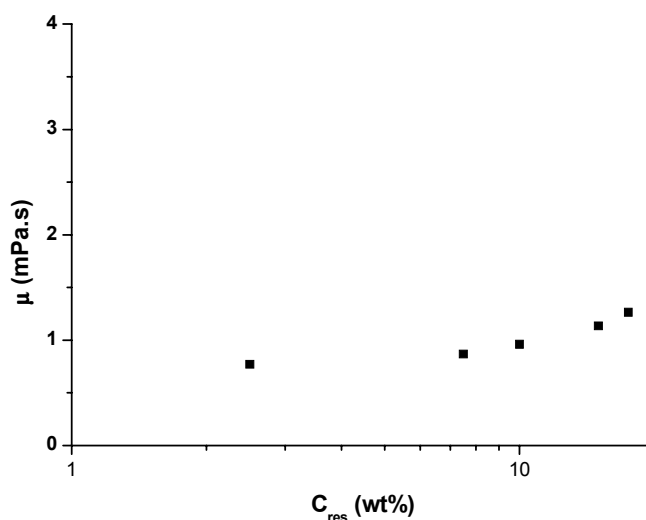


Figure 2.8 : Viscosité de volume de la solution à 10 % d'asphaltènes en fonction de la concentration en résines.

La variation de la viscosité et celle de la hauteur de mousse au plus haut débit sont très proches. Une fois formée, la mousse se désagrège sous l'effet du drainage et de la rupture des bulles. Le drainage se produit à la fois dans les films séparants les bulles et dans les bordures de Plateau connectants les films. Dans les deux cas, la vitesse de drainage est inversement proportionnelle à la viscosité du liquide [Verbist 1999]. Quand l'épaisseur du film est suffisamment petite il peut y avoir rupture. En l'absence de forces répulsives, associées à la formation d'une couche compacte de tensioactifs, l'épaisseur critique est bien définie et est de l'ordre de quelques dizaines de nm [Vrij 1966]. Si l'on admet que les asphaltènes ne forment pas une couche suffisamment compacte, aux temps courts dans le cas présent, le temps de vie de la mousse dépendra fortement de la viscosité. C'est ce qui est observé pour le haut débit. Le comportement à plus faible débit doit avoir une autre origine. En effet, la vitesse de formation des bulles diminuant, les asphaltènes peuvent mieux couvrir les surfaces.

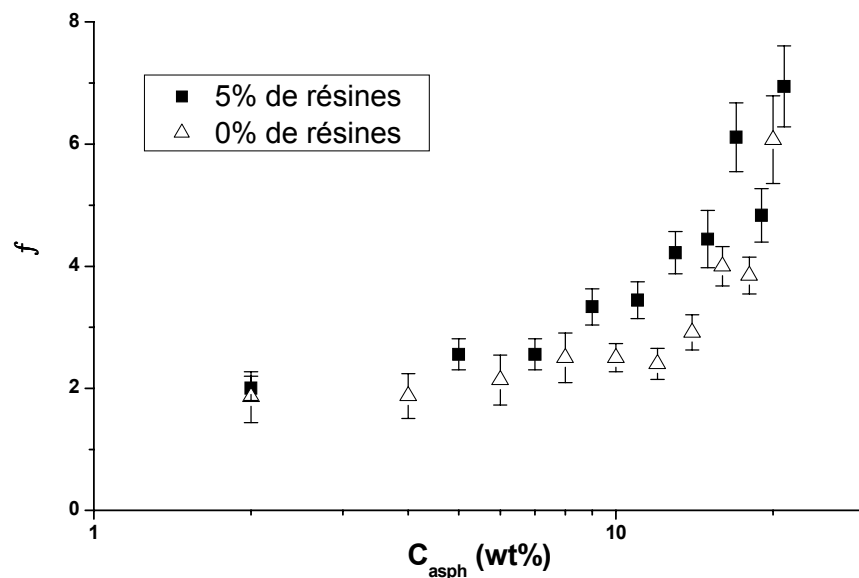


Figure 2.9 : Moussabilité en fonction de la concentration en asphaltènes pour deux solutions : une avec 5 % de résines, l'autre sans résines. Débit de $0.5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$.

Sur la Figure 2.9, la moussabilité est représentée en fonction de la concentration en asphaltènes pour deux solutions, l'une contenant 5 % de résines, l'autre sans résines. L'absence d'effets des résines, à cette concentration, indique que la couverture de surface doit être la même dans les deux cas. La Figure 2.10 montre la moussabilité en fonction du rapport résines/asphaltènes. La série de solutions contenant 10 % d'asphaltènes et différentes concentrations de résines ne présente pas de variations notables, comme la viscosité de volume (Figure 2.8). Par contre, pour l'autre série, dont la concentration en résines est constante (5 %), f augmente rapidement aux faibles valeurs de R/A (c'est-à-dire aux fortes concentrations d'asphaltènes). Remarquons que les solutions à 10 % en asphaltènes, l'une avec 5 % de résines l'autre sans, montrent la même moussabilité alors que les viscosités sont

différentes. Il semble donc que la concentration en asphaltènes soit un facteur important pour la moussabilité. Ce résultat n'est pas dû uniquement à une augmentation de la viscosité mais également à une meilleure couverture des interfaces par les asphaltènes.

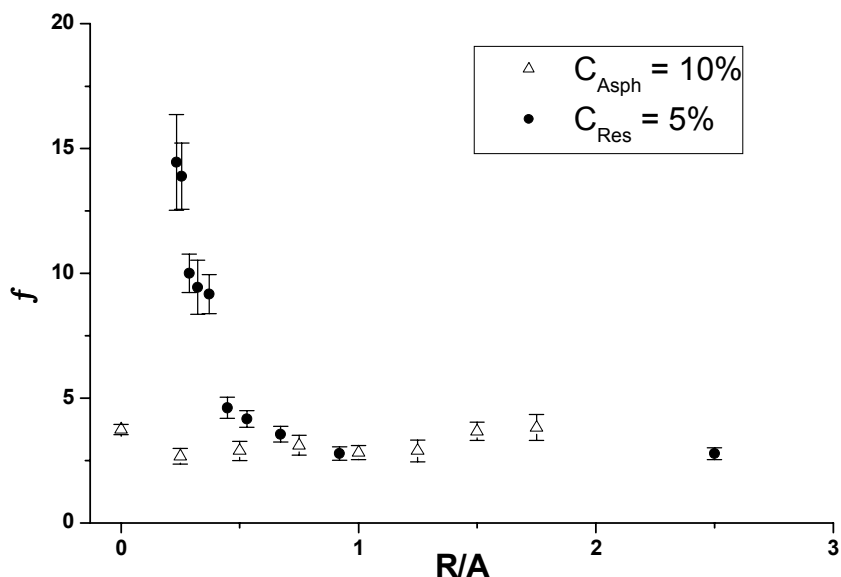


Figure 2.10 : Moussabilité en fonction du rapport Résines/Asphaltènes (R/A) pour deux solutions : une à 10 % d'asphaltènes, l'autre à 5 % de résines.

2.4.2. Temps de vie de films

La Figure 2.11 montre le temps de vie τ de films pour des solutions avec et sans résines en fonction de la concentration d'asphaltènes (moyenne de 50 mesures). Comme pour la moussabilité, l'absence d'effet des résines confirme que la viscosité n'est pas le principal facteur. Cela suggère également que la couverture du film est la même avec ou sans résines, tout du moins pour 5 % de résines. Nous verrons que les propriétés de surface peuvent être contrôlées par les résines à partir d'une certaine concentration de résines pour une concentration d'asphaltènes donnée.

En supposant que la rupture se produit via la nucléation de trou dans le film [de Gennes , Exerowa 1992], le temps de vie des films peut être décrit par :

$$\tau = \alpha \exp\left(\frac{E^*}{k_B T}\right) \quad (28)$$

avec $\alpha \propto \tau_0 S_0/S$, S l'aire du film, S_0 l'aire d'un trou et τ_0 un temps caractéristique de diffusion pour le trou proportionnel à la viscosité, E^* est une énergie d'activation, T la température absolue et k_B la constante de Boltzmann.

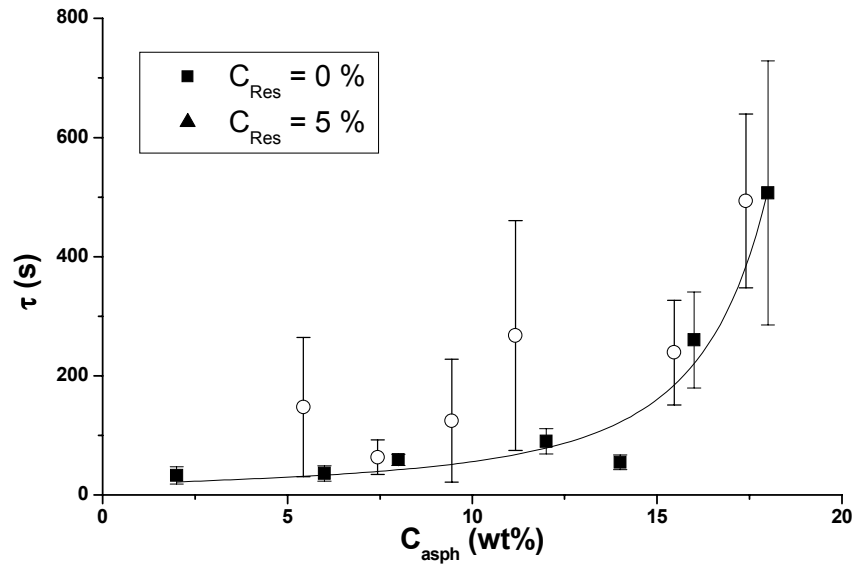


Figure 2.11 : Temps de vie de films en fonction de la concentration en asphaltènes pour une solution avec 5 % de résines et une seconde sans résines. La ligne représente le fit par le modèle.

En supposant que le potentiel chimique du tensioactif dans le film est constant, et qu'après la rupture il devient égal à celui du tensioactif en solution $\mu = k_B T \ln(c/c_0)$, Exerowa *et al.* [Exerowa 1992] donnent la dépendance suivante pour τ en fonction de la concentration c :

$$\tau = \alpha \exp\left(\frac{B}{\ln(c_0/c)}\right) \quad (29)$$

Ils trouvent une très bonne corrélation avec le comportement de films minces formés avec des solutions de tensioactifs à une concentration inférieure à la concentration critique micellaire (cmc).

Dans un autre modèle proposé par de Gennes [de Gennes], l'énergie d'activation est liée à l'élasticité de surface. En effet, la nucléation d'un trou implique une compression locale des molécules tensioactives, et l'on peut supposer une relation du type :

$$E^* \approx \varepsilon S_0 \quad (30)$$

Expérimentalement on trouve des lois du type $\varepsilon \sim 2\Pi$ aux faibles concentrations [Lucassen 1975, Lucassen-Reynders 2001]. En utilisant cette expression et l'équation (22), on trouve finalement une loi proche de l'équation (29).

L'ajustement avec l'équation (29) est montré sur la Figure 2.11. Une bonne corrélation entre les données expérimentales et la courbe théorique conforte l'idée que les asphaltènes peuvent s'absorber à l'interface et se comporter comme un tensioactif.

2.4.3. Tension dynamique et viscoélasticité de surface

2.4.3.1. Les solutions d'asphaltènes

Les mesures de tension dynamique pour des solutions d'asphaltènes à différentes concentrations sont représentées sur la Figure 2.12. L'ordre de grandeur du temps d'adsorption est bien supérieur à celui des tensioactifs classiques. Les mesures de moussabilité et de temps de vie de films font intervenir des temps courts, au plus quelques centaines de secondes. La Figure 2.13 montre les valeurs de la tension de surface pour des temps inférieurs à 100 s. La courbe ressemble à celle des solutions aqueuses de tensioactifs avant la cmc. Il faut rappeler que le solvant est organique avec une faible tension de surface (28.5 mN/m au lieu de 72.8 mN/m pour l'eau), l'amplitude de variation est donc petite. La tension interfaciale commence à varier notablement dans la région où le temps de vie de films augmente considérablement. Ceci confirme le fait que ce temps de vie est probablement contrôlé par l'élasticité de la couche d'asphaltènes.

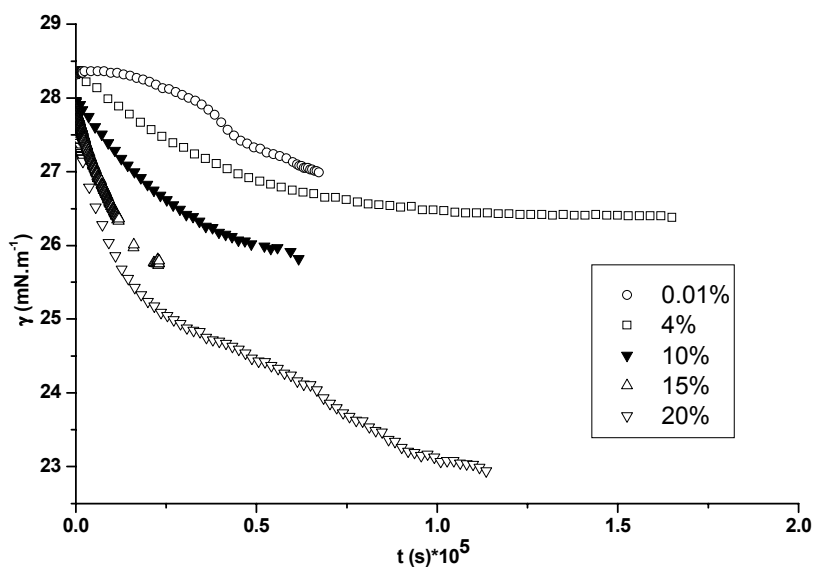


Figure 2.12 : Mesures de tension de surface huile/air pour différentes concentrations d'asphaltènes.

Bien que n'étant pas à l'équilibre aux temps courts, le modèle de Langmuir (Eq. (22)) a été utilisé afin de déterminer un ordre de grandeur pour la concentration de surface. Sur la Figure 2.13 sont représentés deux calculs. La ligne pleine correspond au cas où la tension du toluène est ajustable, on obtient alors : $\gamma_0 \sim 28.4 \text{ mN.m}^{-1}$, $\Gamma \sim 1.3 \cdot 10^{-7} \text{ mol.m}^{-2}$, $a \sim 3 \text{ \%wt}$. La courbe discontinue correspond au cas où γ_0 est fixée à 28.5 mN.m^{-1} , on trouve : $\Gamma \sim 1.1 \cdot 10^{-7}$ et $a \sim 1.2 \text{ \%wt}$. Cet ordre de grandeur pour Γ donne une surface par molécules à l'interface d'une dizaine de nm².

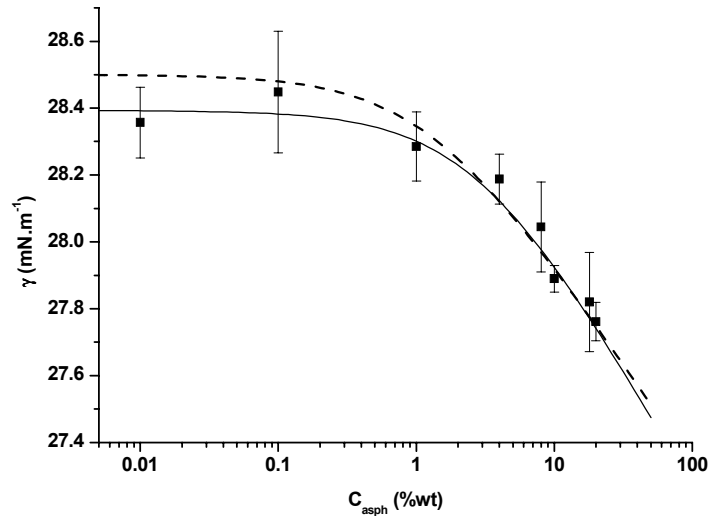


Figure 2.13 : Valeurs de la tension de surface en fonction de la concentration en asphaltènes pour des temps inférieurs à 100s. Les lignes représentent le fit avec le modèle de Langmuir Eq. (22).

Les courbes de la Figure 2.12 présentant la tension dynamique pour différentes concentrations ont un aspect similaire à ce que l'on peut observer pour des solutions dont l'adsorption est contrôlée par la diffusion [Lin 1990]. La grande différence est l'échelle de temps qui est beaucoup plus longue (quelques jours). Nous avons également observé qu'après un temps suffisamment long (\sim un jour), et pour les plus grandes concentrations, la surface de la goutte se solidifiait. Une fois la solidification commencée, la distorsion de la géométrie de la goutte fausse la résolution de l'équation de Laplace, qui n'est applicable que pour des liquides. La tension dynamique mesurée n'a plus de sens. C'est ce que l'on observe au niveau de la reproductibilité des mesures, comme on peut le remarquer Figure 2.14 pour deux solutions à 20 % d'asphaltènes. Les deux séries de mesures coïncident très bien jusqu'à $t \approx 15000$ s, après quoi, les courbes sont complètement différentes. Nous verrons plus loin que ce point de divergence est corrélé à une brutale augmentation du module élastique de Gibbs. Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux premières parties de ces courbes.

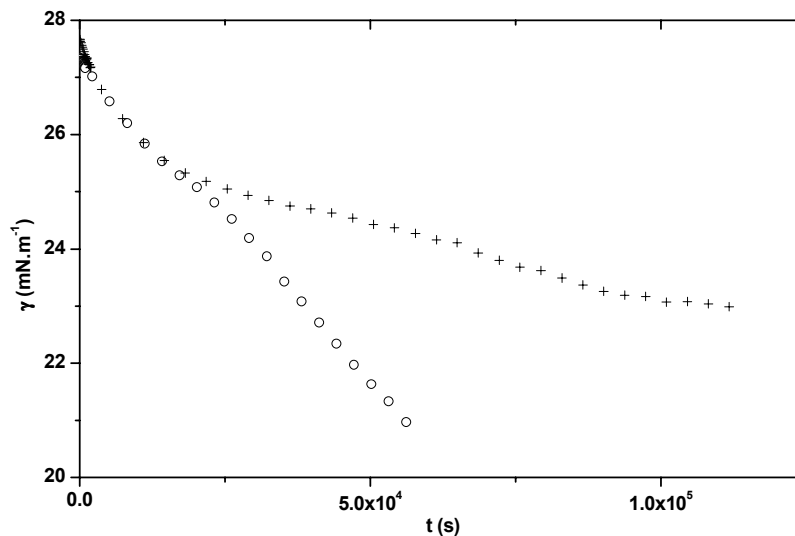


Figure 2.14 : Mesures de tension dynamique pour deux solution à 20 % d'asphaltènes.

Nous avons d'abord essayé les approximations aux temps longs (Eq.(24)) et courts (Eq. (23)). Celles-ci ne sont valables que si l'adsorption est contrôlée par la diffusion.

La valeur de D , avec l'approximation aux temps courts, est inférieure à $10^{-11} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, ce qui correspondrait à des objets absorbés de taille millimétrique. La valeur trouvée n'est donc pas physique. L'approximation aux temps longs est plus difficile à obtenir car l'on doit connaître la concentration de surface. Or l'équation de Gibbs n'est applicable qu'à l'équilibre. Nous avons alors essayé de déterminer un ordre de grandeur en appliquant l'équation (19) aux valeurs d'équilibre γ_e données tableau 1 (pour la définition de γ_e voir plus loin). Avec cette démarche nous obtenons $\Gamma_\infty = 4.2 \cdot 10^{-11} \text{ mol} \cdot \text{cm}^{-2}$. Cela correspond à une surface par molécules environ dix fois plus grande que pour de petites molécules tensioactives, ordre de grandeur qui semble raisonnable vu la structure des molécules d'asphaltènes. En utilisant cette valeur dans l'équation (24), on obtient une valeur de D encore trop faible ($D \approx 4.6 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) incompatible avec la taille des molécules. Nous avons aussi essayé un formalisme plus complet en suivant la méthode proposée par Lin & al [Lin 1990] permettant d'interpréter l'ensemble de l'intervalle de temps. Là encore des valeurs non physiques pour D sont obtenues. On peut donc en conclure que le processus d'adsorption n'est pas entièrement contrôlé par la diffusion.

De nombreux travaux montrent que certaines espèces chimiques, telles que les protéines, ont besoin de plus de temps pour atteindre l'équilibre. Serrien *et al.* [Miller 2000, Serrien 1992, Serrien 1990] proposent le modèle suivant pour décrire la variation très lente de la tension de surface :

- adsorption par diffusion du tensioactif dans sa forme d'origine à l'interface ;
- dénaturation ou réorientation des molécules à la surface ;

- établissement d'un nouvel équilibre.

Ils supposent également que seuls les tensioactifs dans leur forme native peuvent s'échanger avec la sub-surface. La tension dynamique peut être alors décrite par [Serrien 1992, Serrien 1990] :

$$\gamma = \gamma_e + \left[\alpha \exp\left(-\sqrt{\frac{4t}{\pi\tau}}\right) + \beta \right] \exp(-kt) \quad (31)$$

$$\text{avec } \alpha + \beta = \gamma_0 - \gamma_e$$

où γ_0 est la tension interfaciale du solvant, γ_e est la tension interfaciale à l'équilibre, k est le taux de transformation entre les deux états des molécules, α et β sont des constantes. Le premier terme en $e^{-\sqrt{t}}$ correspond au processus de diffusion, la seconde exponentielle représente la réorientation des molécules à l'interface.

Nous avons essayé de corréliser les mesures expérimentales avec l'expression (31) pour les concentrations à 4, 10, 15 et 20 % d'asphaltènes. Aucun des ajustements n'ont donné de résultats satisfaisants. Non seulement la qualité de ces ajustements était mauvaise, mais surtout le temps caractéristique de diffusion, τ , était plus long que celui de réorientation, k^{-1} , résultat inconsistant. L'expression (31) ne décrit donc pas les expériences. Il est probable que l'adsorption par diffusion est extrêmement rapide du fait des fortes concentrations. Par conséquent, la variation temporelle observée n'est peut-être due qu'à la réorganisation des molécules et/ou à la présence d'une barrière d'adsorption. Nous avons alors essayé un modèle simplifié sous la forme d'une exponentielle décroissante comme suit :

$$\gamma = \gamma_e + \Delta\gamma \exp(-kt) \text{ avec } \Delta\gamma = \gamma_i - \gamma_e \quad (32)$$

où γ_i est la valeur de tension interfaciale atteinte après adsorption par diffusion, i.e. aux temps courts. Les résultats sont représentés sur la Figure 2.13, et les valeurs des paramètres sont regroupées dans le Tableau 2.1.

Tableau 2.1 : Paramètres utilisés dans l'équation (32).

C (% wt)	4	10	15	20
γ_e (mN.m ⁻¹)	26.34	25.44	25.02	24.71
$\Delta\gamma$ (mN.m ⁻¹)	2.07	2.52	2.81	2.92
k (s ⁻¹)	$2,6 \cdot 10^{-5}$	$3,0 \cdot 10^{-5}$	$6,2 \cdot 10^{-5}$	$8,7 \cdot 10^{-5}$

Pour la concentration à 4 % d'asphaltènes la corrélation est excellente sur l'ensemble de l'intervalle de temps. Précisons que l'expression utilisée n'est qu'une exponentielle décroissante, elle ne permet de mettre en évidence qu'un temps caractéristique. Pour les concentrations supérieures, la corrélation est bonne sur le début des données, intervalle de temps qui nous intéresse pour le moment.

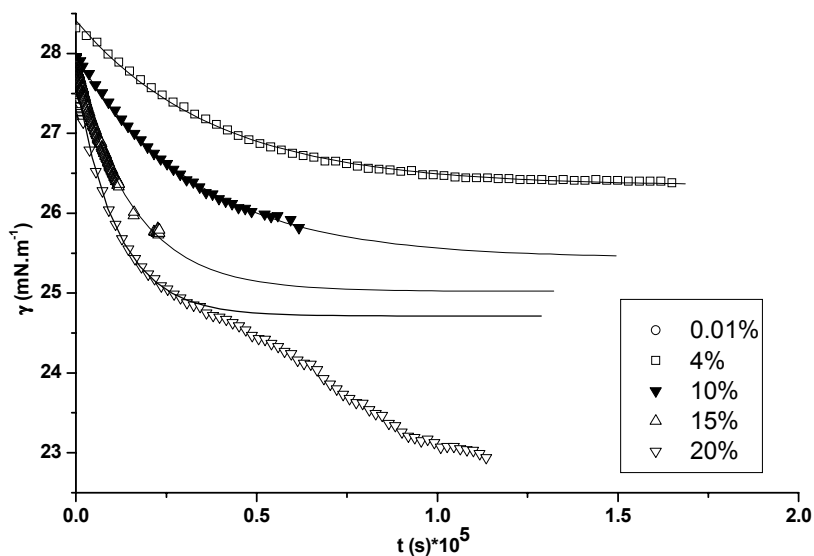


Figure 2.15 : Corrélation entre les mesures de la tension dynamique et l'équation (32) (lignes pleines).

Le paramètre k^{-1} est représenté sur la Figure 2.16 en fonction de la concentration en asphaltènes. Une rupture de pente se produit à $C_{\text{asph}} = 10\%$. Cette valeur critique de la concentration correspond à la concentration de transition c^* observée pour la viscosité. Ceci pourrait s'expliquer par l'association des agrégats d'asphaltènes. Si l'on suppose que la réorganisation des molécules commence en solution par la formation d'agrégats, que ceux-ci sont absorbés tels quels, alors il se comprend aisément que le processus de réorientation à l'interface s'accélère.

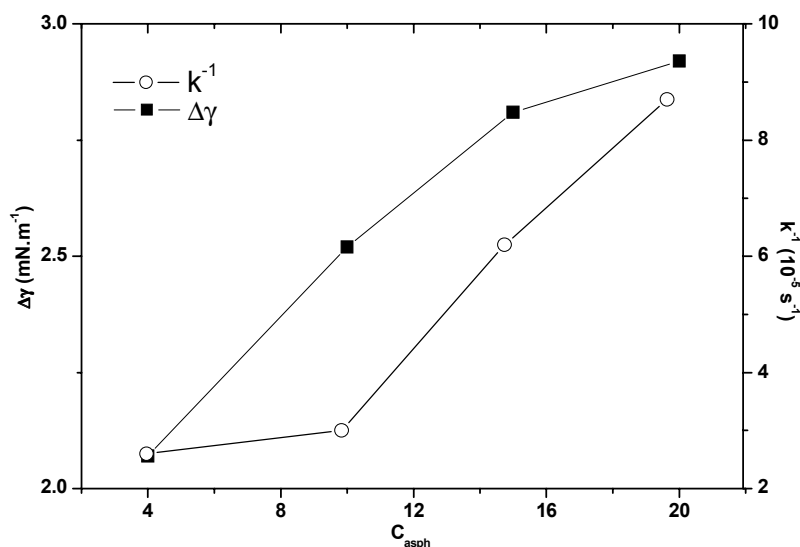


Figure 2.16 : Paramètres k et $\Delta\gamma$ en fonction de la concentration en asphaltènes.

Nous avons mentionné précédemment la formation d'une croûte "solide" à la surface de la goutte pour des concentrations supérieures à 10 % (tout du moins, sur l'intervalle de temps des mesures). La formation d'une telle couche influe forcément sur les propriétés viscoélastiques de l'interface. La variation du module élastique en fonction du temps est représentée Figure 2.17. On observe, pour deux concentrations, une augmentation brutale du module élastique. Plus la concentration est élevée, plus l'accroissement brutal de ϵ_0 se produit tôt. Pour les concentrations à 15 % et 20 %, la transition de phase à l'interface se produit pour $t^* \approx 10^4$ s. Pour 10 % d'asphaltènes elle s'effectue plus tard entre $3 \cdot 10^4$ et $8 \cdot 10^4$ s. Il semble donc que 10 % soit ici aussi une valeur critique quant au changement s'opérant à l'interface.

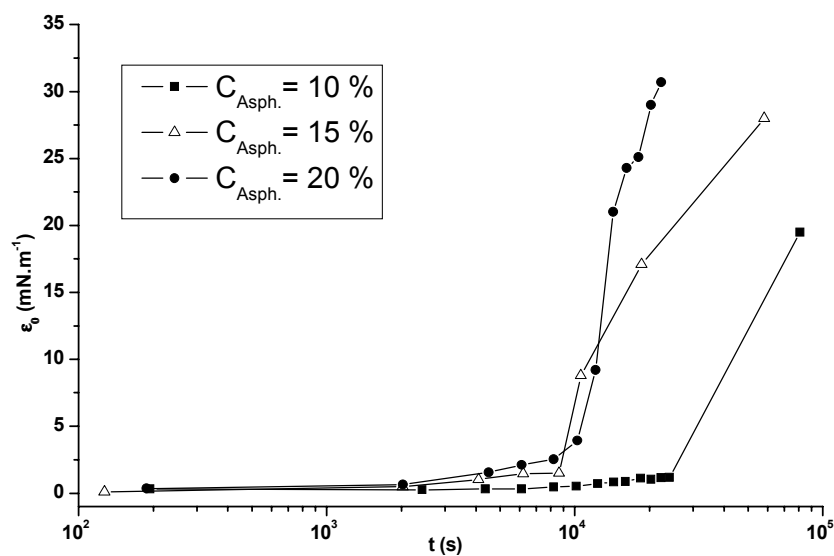


Figure 2.17 : Module de Gibbs en fonction du temps pour différentes concentrations d'asphaltènes.

Quelques remarques sont à faire à propos de ces mesures :

- Comme nous l'avons expliqué, le changement de la nature de l'interface va jouer sur la validité des mesures. Ces résultats sont donc à prendre avec précautions. Notons que la reproductibilité est très satisfaisante surtout pour une analyse qualitative (Figure 2.18).
- Malgré l'atmosphère sursaturée en toluène, l'évaporation va intervenir dans ce processus, mais les mesures sur l'effet des résines vont montrer que l'évaporation n'est pas un paramètre critique.

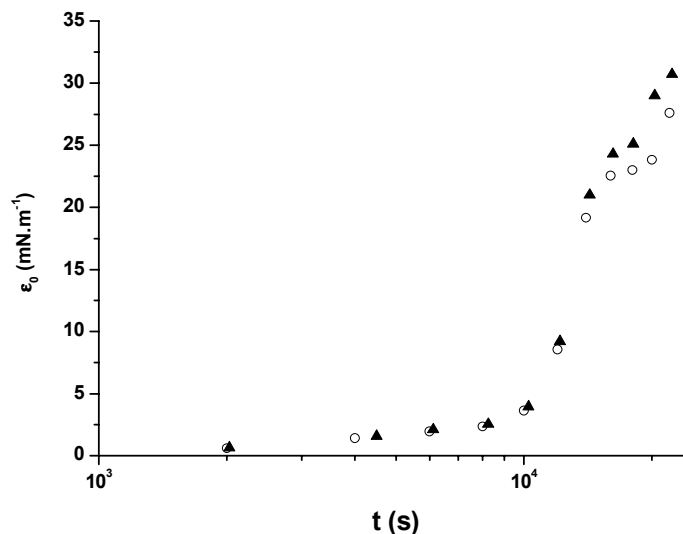


Figure 2.18 : Reproductibilité des mesures du module de Gibbs pour deux solution à 20 % d'asphaltènes.

2.4.3.2. Les solutions d'asphaltènes et de résines

Nous allons maintenant regarder l'effet de l'ajout de résines sur une solution à 10 % d'asphaltènes. Sur la Figure 2.19 sont représentées les mesures de tension dynamique pour des solutions à 10 % d'asphaltènes avec ou sans résines. Il y a une nette différence entre les deux plus fortes concentrations en résines (10 et 20 % en poids) et la plus faible (5 %). Ces résultats ont été ajustés avec l'équation (32), les paramètres utilisés sont réunis dans le Tableau 2.2. La cinétique ralentit légèrement avec l'ajout de 5 % en résine, puis s'accélère d'un facteur 10 pour les concentrations à 10 % et 20 %. D'autre part, la valeur de la tension de surface à l'équilibre calculée avec l'expression (32) augmente avec la concentration en résines.

Entre la solution sans résines et celle à 5 % le comportement global est le même, seule la cinétique change. Le ralentissement de la cinétique peut se comprendre par le modèle de solubilisation des asphaltènes par les résines décrit précédemment. McLean & al [McLean 1997c] ont proposé, pour l'interface eau/huile, que les agrégats d'asphaltènes partiellement solubilisés par les résines peuvent s'absorber à la surface. Dans ce cas l'équilibre, dû à la réorganisation de telles "micelles" à l'interface, nécessite plus de temps. L'accélération de la cinétique pour les deux plus fortes concentrations de résines montre que la couverture de la surface a changé. Les asphaltènes étant solubilisés par une partie des résines, on peut supposer qu'à partir d'une concentration limite en résines celles-ci contrôleront l'interface. Puisqu'elles sont de tailles plus petites, la cinétique est accélérée. Ese & al [Ese 1999] ont observé le même phénomène. Pour l'interface huile/eau ils trouvent un rapport critique R/A de 0.5.

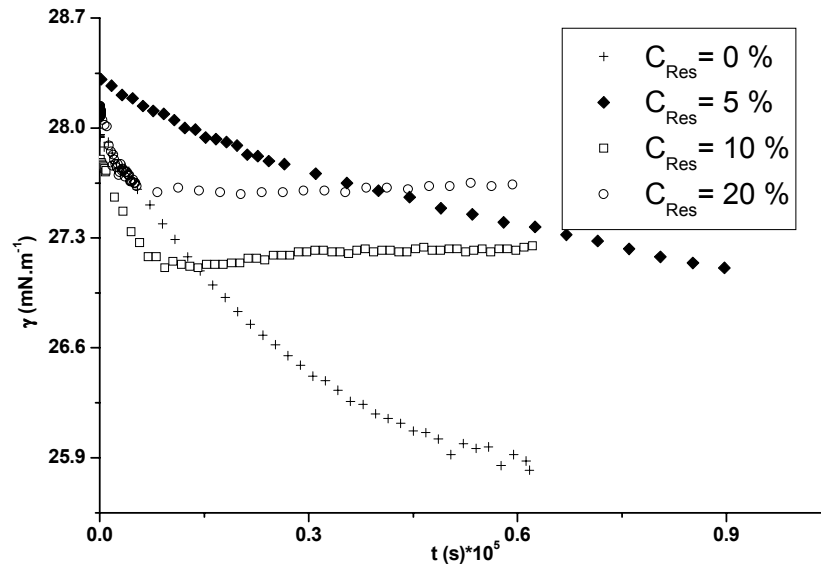


Figure 2.19 : Mesures de tension dynamique pour des solutions à 10 % d'asphaltènes et pour différentes concentrations en résines.

Tableau 2.2 : Paramètres utilisés dans l'équation (32).

$C_{résines}$ (% wt) $C_{asph} = 10\%$	0	5	10	20
γ_e (mN.m ⁻¹)	25.44	26,70	27.19	27.60
$\Delta\gamma$ (mN.m ⁻¹)	2.52	1,58	0.60	0.52
k (s ⁻¹)	$3,0 \cdot 10^{-5}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-4}$	$4,4 \cdot 10^{-4}$

Les mesures de rhéologie de surface sont présentées sur la Figure 2.20. Il n'y a aucune différence notable entre la solution à 5 % de résines et celle ne contenant que les asphaltènes. Par contre, pour les solutions à 10 % et 20 % de résines, l'augmentation du module élastique n'est plus observée, du moins sur cet intervalle de temps. Ceci concorde avec l'interprétation précédente. Le film étant contrôlé par les résines à ces concentrations, il n'y a plus changement de la nature de l'interface. L'augmentation de la compressibilité avec les résines a aussi été observée par Ese & al [Ese 1999].

Remarque : Pour une même concentration d'asphaltènes la formation de la "peau" à l'interface dépend de la quantité de résines. Donc l'évaporation n'est pas à l'origine du phénomène. Par contre c'est un paramètre qui peut perturber la cinétique en l'accélégrant.

Du fait de la diminution de la rigidité du film, la stabilité des mousses de brut devrait être corrélée avec le rapport R/A, comme c'est le cas pour la stabilité des émulsions [McLean 1997b]. Tout du moins sur des temps longs car les propriétés de surface ne sont pas affectées aux temps courts. Malgré tout, on ne peut pas conclure qu'il suffit d'avoir le plus faible rapport résines-asphaltènes pour obtenir la mousse la plus stable. En effet, certains auteurs ont

montré que la stabilité des émulsions pouvait être optimum pour un R/A donné [McLean 1997c]. D'autre part l'activité interfaciale des asphaltènes dépend de leur état de solubilité, donc les propriétés interfaciales vont dépendre du mélange utilisé pour les solubiliser, à savoir le rapport entre le précipitant (alcane) et le solvant (toluène) [McLean 1997b, McLean 1997c].

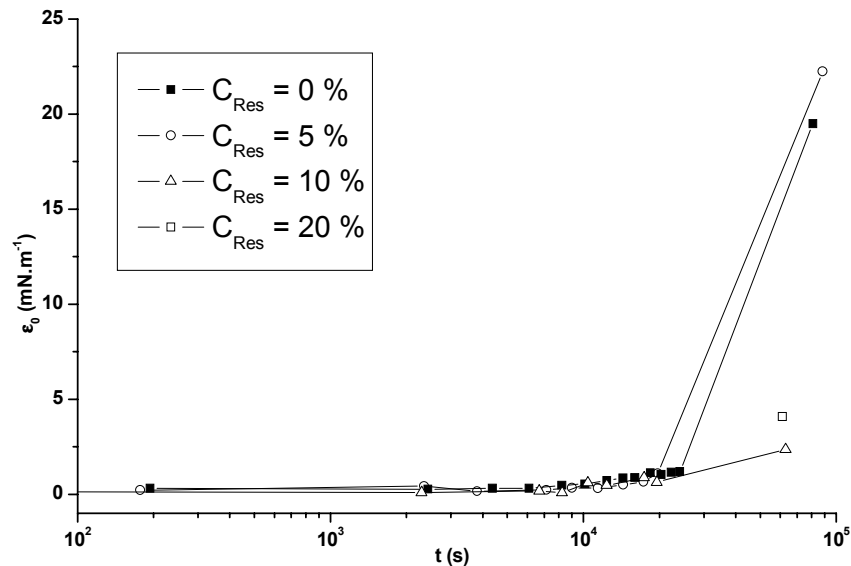


Figure 2.20 : Module de Gibbs en fonction du temps pour des solutions à 10 % d'asphaltènes et différentes concentrations de résines.

2.4.4. Études en micromodèle

Afin de vérifier l'existence d'une interface solide, et ses effets sur la coalescence des bulles en milieu poreux, des expériences de visualisation ont été réalisées sur micromodèle à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT).

2.4.4.1. La nucléation

La nucléation est abordée en détail dans un autre chapitre. Schématiquement ce processus correspond à la croissance par diffusion de microbulles préexistantes, celles-ci étant piégées dans les rugosités.

La première difficulté a été d'observer la nucléation au sein du milieu poreux. En effet, lors du soutirage la nucléation s'effectue préférentiellement dans les embouts, les *tubings*. Cette première remarque nous rappelle qu'il faut prendre avec précaution les résultats d'expériences de déplétion sans visualisation.

Une fois ce problème minimisé, la nucléation a pu être observée dans le milieu poreux. Tout comme cela a été observé par d'autres auteurs, la nucléation se produit à la surface des parois solides, puis les bulles se détachent et vont vers le centre [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Li 1991, Li 1995b].

Smith [Smith 1988] a émis l'hypothèse que les asphaltènes pouvaient être des sites de nucléation. Bora *et al.* [Bora 1997] avec des expériences en micromodèle haute pression n'ont observé aucune augmentation du nombre de bulles nucléées avec la quantité d'asphaltènes.

Aucune différence notable n'a pu être observée entre la solution à 1 % et celle à 20 % pour un même débit de soutirage. Il semble donc que la concentration en asphaltènes ne joue aucun rôle sur la nucléation.

2.4.4.2. La coalescence

Notre propos n'était pas l'étude proprement dite de la nucléation, mais l'influence des asphaltènes sur tout le processus. La coalescence est le mécanisme qui contrôlera en partie l'état de la phase de gaz dispersée. Nous avons pu observer ce qui se passait quand deux bulles de gaz se trouvaient en contact. Dans le cas de la solution à 1 % la coalescence se produit "instantanément", résultat attendu puisque les expériences précédentes nous ont montré que la formation de la peau se produit au-dessus de 10 % d'asphaltènes. La même observation a été faite avec la solution à 20 %, ce qui peut s'expliquer par l'échelle de temps trop court de ces expériences. En effet, les interfaces avaient un âge de l'ordre de la demi-heure ou de l'heure quand il y avait contact, or la formation de la peau semble se produire après minimum 4 heures (§ 2.3.4). Pour prendre en compte la cinétique lente, nous avons laissé plus d'un mois une solution à 20 % contenant des bulles dans un micromodèle. Dans ce cas également nous n'avons pas pu observer de preuves sur l'existence d'une peau. Il faut tout de même préciser qu'une seule expérience a été faite, donc la reproductibilité n'a pas été testée.

Les expériences en micromodèle semblent montrer qu'il n'y a pas formation de "peau". Cela veut-il dire que dans le cas de la goutte pendante c'est un effet de l'évaporation? C'est peu probable puisque pour deux solutions avec la même quantité d'asphaltènes (10 % en poids), on observe la formation d'une croûte uniquement s'il y a moins de 10 % de résines. Il y a peut-être une compétition avec l'adsorption sur les parois du micromodèle. Les asphaltènes avec ou sans résines sont connus pour s'adsorber à la surface des solides. Acevedo *et al.* [Acevedo 1998] trouvent des taux d'adsorption de l'ordre du mg.cm^{-2} pour des solutions d'asphaltènes avec ou sans résines. Ramos *et al.* trouvent des taux de l'ordre de quelques centaines de mg.g^{-1} [Ramos 2001]. Ce sont des valeurs non négligeables qui peuvent avoir leur importance.

2.5. CONCLUSION

Toutes les expériences effectuées : moussabilité, temps de vie de film, tension statique et dynamique, rhéologie de surface et viscosité de volume, montrent un changement de régime pour une concentration d'asphaltènes autour de 10 % en poids. Ce comportement peut être dû à la formation d'agrégats d'asphaltènes, ce qui influe sur le mécanisme d'adsorption. Il est évident qu'aux concentrations étudiées, le processus d'adsorption à l'interface huile-gaz n'est pas contrôlé par la diffusion. L'équilibre serait alors obtenu par une réorganisation des molécules d'asphaltènes à la surface. Ce réarrangement des asphaltènes mène à la formation d'une "peau", celle-ci est bien identifiée par l'accroissement du module élastique interfacial. Le module de Gibbs est un paramètre important pour la stabilité des mousses puisque la coalescence des bulles va être limitée par la rigidité de l'interface.

Nous avons observé la solubilisation des asphaltènes par les résines. La conséquence importante est la diminution de la rigidité de l'interface aux temps longs avec la fraction de résines. Aux temps longs la stabilité des mousses dépend donc fortement du rapport résines/asphaltènes, comme c'est le cas pour les émulsions.

Enfin, le facteur temps est important. Les résultats montrent qu'aux temps courts, l'ajout des résines n'a pas d'effets. L'activité des asphaltènes à la surface n'est significative qu'aux temps longs. Cette remarque est importante puisque sur champs les échelles de temps sont grandes.

Ces résultats donnent une bonne image de l'activité interfaciale des asphaltènes et des résines en solution dans du toluène, mais restent incomplets. En effet, pour modéliser les huiles il faut prendre en compte la fraction d'alcane dans le solvant. L'activité surfacique des asphaltènes dépend des autres constituants (saturés, aromatiques), de leur composition (celle-ci varie d'un brut à l'autre), etc.. Des travaux avec un mélange toluène-alcane seraient donc nécessaires pour mieux modéliser l'huile. Des mousses avec un temps de vie plus long et en milieu poreux doivent être étudiées afin de guider la modélisation.

Ces résultats ont été publiés dans la revue *Journal of colloid and interface science* [Bauget 2001].

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

3.1. MODÉLISATION	71
3.1.1. Apparition de la phase gazeuse	71
3.1.1.1. Équilibre d'une bulle dans un liquide	71
3.1.1.2. Modèle thermodynamique "homogène"	75
3.1.1.3. Modèle thermodynamique "hétérogène"	76
3.1.1.4. Modèle de microbulles préexistantes	78
3.1.1.5. Discussion sur la terminologie et les modèles utilisés dans le domaine pétrolier	86
3.1.1.6. Relation entre nombre de bulles et taux de déplétion	89
3.1.1.7. Conclusion	93
3.1.2. Modélisation du transfert dans la phase gazeuse	94
3.1.2.1. Diffusion à l'échelle d'une bulle	94
3.1.2.2. Diffusion avec une population de bulles	96
3.1.2.3. Échelle de Darcy : diffusion/convection	98
3.1.3. Écoulement des phases	102
3.1.3.1. Écoulement du gaz dispersé	103
3.1.3.2. Écoulement des phases continues	105
3.1.4. Le code numérique	107
3.1.4.1. Système d'équations continues	107
3.1.4.2. Conditions limites	107
3.1.4.3. Discrétisation et schéma numérique	108
3.1.4.4. Les entrées-sorties du code	110
3.1.5. Récapitulatif du modèle	111
3.2. RÉSULTATS	112
3.2.1. Les seuils de mobilisation du gaz (S_g^{mob} et S_{gc}) sont des paramètres ajustables	112
3.2.1.1. Huile légère	112
3.2.1.2. Huiles lourdes	122
3.2.1.3. Conclusion	134
3.2.2. Utilisation d'un critère de mobilisation du gaz (λ_{mob}^*) indépendant des conditions de déplétion	137
3.3. CONCLUSION	140

Le propos est de modéliser des expériences de production de gaz par détente d'une huile lourde ou légère. Initialement il n'y a pas de gaz (uniquement de l'huile et éventuellement de l'eau résiduelle). Au cours de la détente, les composants légers contenus dans l'huile sont libérés sous forme gazeuse à une certaine pression. Le volume de la phase gazeuse augmente par détente et aussi par diffusion des composants légers. Au cours de la détente on observe une production simultanée de gaz et d'huile. Nous admettrons qu'il n'y a pas production d'eau. L'objectif de la modélisation est de représenter la production de gaz et aussi l'évolution des paramètres (saturation, pression) en tout point de la carotte.

La modélisation s'appuie sur une description des mécanismes physiques déjà utilisés dans le modèle de nucléation de l'IFP ou publiés dans la littérature :

- apparition de la phase gazeuse (nucléation) ;
- grossissement des bulles gazeuses par diffusion/convection ;
- dynamique de l'écoulement de la phase gazeuse suivant différentes formes (phase piégée, phase discontinue, phase continue) ;
- dynamique de l'écoulement de la phase huile (forme continue, K_r).

L'ensemble de ces mécanismes est décrit par un ensemble complet d'équations continues. Dans une première partie intitulée "Modélisation", nous allons examiner cette démarche en détail. La dernière partie est consacrée aux simulations d'expériences de déplétion avec une huile légère et des huiles lourdes.

3.1. MODÉLISATION

3.1.1. Apparition de la phase gazeuse

L'apparition d'une phase gazeuse à partir d'un mélange a été largement étudiée hors milieu poreux (cf. les revues suivantes : [Cole 1974, Cole 1979, Crum 1982, Franc 1995, Jones 1999a, Lubetkin 1994]). Pendant longtemps ce type de changement de phase était modélisé par une approche thermodynamique et donc statistique. C'est le cas des modèles thermodynamiques de nucléation "homogène" et "hétérogène", qui seront discutés plus loin. Les nombreux résultats expérimentaux ont montré que ce type d'approche ne pouvait décrire le processus de nucléation. Une description plus réaliste du processus par la préexistence de microbulles est admise par la grande majorité des chercheurs travaillant sur l'ébullition, la cavitation, la décompression en physiologie, etc. Ceci est détaillé dans ce qui suit.

En milieu poreux la bibliographie est moins volumineuse mais le sujet n'est pas nouveau. Malgré les résultats expérimentaux, hors et en milieu poreux, on trouve dans les publications tous les types de modèles : thermodynamiques [Betata 1998, Egermann 2000, Firoozabadi 1997, Firoozabadi 1996, Kashchiev 1993, Moulu 1989a, Parlar 1989, Tsimpanogiannis 2001] ou bulles préexistantes [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Hirasaki 1988, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1989]. Il est de plus apparu dans le domaine pétrolier une terminologie particulière qui différencie deux types de nucléation : "l'instantanée" [Firoozabadi 1997, Firoozabadi 1996] et la "progressive" ou "séquentielle" [Li 1995a, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1997]. L'utilisation d'une telle terminologie montre bien une mauvaise description de la physique, et une confusion entre le processus de nucléation proprement dit et les effets des conditions expérimentales sur l'observation (taux de déplétion constant, déplétion par paliers, etc.). Ce paragraphe est une synthèse des travaux existants qui a pour but : d'éclaircir les idées sur ce qu'est le processus de nucléation proprement dit ; et de dégager, comme cela a été fait dans les domaines non pétroliers, un modèle physique et la terminologie pertinente qui lui est associée.

Faisons l'état de l'art sur les modèles dits "de nucléation", en se limitant au cas d'un seul constituant plus volatile dans un liquide non volatile (CH_4 dans une huile, CO_2 dans l'eau, etc.). C'est une physique relativement compliquée qui doit permettre d'interpréter la sursaturation observée et l'évolution du nombre de bulles en fonction du temps.

Le point de départ de tous les modèles est la notion d'équilibre instable d'une bulle dans un liquide.

3.1.1.1. Équilibre d'une bulle dans un liquide

Pour les notions de base, voir par exemple le livre de Pérez [Pérez 1993].

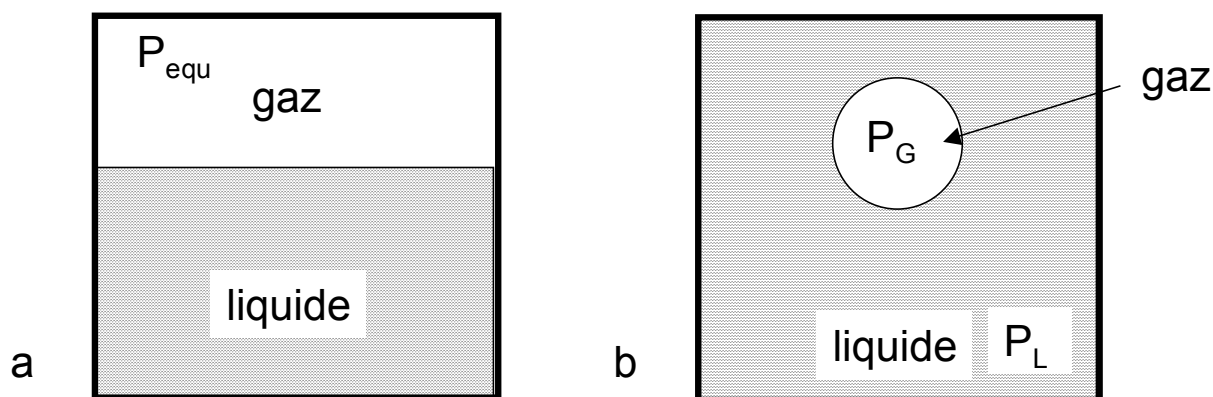


Figure 3.1 : Principe du calcul de l'équilibre thermodynamique des phases gaz et liquide d'un fluide pur.

a. Cas d'un corps pur :

Prenons le cas d'un fluide pur avec coexistence d'une phase gazeuse et d'une phase liquide (Figure 3.1). La température T est uniforme et sera constante dans toutes les expériences. Pour le calcul des potentiels chimiques, nous utiliserons les hypothèses simplificatrices de gaz parfait et de solution idéale. Le volume molaire du liquide est négligé devant le volume molaire du gaz (le potentiel chimique d'un liquide ne dépend donc pas de la pression).

A l'équilibre thermodynamique, l'égalité des fonctions de Gibbs dans les 2 phases impose les 2 conditions suivantes :

- égalité de la contribution de pression dans la fonction de Gibbs :

$$P_G - P_L = \frac{2\gamma}{r} \tag{33}$$

où P_G et P_L sont respectivement les pressions du gaz et du liquide, r est le rayon de la bulle et γ est la tension interfaciale (c'est la démonstration de la loi de Laplace).

- égalité des potentiels chimiques :

$$\mu_G = \mu_L \tag{34}$$

Dans le cas de l'interface plane (Figure 3.1a), les pressions sont égales (courbure nulle) et les potentiels chimiques ont pour expressions :

$$\mu_G(\text{equ}) = \mu_G^0 + RT \ln\left(\frac{P_{\text{equ}}}{P_0}\right) \tag{35}$$

$$\mu_L(\text{equ}) = \mu_L^0 + v(P_{\text{equ}} - P_0) \approx \mu_L^0 \tag{36}$$

v est le volume molaire du liquide. La pression P_0 est la pression de référence (ou standard) servant à définir les potentiels de référence. L'égalité des potentiels chimiques impose :

$$\mu_G(\text{equ}) = \mu_L(\text{equ}) \tag{37}$$

Toujours pour un fluide pur, calculons maintenant la condition d'équilibre d'une bulle de rayon r dans le liquide à la pression P_L (Figure 3.1b). Le potentiel chimique du liquide est indépendant de la pression et est inchangé. Le potentiel du gaz est maintenant :

$$\mu_G = \mu_G^0 + RT \ln\left(\frac{P_G}{P_0}\right) = \mu_G(\text{equ}) + RT \ln\left(\frac{P_G}{P_{\text{equ}}}\right) \quad (38)$$

La bulle est en équilibre si les potentiels chimiques du gaz et du liquide sont égaux :

$$\mu_G = \mu_G(\text{equ}) + RT \ln\left(\frac{P_G}{P_{\text{equ}}}\right) = \mu_L(\text{equ}) \quad (39)$$

La condition d'équilibre dans le cas de la l'interface plane (Eq. (37)) conduit à :

$$\ln\left(\frac{P_G}{P_{\text{equ}}}\right) = 0 \rightarrow P_G = P_{\text{equ}} \rightarrow P_L = P_{\text{equ}} - \frac{2\gamma}{r} \quad (40)$$

L'équilibre est possible pour un liquide en dépression par rapport à la pression d'équilibre avec interface plane. Aux approximations près, il faut que la dépression soit égale à la pression capillaire, de façon à avoir une pression dans le gaz égale à la pression d'équilibre.

Voici quelques applications numériques afin de voir les ordres de grandeur. Considérons un système eau-gaz avec une tension interfaciale de l'ordre de 50 mN.m^{-1} :

- Soit une bulle dont le rayon est de l'ordre de la distance entre molécules d'eau i.e. 0.1 nm , on obtient une dépression de $10\,000$ bars.
- Bulle sphérique de rayon de l'ordre du nanomètre : on obtient pour déclencher la croissance de la bulle une dépression de 1000 bars.
- Bulle de rayon de $1 \mu\text{m}$: dépression de 1 bar.

Remarque 1

Si à la place d'une bulle dans un liquide, on avait une goutte de liquide dans un gaz, on aurait toujours l'égalité de la pression dans le gaz avec la pression d'équilibre, mais la pression dans le liquide serait différente puisque la pression capillaire s'est inversée :

$$\text{goutte de liquide dans le gaz : } P_G = P_{\text{equ}} \rightarrow P_L = P_{\text{equ}} + \frac{2\gamma}{r} \quad (41)$$

Remarque 2

Si l'on ne néglige pas le volume molaire du liquide on obtient :

$$P_G = P_{\text{equ}} \exp\left(\frac{v}{RT}(P_L - P_{\text{equ}})\right) = P_{\text{equ}} \exp\left(\frac{v}{RT}(P_L - P_G - P_{\text{equ}} + P_G)\right) \quad (42)$$

$$P_G = P_{\text{equ}} \exp\left(\frac{v}{RT}\left(-\frac{2\gamma}{r} - P_{\text{equ}} + P_G\right)\right)$$

Avec la loi des gaz parfaits, on fait apparaître le volume molaire du gaz pour $P_{\text{equ}} + P_G$. Cela permet de négliger leur contribution et on obtient la formule de Kelvin [Defay 1966, Ward 1970] :

$$P_G = P_{\text{equ}} \exp\left(-\frac{v}{RT} \frac{2\gamma}{r}\right) \quad (43)$$

A $T=298$ °K, le volume molaire de l'eau est $18 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$. D'après l'équation (42), la correction apportée à P_{equ} est de l'ordre de 10^{-3} - 10^{-4} pour une dépression ($P_{\text{equ}}-P_L$) de 1 à 10 bars. L'approximation sur le volume molaire est donc raisonnable.

b. Cas d'une solution diluée :

Dans le cas d'une solution avec 2 constituants, par exemple le CO_2 soluté et l'eau solvant, les équations donnant les potentiels chimiques sont analogues. On trouve le détail des calculs dans des travaux théoriques de Ward *et al.* [Ward 1984, Ward 1982]. En introduisant les fractions molaires : x_{CO_2} et x_{eau} , et en négligeant le volume molaire de l'eau (cf. Eq. (36)), on obtient pour les potentiels chimiques du soluté dans le liquide :

$$\mu_{\text{L},\text{CO}_2} = \mu_{\text{G},\text{CO}_2}^0(P_L) + RT \ln\left(\frac{x_{\text{L},\text{CO}_2}}{x_{\text{L},\text{CO}_2}^S}\right) \quad (44)$$

avec $x_{\text{L},\text{CO}_2}^S$ la fraction molaire du CO_2 à la pression de saturation. Dans la bulle on a :

$$\mu_{\text{G},\text{CO}_2} = \mu_{\text{G},\text{CO}_2}^0(P_L) + RT \ln\left(\frac{P_{\text{CO}_2}}{P_L}\right) \quad (45)$$

Lorsque le solvant est loin de sa température d'ébullition, sa pression partielle est faible et peut être négligée. Avec cette approximation $P_G \approx P_{\text{CO}_2}$ et la condition d'équilibre, (34) devient :

$$P_G = P_{\text{CO}_2} = \frac{x_{\text{L},\text{CO}_2}}{x_{\text{L},\text{CO}_2}^S} P_L \quad (46)$$

Pour une solution diluée on peut écrire pour le soluté la loi de Henry : $C_S = k_S P_L$ avec C_S la concentration en CO_2 à la pression de saturation et k_S la constante de solubilité. On trouve donc en exprimant (46) en fonction des concentrations :

$$P_G = \frac{C_{\text{CO}_2}}{k_S} \quad (47)$$

Cette relation correspond à la pression de saturation avec une interface plane, d'après la loi de Henry. Avec notre notation cette pression est notée P_{equ} , et nous retrouvons donc l'équation (40).

L'état d'équilibre d'une bulle dans un liquide est instable dans la majorité des cas. L'analyse de stabilité peut s'effectuer à partir du calcul de la fonction de Gibbs (dérivée seconde négative). On peut aussi l'expliquer physiquement :

- Si une fluctuation fait décroître le rayon de la bulle, la pression augmente dans le gaz (loi de Laplace) ainsi que le potentiel chimique. Il y a donc passage en solution des molécules de la phase gaz dont le volume diminue. C'est le mécanisme d'instabilité, une diminution de rayon entraîne une autre diminution.
- Pour une augmentation de rayon, c'est le mécanisme inverse : la pression diminue et il y a transfert de soluté depuis le liquide vers la bulle, ce qui augmente le rayon.

Cependant, la présence d'une paroi, surtout rugueuse peut stabiliser une bulle dans certaines conditions (Ward *et al.* [Ward 1982, Wilt 1986]). Ce point est discuté dans les sections suivantes consacrées à la préexistence de bulles.

Nous revenons à la formation des bulles de gaz. Dans ce qui suit les différents modèles de nucléation sont discutés.

3.1.1.2. Modèle thermodynamique "homogène"

L'apparition des bulles de gaz est la "nucléation" au sens propre du terme car le noyau (nucleus), ou germe, est formé par les fluctuations statistiques des molécules dues à l'agitation thermique [Cole 1974, Cole 1979, Jones 1999a, Kashchiev 2000, Lubetkin 1994]. Il n'y a pas de milieu poreux, ni d'impuretés en suspension dans le liquide et le rôle des parois du récipient est ignoré. Un amas contenant N molécules peut se former avec une certaine probabilité p . Pour une taille de bulle donnée, cette probabilité se traduit par un temps d'attente qui dépend du volume de liquide. Plus l'amas est important, plus la probabilité de rencontre de N particules est faible et plus le temps d'attente est long.

Pour un germe contenant N molécules de gaz (assimilé à une sphère de rayon r), il existe un rayon critique R_c donné par la relation (33) pour que le germe puisse croître par diffusion. Si $r < R_c$, les forces capillaires conduisent à réduire le germe et à le faire disparaître (voir paragraphe précédent).

Dans ce modèle thermodynamique, les bulles apparaissent suivant un procédé aléatoire et l'on peut définir un temps moyen d'apparition entre chaque bulle ou inversement un taux d'apparition. Ce taux de nucléation est défini comme le nombre moyen de bulles apparaissant par unité de secondes. Les calculs de taux de nucléation sont détaillés dans la thèse d'El Yousfi par exemple [El Yousfi 1992] et un grand nombre de publications ou d'ouvrages [Cole 1974, Cole 1979, Jones 1999a, Kashchiev 2000, Lubetkin 1994]. Cela conduit à deux conséquences sur l'apparition des bulles :

- Le taux de nucléation est fonction du volume total de fluide puisque la probabilité de rencontre des molécules est proportionnelle au nombre total de molécules.
- Tant que la concentration en constituant léger ne varie pas trop, le taux de nucléation est constant, même si la dépression a été effectuée en un seul palier.

Cependant ce modèle ne peut pas s'appliquer aux expériences courantes en milieu poreux et même hors milieu poreux. Les fluctuations thermiques vont former des amas de quelques molécules et les dépressions correspondantes sont très importantes, très supérieures à ce qui

est observé expérimentalement [Finkelstein 1985, Jones 1999a, Kennedy 1952, Wilt 1986]. Une bulle de 1 nm contenant plusieurs dizaines de molécules correspondrait à une sursaturation de 1000 bars (voir calcul du paragraphe précédent). En effet, les sursaturations observées expérimentalement sont au plus de quelques bars, ce qui correspond à un rayon de courbure de l'ordre du micromètre. Ceci montre bien que le germe ne peut être de l'ordre de quelques molécules, et donc que le modèle thermodynamique ne peut rendre compte que du processus de nucléation thermodynamique pur. Ce point est très bien expliqué dans le livre sur la cavitation de Franc *et al.* [Franc 1995].

3.1.1.3. Modèle thermodynamique "hétérogène"

Le modèle précédent de nucléation "homogène" a été modifié par certains auteurs pour tenir compte des faibles sursaturations [Jones 1999a, Kashchiev 2000]. Le principe est d'introduire une surface solide (milieu poreux ou particules dans le liquide), ayant une mouillabilité non franche au liquide. La pression capillaire, qui est à l'origine du collapse de la bulle, dépend alors de l'angle de contact θ . Pour schématiser, disons qu'il suffit d'introduire un $\cos(\theta)$ égal à 0.001 pour transformer une pression de 1000 bars en une pression de 1 bar (puisque P_c est proportionnel à $\gamma \cos(\theta)$).

Ce raisonnement est en contradiction avec trois arguments :

- Wilt [Wilt 1986] a montré que pour atteindre les faibles saturations observées, θ doit être entre 94° et 130° . Ce résultat n'est pas physique [Carr 1995, Lubetkin 1994] puisque $\cos(\theta)$ devient négatif. Dans ce cas il n'y a pas de seuil et la phase gaz peut apparaître spontanément à n'importe quelle pression. Pour pallier à cela, Wilt utilise un modèle où cette nucléation se produit dans des cavités coniques. Il peut ainsi à l'aide de la géométrie obtenir des résultats plus cohérents ;
- le modèle conduit aussi à la notion de taux de nucléation constant, contradictoire avec les observations sur micromodèles. El Yousfi *et al.* [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997] ont montré que la production de bulles s'arrêtait au bout d'un certain temps alors que la concentration en éléments légers était encore importante (cf. Figure 3.2 et Tableau 3.1) ;
- plusieurs auteurs ont montré qu'il existait une valeur minimum de sursaturation en dessous de laquelle aucune nucléation n'était observée même après 5 à 7 jours [El Yousfi 1992, Kennedy 1952]. Le modèle hétérogène ne permet pas d'expliquer cette sursaturation minimum [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Li 1995b, Wang 1993b], puisque la probabilité de rencontre des molécules n'est pas nulle.

Si l'on fait le calcul des valeurs de sursaturations aux débuts des plateaux que l'on peut observer sur la Figure 3.2, on remarque que le nombre de bulles est constant alors que la sursaturation est encore à 86 % de la valeur initiale. Donc avec un modèle thermodynamique des bulles devraient encore apparaître. Le Tableau 3.1 montre les valeurs de sursaturations en début de plateau, en terme de différence de concentrations ΔC , et de pressions ΔP , ainsi que le pourcentage que cela représente par rapport à la sursaturation initiale. Rappelons que dans les expériences d'El Yousfi la pression de saturation est de 3 bars, ce qui correspond alors à une concentration initiale de 117 mol.m^{-3} .

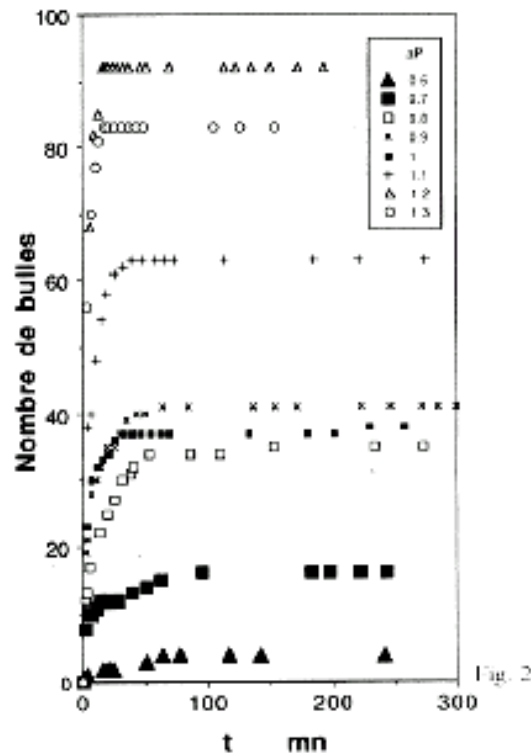


Figure 3.2 : Mesures du nombre de bulles dans les micromodèles montrant un nombre fini de bulles (d'après [El Yousfi 1991])

Tableau 3.1 : Sursaturations correspondant aux débuts des plateaux dans le cas des expériences d'El Yousfi [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997].

Palier de pression (bar)	Pression atteinte (bar)	ΔC_{ini} (mol.m ⁻³)	ΔC (mol.m ⁻³)	$\Delta C/\Delta C_{ini}$ (%)	ΔP (bar)
0.6	2.4	23.4	20.2	86.3	0.52
0.7	2.3	27.3	21	76.9	0.54
0.8	2.2	31.2	21.5	68.9	0.55
0.9	2.1	35.1	20.6	58.7	0.53
1	2	39	28.7	73.6	0.74
1.1	1.9	42.9	22.6	52.7	0.58
1.2	1.8	46.8	17.2	36.8	0.44
1.3	1.7	50.7	23.4	46.2	0.60

Compte tenu des dernières remarques, les modèles thermodynamiques ne peuvent rendre compte du processus de nucléation pour les conditions expérimentales courantes.

Remarque : Des valeurs élevées de dépression peuvent être observées en prenant des précautions sur l'état de surface des parois et l'élimination de toutes particules en suspension. C'est par exemple le cas des chambres à bulles. Pourtant même dans ce cas, la nucléation n'est pas du type homogène ou hétérogène, mais est

provoquée par l'énergie d'activation des particules élémentaires qui traversent la chambre.

L'interprétation finalement admise est la préexistence de la phase gaz sous forme de microbulles dans le liquide ou de gaz piégé dans les anfractuosités des parois solides [Cole 1974, Cole 1979, Jones 1999a]. Cette description plus réaliste est depuis longtemps utilisée dans les études en ébullition, cavitation et décompression [Bankoff 1958, Cole 1974, Cole 1979, Crum 1982, Franc 1995, Griffith 1960, Jones 1999a, Jones 1999b, Liger-Belair 2001, Wang 1993a, Wang 1993b, Ward 1984, Yang 1988, Yount 1976]. Comme cela a été précisé précédemment, en milieu poreux ce modèle n'est pas encore complètement admis mais certains auteurs l'ont déjà utilisé [Dominguez 1997, El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Hirasaki 1988, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1997, Yortsos 1989]. Ce gaz préexistant peut se présenter sous deux formes : des microbulles au sein du liquide ou du gaz piégé dans les anfractuosités des parois solides. Leur stabilité est abordée dans ce qui suit.

3.1.1.4. Modèle de microbulles préexistantes

a. Microbulles dans le volume liquide :

Une bulle ou une population de bulles peut être dans un état d'équilibre stable dans un système fermé [Ward 1982, Wilt 1986]. Dans les systèmes réels, une première hypothèse est la stabilisation de microbulles par des tensioactifs naturels ou des substances organiques (protéines) qui forment une peau solide à l'interface [Franc 1995, Wilt 1986] (Figure 3.3). Ces substances pourraient être dans le cas des systèmes pétroliers les asphaltènes puisqu'ils pourraient former une peau solide à l'interface huile/gaz (cf. chap. 2). C'est le mécanisme qui est admis pour la cavitation en hydraulique et l'on est capable de déterminer un nombre et une distribution de tailles de microbulles dans l'eau (voir Figure 3.4 d'après [Franc 1995]). A la pression de saturation (pression atmosphérique par exemple), toutes les bulles devraient s'effondrer (seule la surface plane est en équilibre). Au cours de la dissolution du gaz, la densité de tensioactif à l'interface augmente jusqu'à former une sorte de peau solide qui stabilise la bulle. A la pression d'équilibre, il existe dans le liquide une population de bulles stabilisées (aussi appelées "germes"), avec une certaine loi de distribution de rayon. D'après les études en cavitation, la proportion de germes augmente lorsque le rayon diminue.

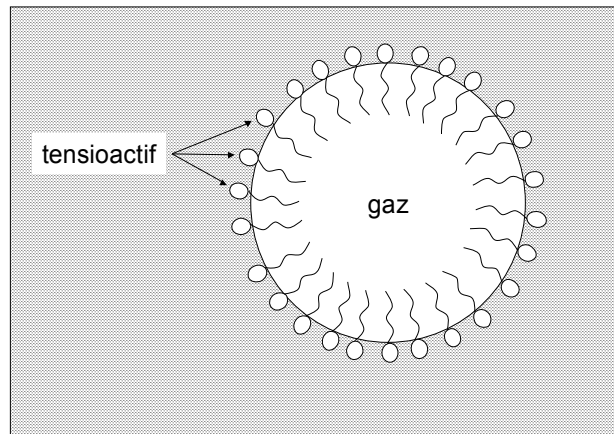


Figure 3.3 : Certaines molécules tensioactives (protéines, asphaltènes ?) peuvent se concentrer à l'interface et former une "peau" solide qui stabilise la bulle.

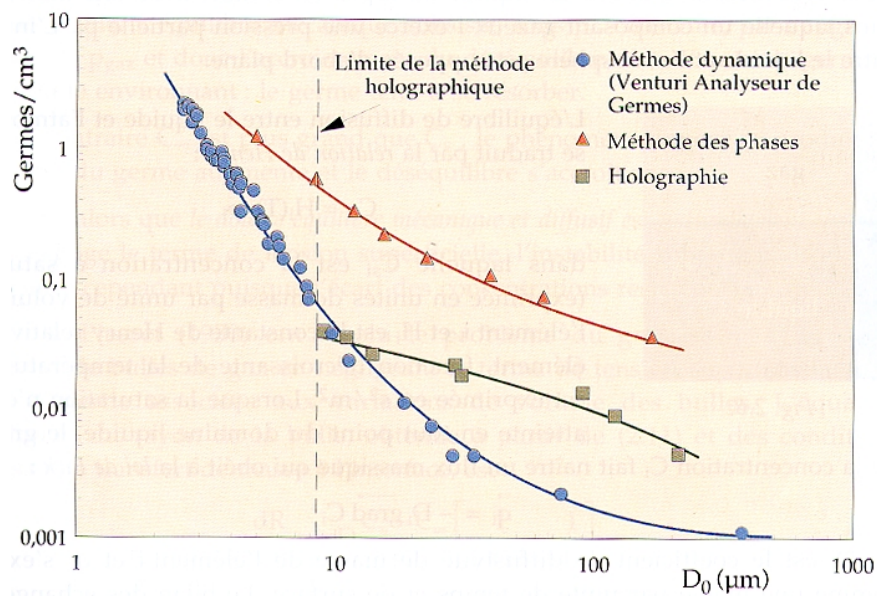


Figure 3.4 : Mesure de distribution de microbulles dans l'eau par différentes méthodes pour les études sur la cavitation [Franc 1995].

Lors d'une déplétion ΔP , toutes les bulles dont le rayon est supérieur à r_0 tel que $\Delta P = 2\gamma/r_0$ sont activées et vont croître par diffusion. Les bulles plus petites restent inactives mais pourront être activées par la suite si la pression diminue (Figure 3.5).

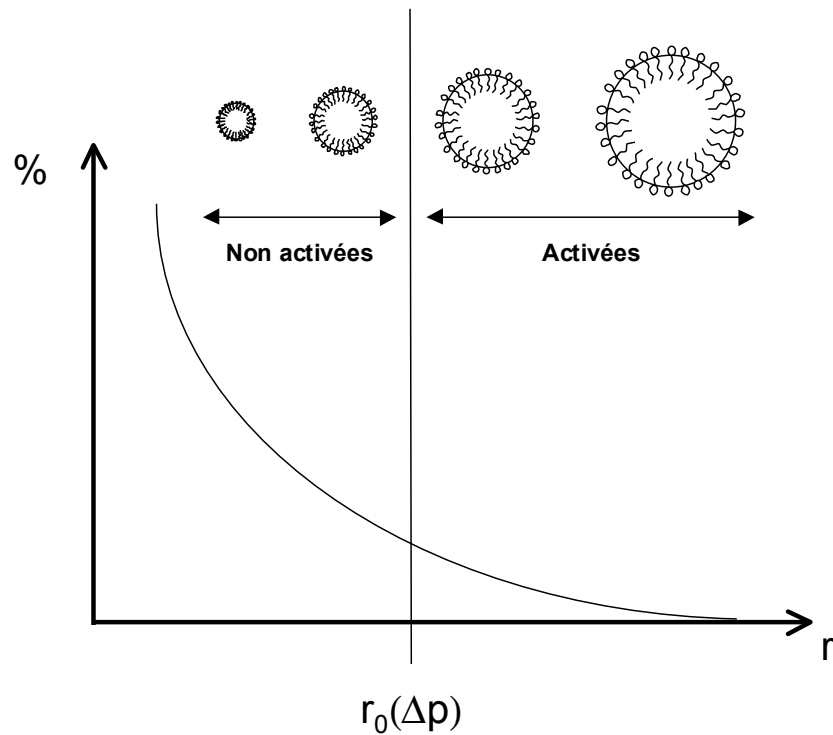


Figure 3.5 : Schéma de l'activation des microbulles pour une dépression ΔP . Les bulles de rayon supérieur à r_0 sont activées et vont grossir par diffusion, les plus petites restent inactives.

b. Piégeage dans les crevasses :

Une seconde hypothèse est l'inclusion de gaz dans les rugosités [Crum 1982, Franc 1995, Griffith 1960, Jones 1999a, Jones 1999b, Lubetkin 1994, Ward 1984], mécanismes étudiés surtout dans le domaine de l'ébullition [Cole 1974, Crum 1982, Wang 1993a, Wang 1993b, Yang 1988]. Ce processus implique que ces microbulles piégées persistent même lorsque le système est en surpression par rapport à la pression de saturation. Bien que la mouillabilité influe sur la nucléation [Crum 1982, Griffith 1960, Jones 1999a, Wang 1993a], la stabilité de ces microbulles n'implique pas une surface non mouillable au liquide comme le considère certains auteurs [Hirasaki 1988, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1989]. Elle se comprend fort bien en prenant en compte les rugosités des parois de la cavité : un ménisque peut être en équilibre sur une aspérité avec pratiquement n'importe quel angle de raccordement, en particulier inférieur ou supérieur à 90° . Cela conduit à des équilibres avec des pressions capillaires pouvant être positives ou négatives (Figure 3.6).

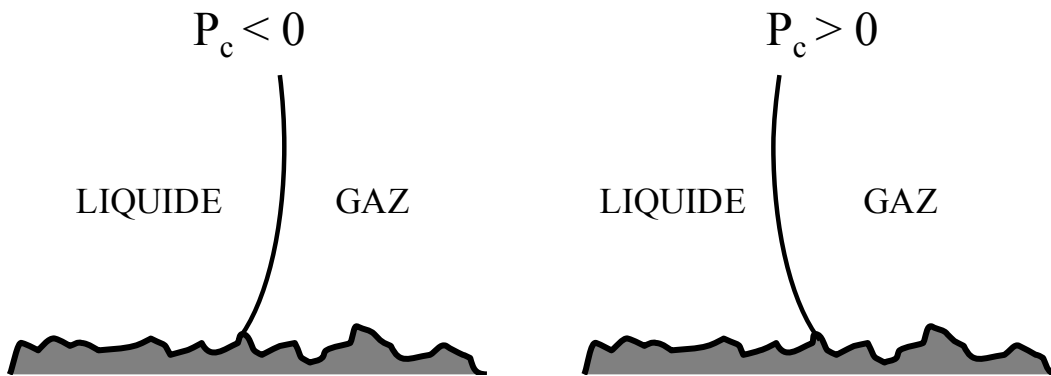


Figure 3.6 : Représentation schématique d'une interface qui peut prendre différents angles de contact sur les rugosités de surface. La pression capillaire peut alors être négative ou positive.

Pour illustrer cette stabilité ainsi que la nucléation des inclusions de gaz, nous considérons une crevasse de forme conique submergée par de l'eau saturée à 2 bars de CO_2 . On suppose que du gaz vient d'être piégé. Le remplissage ne sera pas discuté ici, il dépend notamment de la géométrie de la crevasse, de la vitesse du liquide, etc. [Bankoff 1958, Cole 1974, Jones 1999a, Wang 1993b].

Piégeage après remplissage (Figure 3.7)

Le liquide est à la pression de saturation de 2 bars, et son potentiel chimique est $\mu_L(2 \text{ bars})$. Si le gaz forme un ménisque convexe, il se trouve en surpression. D'après l'équation (38) son potentiel chimique est supérieur à μ_L , donc le gaz se dissout jusqu'à avoir $P_G=2 \text{ bars}$, c'est-à-dire former un ménisque plat (ou plus exactement, une surface à courbure nulle en 3D qui entraîne une pression capillaire nulle). Ceci est envisageable parce que les rugosités des parois permettent au ménisque de "s'accrocher" dans n'importe quelle position.

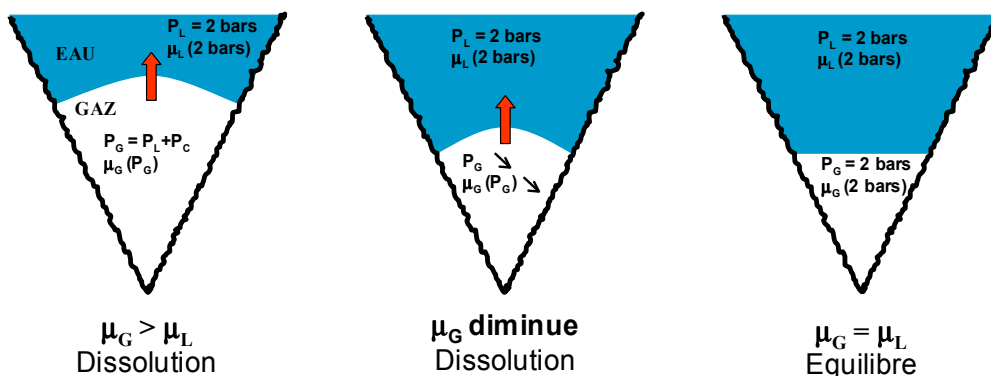


Figure 3.7 : Schéma de stabilisation du gaz piégé après remplissage.

Dissolution par surpression (Figure 3.8)

Si l'on cherche à supprimer les traces de gaz en augmentant la pression dans le liquide (par exemple 4 bars, mais pouvant aller à 100 bars dans les mesures pétrophysiques). Le potentiel chimique du liquide est toujours $\mu_L(2 \text{ bars})$ puisqu'il ne dépend pas de la pression. Par contre, celui du gaz dépend fortement de sa pression. L'effet capillaire va alors être important. Lors de l'augmentation de la pression du liquide le gaz va se comprimer, plusieurs cas sont envisageables :

- le premier, peu probable, est que la courbure 3D reste nulle. Dans ce cas nous avons $\mu_G(P_G = 4 \text{ bars})$ qui est supérieur à $\mu_L(2 \text{ bars})$. Ici encore le gaz se dissout jusqu'à obtenir $\mu_G(2 \text{ bars})$, c'est-à-dire une pression capillaire de -2 bars (P_C définit par $P_G - P_L$) ;
- le gaz forme un ménisque concave il y a donc une pression capillaire P_C négative. Si cette pression est supérieure à -2 bars alors $P_G > 2 \text{ bars}$, et $\mu_G > \mu_L$. Le gaz se dissout jusqu'à une pression capillaire de -2 bars ;
- si la pression capillaire est inférieure à -2 bars alors $P_G < 2 \text{ bars}$, et $\mu_G < \mu_L$. La microbulle croit par diffusion jusqu'à une pression capillaire de -2 bars.

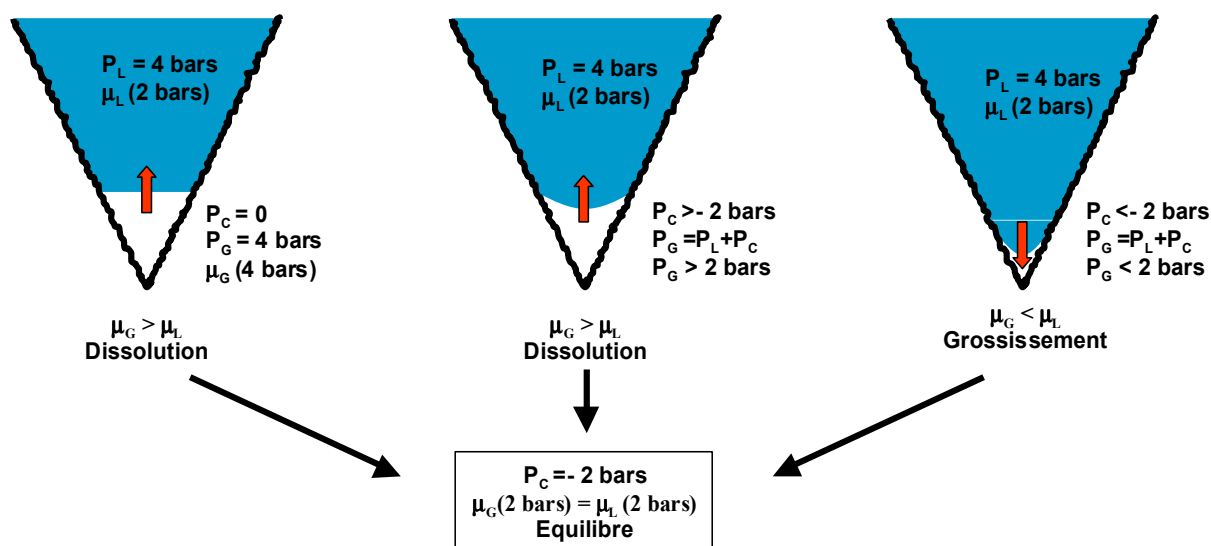


Figure 3.8 : Schéma de stabilisation en surpression.

Activation des sites (Figure 3.9)

Si l'on détend le liquide à 2 bars, la pression diminue aussi dans le gaz. Il se dilate et le ménisque se déplace pour prendre une forme convexe. La pression capillaire impose une surpression dans le gaz qui entraîne sa dissolution jusqu'à une courbure nulle (équilibre entre potentiels chimiques dans le gaz et le liquide).

On baisse la pression dans le liquide, par exemple 1.5 bar. Son potentiel chimique reste pour le moment à la valeur d'équilibre $\mu_L(2 \text{ bars})$. Le ménisque se déforme et suivant la topologie locale et le volume de gaz, il va se fixer à une certaine valeur donnant une pression capillaire

P_C . La pression P_G est supérieure à la pression de 1.5 bar dans le liquide ($1.5 + P_C$), mais peut être inférieure ou supérieure à la pression d'équilibre de 2 bars.

- Si $P_G > 2$ bars ($P_C > 0.5$ bar) le potentiel dans la bulle est supérieur au potentiel dans le liquide et le gaz va se dissoudre, ce qui entraîne l'augmentation du rayon de courbure et donc la diminution de la pression capillaire. La dissolution s'arrête lorsque la pression P_G dans la bulle est égale à 2 bars (égalité des potentiels).
- Si $P_G < 2$ bars, le potentiel dans la bulle est inférieur au potentiel dans le liquide, donc la bulle va croître par diffusion. **La bulle est activée.**
- On a donc nucléation quand la sursaturation est supérieure à la pression capillaire, d'après (40) :

$$P_{eq} - P_L > \frac{2\gamma}{r} \quad (48)$$

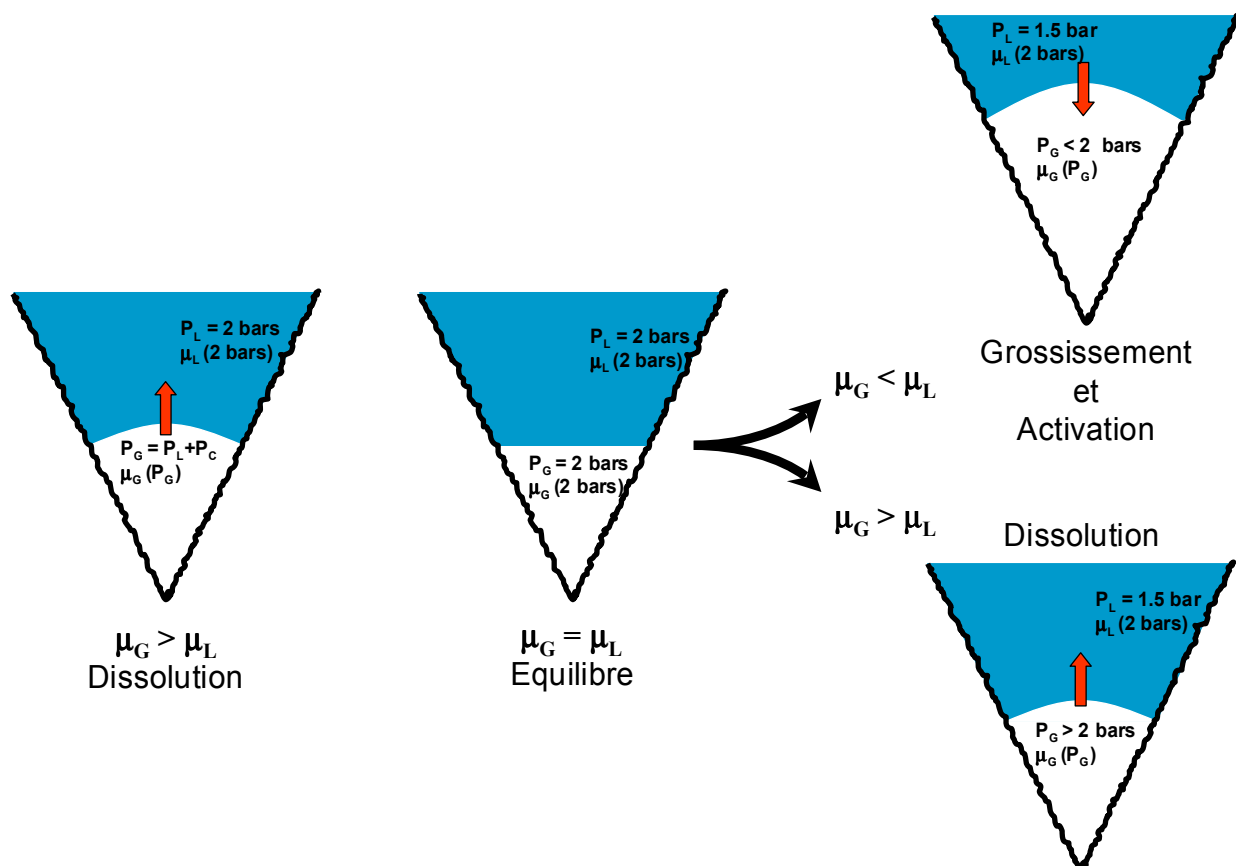


Figure 3.9 : Activation d'un site.

Remarques :

- Cette description reste schématique et qualitative mais elle permet de comprendre la physique du mécanisme. Ward *et al.* donnent une analyse complète dans le cas d'un ensemble de cavité de taille unique [Ward 1984].

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

- Pendant le grossissement par diffusion, la concentration dans le liquide en éléments légers diminue, ainsi que la pression d'équilibre ou de saturation correspondante. Ceci va jouer un rôle sur le nombre de bulles nucléées. Ce point est abordé dans le paragraphe (3.1.1.6).
- Le terme "site de nucléation" sera utilisé dans la suite pour désigner les bulles préexistantes.

Tout comme pour les microbulles stabilisées par des tensioactifs, on peut faire l'hypothèse d'une distribution de tailles de crevasses. La taille caractéristique va influencer le rayon de courbure correspondant à une pression d'équilibre (influence du volume initial de gaz, de la rugosité, de l'angle de la crevasse [Cole 1974, Cole 1979, Griffith 1960, Wang 1993a, Ward 1984, Yang 1988], références dans [Jones 1999a]). Plusieurs types de distribution sont proposés dans la littérature. Parlar et Yortsos, en milieu poreux, font l'hypothèse d'une relation homothétique avec la taille des pores [Parlar 1989, Yortsos 1989]. Ce choix mène à une loi de Rayleigh ($F \propto r \exp(-ar^2)$) pour le nombre de sites en fonction de la taille, donc du rayon de courbure (Figure 3.10 et Figure 3.11). En ébullition les observations expérimentales donnent une augmentation infinie du nombre de sites quand leur taille diminue [Griffith 1960, Winterton 1977]. Selon les auteurs la distribution suit une loi d'échelle [Wang 1993b] ou une loi exponentielle [Yang 1988]. Ce résultat est similaire aux mesures de distribution de microbulles stabilisées par tensioactifs (cf. Figure 3.4). Tsimpanogiannis et Yortsos [Tsimpanogiannis 2001] ont étudié plusieurs types de distribution : Rayleigh, Lognormal et exponentielle. Les corrélations entre théorie et expérimentation donnent de bons résultats, mais les auteurs ne donnent aucune conclusion quant au choix de loi de distribution.

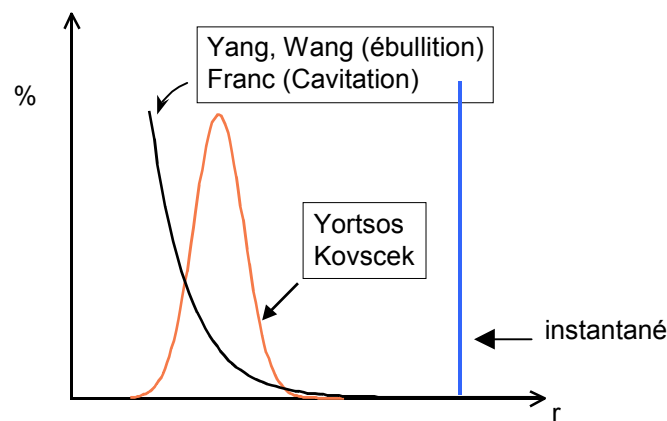


Figure 3.10 : Distribution des rayons de bulles de gaz piégé dans les crevasses et microbulles stabilisées par tensioactif (très schématique).

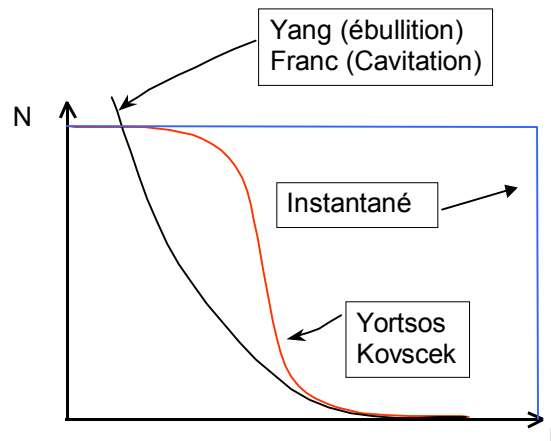


Figure 3.11 : Nombre de bulles cumulées (intégrale des courbes de la Figure 3.10).

c. Pertinence du modèle :

Contrairement aux modèles hétérogène et homogène, le modèle de préexistence de microbulles (piégées ou dans le volume liquide) permet d'interpréter les différentes observations expérimentales.

Sursaturation faible :

Les tailles sont micrométriques alors que dans le modèle homogène les amas sont de quelques molécules.

Sursaturation minimum :

Plusieurs auteurs ont observé une sursaturation minimum pour qu'il y ait nucléation, et ce même après sept jours. Le modèle de préexistence de bulles permet d'interpréter ce seuil par le fait que les microbulles ou les sites ont une taille maximum. Par exemple, un site ne peut être du même ordre de grandeur qu'un pore. En ébullition le maximum est au plus de quelques microns [Wang 1993a, Yang 1988].

Déplétion par paliers :

Considérons un système constitué d'eau saturée en CO_2 à $P_S=2$ bars. On suppose que la pression initiale P_0 est la pression de saturation. Si l'on applique instantanément un palier de pression ΔP , la pression dans le liquide sera de $P_L=P_0-\Delta P$. On obtient alors au début de l'expérience une sursaturation $s=P_L-P_S$ que l'on suppose être supérieure au seuil minimum. A cette sursaturation correspond un nombre donné de sites activés dont la taille caractéristique est $2\gamma/s$. Du fait de la diffusion vers ces bulles, la pression de saturation ne peut que décroître avec la concentration (loi de Henry). Par contre, la pression du liquide reste constante puisque la déplétion est instantanée. La sursaturation ne peut alors que diminuer, et donc aucun autre site ne peut être activé (Figure 3.12). Pour récapituler, si l'on applique au système un palier de pression alors un nombre donné de bulles va nucléer "instantanément". Ce point ne peut être décrit par les modèles thermodynamiques.

3.1.1.5. Discussion sur la terminologie et les modèles utilisés dans le domaine pétrolier

Tous domaines confondus, deux termes existent qui différencient deux processus bien distincts que nous avons appelé "nucléation thermodynamique" et modèle de nucléation avec préexistence de microbulles. Le premier processus correspond à la formation de germes par fluctuation des molécules et la probabilité de former des amas. Le second stipule que les bulles proviennent du grossissement de germes ou sites préexistants. Ces deux mécanismes sont indépendants du mécanisme de détente utilisé : taux de dépression constant ou échelon de pression. Dans les publications pétrolières récentes sur le sujet, deux termes sont souvent utilisés : "Nucléation Instantanée" et "Nucléation Progressive" ou "Séquentielle". Ces termes confondent le processus de nucléation proprement dit, et le mécanisme de déplétion (taux de déplétion constant dP/dt , échelons de pression ΔP ou débit de soutirage constant Q). Dans un premier temps il sera fait état des définitions données par différentes équipes de recherche. Une discussion suivra sur le modèle pertinent qui doit être utilisé en nucléation.

RERI - Équipe de Firoozabadi [Firoozabadi 1996, Kashchiev 1993] :

Nucléation progressive : Firoozabadi considère que des bulles apparaissent continuellement pendant le grossissement des "supernucleus" avec un taux de nucléation J (bulles par unité de temps par unité de volume).

Notre interprétation :

Il s'agit de ce que nous avons appelé précédemment : "nucléation thermodynamique hétérogène". Avec les critiques qui ont déjà été formulées (taux constant non observé, notion d'énergie d'activation discutable).

Nucléation instantanée : Toutes les bulles apparaissent à une supersaturation donnée et grossissent par diffusion ensuite. Firoozabadi écrit ([Firoozabadi 1996]) :

"In view of the above, it is theorized that the process of gas phase formation in porous media is initiated by N° V° bubbles nucleated instantaneously on randomly located active sites on the surface of the grains at an initial supersaturation s° ."

Notre interprétation :

Cette hypothèse est difficile à expliquer et à justifier (dans aucune publication il n'y a d'explication physique claire). Ce modèle revient effectivement à un modèle de bulles préexistantes (crevasses ou tensioactifs) avec une taille unique de bulle (fonction de Dirac : Figure 3.10) [Kashchiev 2000] en contradiction avec toutes les mesures dans le domaine de l'ébullition et de la cavitation. Aucune réelle explication sur la nature de ces sites n'est donnée, peut-être des zones sur les grains mouillables au gaz. Mais dans ce cas il ne devrait pas y avoir de sursaturation (pression capillaire négative). L'avantage essentiel de cette hypothèse est la simplification des calculs.

Équipe de Yortsos [Li 1991, Li 1993, Li 1995a, Li 1995b, Parlar 1989, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1997, Yortsos 1989] :

Nucléation progressive : Dans ses premiers travaux, Yortsos exclut la nucléation homogène, et préconise le modèle hétérogène. Dans ce terme il inclut le modèle

thermodynamique ainsi que celui de gaz piégé dans les crevasses [Li 1995a, Parlar 1989, Yortsos 1989]. Il considère que la nucléation à partir de microbulles préexistantes ne peut se faire que dans les cavités hydrophobes, tout comme Hirasaki *et al.* [Hirasaki 1988]. Ceci implique que dans le cas de sites hydrophiles le processus est hétérogène et thermodynamique. Il détermine un taux de nucléation en introduisant dans une formulation statistique un terme correctif dépendant de l'angle de contact. Quel que soit le modèle utilisé il considère le processus de nucléation comme progressif [Yortsos 1997]. Dans la dernière publication Tsimpanogiannis & Yortsos [Tsimpanogiannis 2001] utilisent le terme "**Nucléation Séquentielle**" et l'associent au modèle de gaz préexistant. Il s'agit donc du mécanisme de "piégeage dans les crevasses". Cependant le terme est associé à une détente à taux de dépression constante. Plusieurs remarques peuvent être faites sur les résultats de Tsimpanogiannis & Yortsos [Tsimpanogiannis 2001] :

- Ils étudient le modèle hétérogène (au sens thermodynamique) et le modèle de préexistence de gaz sans conclure sur celui qui semble le plus physique.
- Bien qu'ils précisent que l'aspect séquentiel de la nucléation est lié au taux de déplétion, et que le processus s'arrête dès que la sursaturation diminue, la physique reste mal comprise. En effet, ils associent certains de leurs résultats numériques, à taux de déplétion constant, aux observations d'El Yousfi *et al.* [El Yousfi 1991, El Yousfi 1997], or ces expériences ont été faites avec un palier de pression instantané. Les résultats montrent une augmentation rapide du nombre de bulles puis l'arrêt de la nucléation dû à la décroissance de la sursaturation. Les auteurs confondent donc l'effet du taux de déplétion et le fait qu'El Yousfi *et al.* ont un nombre constant de bulles nucléées qui ne sont pas observables au même instant (ceci est abordé plus loin).

Nucléation instantanée : Yortsos considère qu'il peut y avoir nucléation instantanée uniquement dans le cas d'une déplétion instantanée. C'est à dire que la sursaturation est fixée à Δp , et donc que tous les sites ayant une taille caractéristique supérieure ou égale à celle correspondante à ce Δp sont activés instantanément. C'est le cas des expériences d'El Yousfi [El Yousfi 1991, El Yousfi 1997].

Université de Stanford [Arora 2001] :

Les auteurs prennent (presque mot pour mot) la définition de Firoozabadi pour la nucléation instantanée :

"Instantaneous nucleation assumes that all bubbles nucleate at essentially the same time (...). Bubbles nucleate on randomly located active sites on surface of grains when the supersaturation reaches a prescribed level."

La définition de la nucléation dite progressive n'est pas claire :

"In the PN model, it is possible to nucleate continually bubbles and so both the rate of creation of new bubbles by nucleation and the growth of preexisting bubbles must be considered."

Les auteurs semblent mélanger le modèle thermodynamique et le modèle de bulles préexistantes. Or l'utilisation d'un taux de nucléation dans le modèle de préexistence

du gaz est aberrante. Les auteurs confondent encore le processus de nucléation et les effets d'un taux de déplétion.

PDVSA [Kamp 2001a, Torres 2001] :

Cette équipe n'utilise aucun de ces termes. Mais dans leur modèle ils utilisent un modèle de nucléation hétérogène, et introduisent donc un taux de nucléation.

Équipe de Maini [Bora 1997, Maini 1999b, Maini 2001] :

Il est difficile de déterminer quel modèle Maini considère pour la nucléation. Dans sa dernière publication il écrit [Maini 2001] :

"It is likely that a large number of bubbles are formed in rough cavities of pore walls (...)."

Il semble qu'il considère que les bulles nucléent dans les cavités au sens thermodynamique et qu'elles ne sont pas préexistantes.

IFP Moulu puis Egermann et Vizika [Betata 1998, Egermann 2000, Moulu 1989a, Moulu 1989b] :

Dans le code de nucléation de l'IFP, la formation des bulles est modélisée par un taux de nucléation. Le mécanisme est donc du type thermodynamique et hétérogène.

El Yousfi et al. [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997] :

Interprétation des expériences :

Il s'agit d'expériences de visualisation en micromodèle. L'enregistrement des observations est réalisé avec un appareil photo ou un système vidéo dont l'optique permet une résolution spatiale de 30 μm . Les expériences montrent des bulles qui apparaissent "progressivement" pendant une heure environ (Figure 3.2). Mais attention, **il ne s'agit pas d'une "nucléation progressive"**. Rappelons que les expériences sont effectuées avec un échelon de pression. Elles s'interprètent très bien avec le modèle de piégeage dans les crevasses. L'activation est instantanée et pour un ΔP donné, un nombre N de bulles est activé. Cependant, comme les calculs le montrent, les bulles au moment de l'activation ont une taille inférieure au micron (d'après la pression capillaire) et ne sont pas visibles. Les bulles ne deviennent visibles que vers 30 microns environ. La progressivité de l'apparition des bulles est liée à la distribution de taille de bulles et à la géométrie locale des crevasses qui permet une diffusion et donc un grossissement plus ou moins rapide.

Discussion sur la terminologie :

Un grand nombre de travaux sur la nucléation, soit en milieu poreux ou non (ébullition, cavitation, médecine), montre que la nucléation se produit à partir de microbulles préexistantes (piégées dans les rugosités ou au sein du volume de liquide). Ce modèle est admis dans les domaines de l'ébullition et de la cavitation. Pourtant, certains auteurs dans le domaine pétrolier continuent à suggérer que la nucléation hétérogène au sens thermodynamique est envisageable et/ou que la préexistence des bulles n'est possible que

dans les cavités hydrophobes [Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1989]. Cela va à l'encontre des observations expérimentales [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Griffith 1960, Hirasaki 1988, Wang 1993a, Wang 1993b, Yang 1988]. D'autre part, les termes de nucléation progressive, instantanée ou séquentielle n'ont aucun sens physique [Arora 2001, Firoozabadi 1997, Firoozabadi 1996, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1997]. En effet, le processus de nucléation proprement dit ne dépend pas du temps mais de la sursaturation (la notion de taux de nucléation n'a pas de sens), il ne peut dépendre qu'implicitement du temps si la sursaturation varie dans le temps. **Nous abandonnerons ces termes et admettrons la validité du modèle de microbulles préexistantes.**

Que les microbulles soient dans le volume liquide ou piégées dans les rugosités de parois, la modélisation est la même. En effet, n'ayant pas accès à la géométrie des sites de nucléation, ni aux données liées à l'interface des bulles, les deux cas ne peuvent être modélisés que par l'intermédiaire d'une distribution de la taille caractéristique de ces microbulles. La discussion peut alors porter sur le choix de la fonction qui décrit le mieux la distribution des tailles de sites ou de germes. Parlar & Yortsos [Parlar 1989, Yortsos 1989], Li & Yortsos [Li 1991, Li 1993, Li 1995a, Li 1995b] font l'hypothèse d'une relation d'auto-similarité entre la taille des pores et celle des sites en prenant le rapport des tailles constantes. Ils utilisent une distribution de Rayleigh de la forme $\exp(-c^{ste} \cdot r^2)$. Ce choix impose une probabilité maximum pour une taille r_c et une répartition symétrique à celle-ci, Figure 3.10 et Figure 3.11. Or il est bien connu que la distribution vers les petites tailles est plutôt fractale [Franc 1995, Griffith 1960, Wang 1993b, Yang 1988]. Tsimpanogiannis & Yortsos [Tsimpanogiannis 2001] comparent trois distributions différentes : distribution de Rayleigh, une exponentielle étirée et un Log normal. Ils concluent que pour chacune d'elles la fraction de sites activés peut s'exprimer par une combinaison de termes adimensionnels, incluant le taux de déplétion. Mais les auteurs ne discutent ni des considérations physiques qui rentrent en compte dans le choix de la distribution, ni du choix à faire.

D'autre part, Arora & Kovscek [Arora 2001] en comparant les nucléations instantanée et progressive (i.e. séquentielle), constatent que les deux simulent relativement bien les expériences, la nucléation séquentielle donnant de meilleurs résultats (mais il y a une courbe ajustable supplémentaire). Ils expliquent le peu de différences entre les deux processus par le fait que la sursaturation atteint un maximum puis diminue, sur un intervalle de temps court par rapport à l'échelle de temps des expériences. Puisque dans le cas séquentiel la nucléation se produit tant que le Δp augmente et vu l'intervalle de temps très court sur lequel se produit la nucléation, on peut simplifier le problème en introduisant un processus instantané.

3.1.1.6. Relation entre nombre de bulles et taux de déplétion

Les résultats expérimentaux [Bora 1997, Maini 1999b] et théoriques [Firoozabadi 1996, Li 1995a, Tsimpanogiannis 2001, Yortsos 1989] montrent que le nombre de bulles augmente avec le taux de déplétion dP/dt . Nous allons montrer que le modèle de bulles préexistantes permet d'interpréter cette observation. Toutes les démonstrations faites précédemment décrivent l'apparition des premières bulles en admettant implicitement que la quantité de constituants légers qui quittait la solution pour la phase gazeuse était négligeable (hypothèse du potentiel chimique restant constant dans le liquide). Par contre au cours du grossissement

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

des bulles, on ne peut négliger cet effet car la concentration en constituants légers va diminuer au cours du temps. La distribution de taille de sites augmentant vers les petites tailles, plus la sursaturation maximum est élevée plus le nombre de sites activés est grand. Nous allons voir que :

- dans le cas d'une déplétion instantanée, la sursaturation ne peut que diminuer ce qui donne un nombre constant de bulles nucléées ;
- dans le cas d'un taux de déplétion, la sursaturation va passer par un maximum ce qui donnera un nombre de bulles données et constant.

Nous montrerons ainsi que le modèle de préexistence de bulles permet d'expliquer à la fois, la variation du nombre maximum de bulles nucléées avec le taux de déplétion, et le fait que pour une sursaturation donnée ce nombre maximum est constant.

Prenons un exemple inspiré de la thèse d'El Yousfi. On part d'une solution aqueuse de CO₂ saturée à 2 bars. Supposons qu'une détente de 1 bar active instantanément N=100 bulles (Figure 3.12). La pression P_L dans le liquide est donc 1 bar. Dans cette expérience de détente avec un échelon de pression, les 100 bulles vont grossir (avec des taux de croissance différents comme nous l'avons vu) et appauvrir la solution. La concentration diminue ainsi que la pression d'équilibre correspondante P_S, suivant la loi de Henry. L'équilibre sera atteint lorsque la pression dans le gaz P_G sera égale à P_S (égalité des potentiels chimiques). Si l'on néglige la pression capillaire, la limite est la pression P_L dans le liquide. Avec une pression capillaire moyenne <P_C> (correspondant à un rayon de courbure moyen <r>) la pression d'équilibre sera telle que

$$P_S = P_L + \langle P_C \rangle = P_L + \frac{2\gamma}{\langle r \rangle} \quad (49)$$

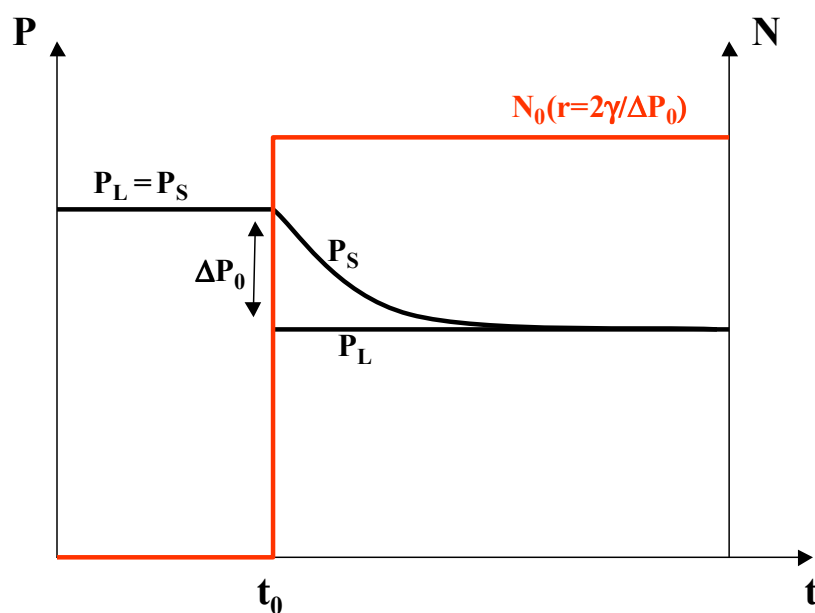


Figure 3.12 : Schéma d'évolution du nombre de bulles et de la pression d'équilibre lors d'une déplétion instantanée.

Maintenant, en prenant la même solution saturée en CO_2 à 2 bars, nous réalisons des expériences à taux de déplétion constant. Supposons d'abord un taux de déplétion très faible (Figure 3.13). Lorsqu'on atteint le seuil de sursaturation (0.5 bar environ), quelques bulles apparaissent et commencent à croître. La saturation en CO_2 dans le liquide diminue. La cinétique de diffusion est relativement rapide par rapport à la cinétique de dépressurisation et la pression d'équilibre P_S rejoint rapidement la pression dans le liquide (en négligeant la pression capillaire). La sursaturation $\Delta P = P_S - P_L$, différence entre la pression d'équilibre et la pression dans le liquide, présente un maximum qui est très voisin de la valeur au seuil (Figure 3.13). Le nombre de bulles créées est déterminé par la courbe de distribution de tailles de bulles préexistantes (Figure 3.15). Ce nombre est donc faible lorsque le taux de déplétion est faible.

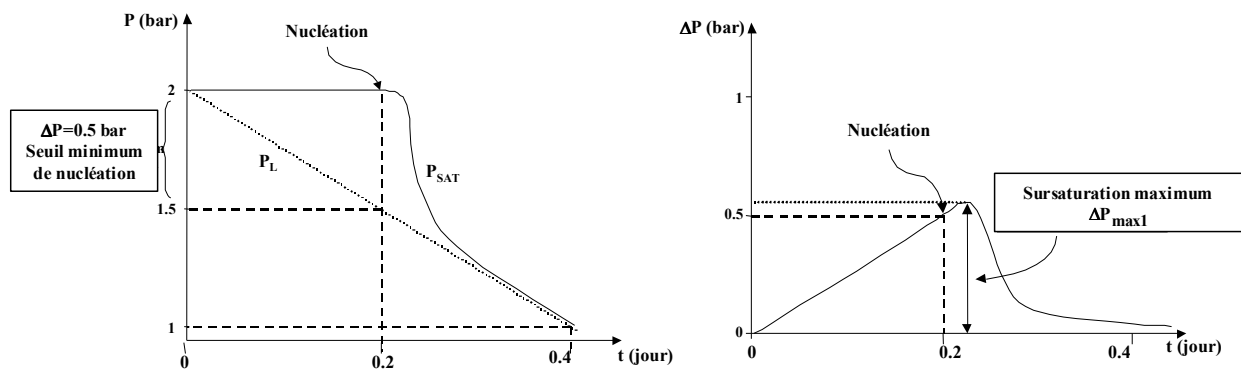


Figure 3.13 : Schéma d'évolution de la pression d'équilibre pour un taux de déplétion très faible.

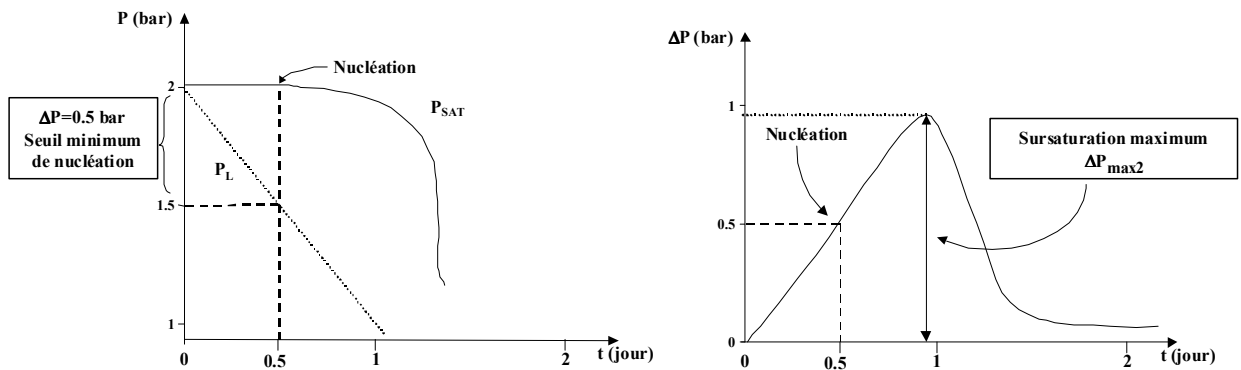


Figure 3.14 : Schéma d'évolution de la pression d'équilibre pour un taux de déplétion élevé.

Considérons maintenant une déplétion rapide (Figure 3.14). La diffusion est beaucoup plus lente que la cinétique de détente et la sursaturation est beaucoup plus importante que dans le cas précédent. Le nombre de bulles produites est donc plus important (Figure 3.15).

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

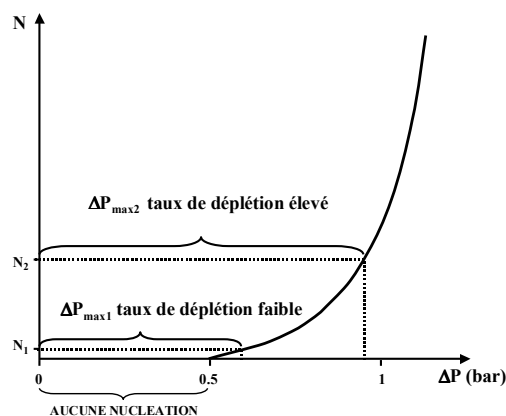


Figure 3.15 : Nombre de bulles produites dans les deux cas de nucléation faible et élevée.

Nous avons aussi illustré cet effet du taux de déplétion sur le nombre de bulles en utilisant le cas réel de Longeron & Moulu [Moulu 1989a] : les simulations seront détaillées dans un prochain paragraphe. Les Figure 3.16 a) et b) montrent l'évolution de la pression d'équilibre et de la sursaturation en fonction du temps pour deux taux de déplétion. On remarque bien l'augmentation du maximum de Δp avec le taux de déplétion, or plus la sursaturation maximum augmente plus les petites tailles de sites peuvent être activées. Le nombre total de bulles nucléées est donc plus important pour le fort taux de déplétion. La nucléation s'arrête lorsque la sursaturation diminue. Les Figure 3.17 a) et b) montrent les mêmes paramètres en fonction de la pression de sortie.

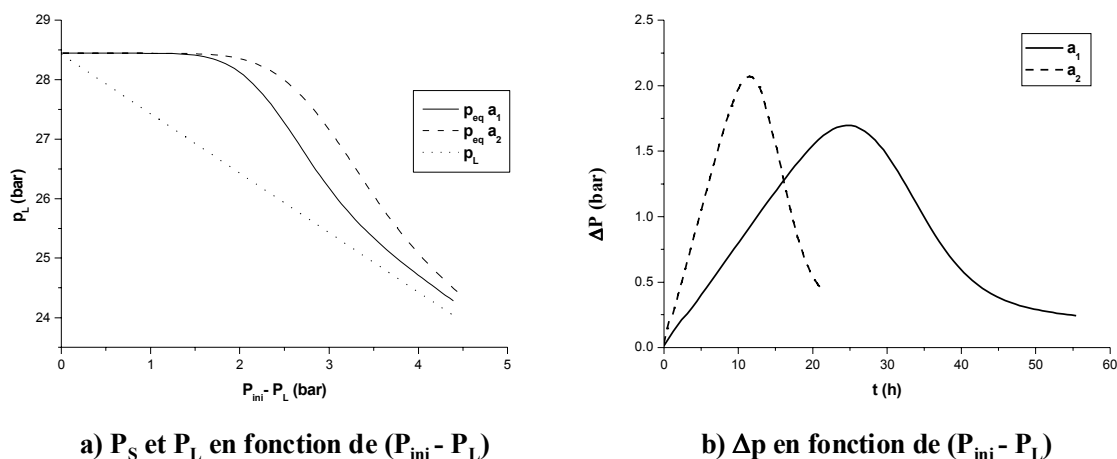
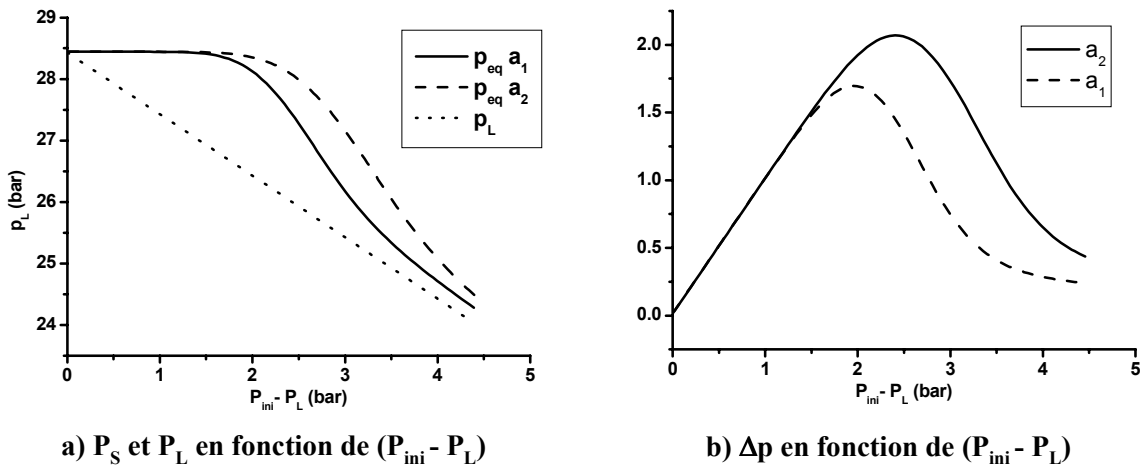


Figure 3.16 : Simulations pour deux taux de déplétion $a_2=5$ et $a_2=0.03$.

Le résultat important est que le nombre de bulles est petit à un faible taux de déplétion. La limite d'un taux très lent pourrait donner une seule bulle.

Figure 3.17 : Mêmes simulations que la Figure 3.16 en fonction de P_{aval} .

Remarque : Ce résultat de dépendance du nombre de bulles avec le taux de déplétion ne peut pas être interprété avec une distribution de microbulles de taille unique (Dirac). On pourrait se poser la question sur le nombre de bulles nucléées à partir d'un même site. Hors milieu poreux, dans le cas du Champagne par exemple, on observe un train de bulles régulièrement espacées à partir d'un même site [Jones 1999b, Liger-Belair 2001, Mori 2001]. Ceci s'explique par le fait qu'une fraction de gaz reste piégée après libération de la bulle qui, par poussée d'Archimède, va être éloignée du site. En milieu confiné la bulle peut être contrainte de rester à proximité du site. Dans ce cas la diffusion se fait préférentiellement vers la bulle de plus grand rayon de courbure. On peut donc supposer qu'il n'y a au plus une bulle par pore, hypothèse vérifiée par les observations en micro modèle [Bora 1997, Lago 2000, Li 1991, Li 1995b].

Un paramètre qui intéresse tout particulièrement les pétroliers est la saturation en gaz critique S_{gc} . Ce dernier correspond à la valeur critique en sursaturation de gaz à partir de laquelle le gaz devient continu (ou une partie). On comprend aisément que ce terme va dépendre fortement du nombre total de bulles. Des études théoriques ont montré que l'on pouvait avoir une loi d'échelle entre S_{gc} et le nombre cumulé final de bulles nucléées [Du 1999, Li 1995a, Tsimpanogiannis 2001]. Or ce nombre de bulles augmente avec la saturation donc avec le taux de déplétion. Cette augmentation de la saturation en gaz critique, S_{gc} , avec le taux de déplétion ou le débit de soutirage a été largement observée [Firoozabadi 1999b, Firoozabadi 1992, Kortekaas 1991, Moulu 1989b, Scherpenisse 1994].

3.1.1.7. Conclusion

- La nucléation, en milieux poreux ou non, implique la préexistence de germes de gaz micrométriques microbulles ou inclusions.
- La sursaturation observée expérimentalement s'explique par le fait que ces germes sont des bulles avec un rayon maximum.
- L'activation des germes est instantanée.
- Le nombre de bulles nucléées augmente avec ΔP .

- Le nombre de bulles nucléées augmente avec dP/dt .

3.1.2. Modélisation du transfert dans la phase gazeuse

Notre objectif est de proposer une modélisation à l'échelle de Darcy. Nous allons utiliser la même approche que celle utilisée pour les écoulements diphasiques ou réactifs. Elle est constituée de deux étapes distinctes :

1) Écriture d'une loi de transfert à l'échelle de Darcy utilisant le formalisme général de la physique. A savoir, le flux Φ d'une grandeur extensive est lié à l'écart d'un potentiel par l'intermédiaire d'un coefficient de transfert h (constant ou non). Dans le cas présent la grandeur extensive est le nombre de moles d'éléments légers passant de la phase liquide dans la phase gaz. Pour un élément donné à l'échelle de Darcy (VER), ce transfert se produit de façon uniforme à l'intérieur du volume, et non sur la surface externe. Nous définirons donc un flux par unité de volume. L'écart de potentiel est l'écart en concentration. On obtient donc la relation suivante :

$$\Phi = h_v (C - C_{eq}) \quad (50)$$

Les unités sont en SI : Φ ($\text{mol.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$), C (mol.m^{-3}), h_v (s^{-1}).

2) Détermination de la dépendance de h_v vis à vis des paramètres à l'échelle de Darcy en utilisant un modèle simplifié à une échelle plus fine. Comme nous le verrons plus loin, ce coefficient de transfert dépend de nombreux paramètres : saturation en gaz, vitesse du fluide, etc..

Le grossissement d'une bulle par diffusion a été largement étudié à l'échelle microscopique. Le formalisme est bien connu et plusieurs modèles et formulations du rayon en fonction du temps ont été obtenus. Nous rappellerons les bases à l'échelle d'une bulle et la représentation à l'échelle de Darcy.

Par contre, aucun auteur dans le cadre du processus *Solution Gaz Drive*, et dans une approche continue, n'a pris en compte le transfert dû à l'écoulement du liquide (transfert convectif). Nous proposerons une approche possible à l'échelle du continu en s'appuyant sur la similitude avec d'autres mécanismes de transfert par diffusion/convection en milieu poreux (acidification, dissolution).

3.1.2.1. Diffusion à l'échelle d'une bulle

Le grossissement d'une bulle est contrôlé par plusieurs mécanismes : transfert de masse, forces inertielles, tension de surface, forces visqueuses. En milieu poreux il faut ajouter les effets capillaires [Dominguez 1997, Dominguez 2000, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Franc 1995, Hong 1985, Jones 1999a, Kumar 2001a, Lee 1996, Li 1991, Li 1995a, Lubetkin 1994, Payvar 1987, Readey 1966, Scriven 1959, Yortsos 1989].

Le transfert de masse va être produit par le gradient de concentration dans le liquide [Pérez 1993], la concentration en gaz dissout dans la région de la bulle étant plus faible que celle loin de l'interface liquide/gaz. Les principales équations sont rappelées ci dessous.

Dans les hypothèses d'une symétrie sphérique, d'une densité de masse constante, d'un coefficient de diffusion constant, on a l'équation de diffusion pour la concentration en gaz dissout [Readey 1966, Scriven 1959] :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \frac{\partial C}{\partial r} = D \Delta C \quad (51)$$

Gradient radial en concentration Figure 3.18 :

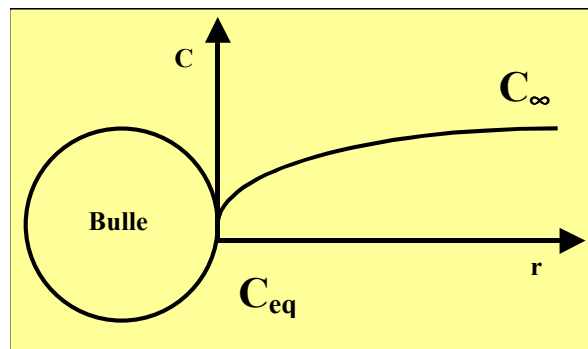


Figure 3.18 : Profil de concentration autour d'une bulle dans un liquide au repos.

La loi de Fick donne la densité de flux de moles migrant vers la bulle, D étant la diffusion moléculaire :

$$\varphi = -D \frac{\partial C}{\partial r} \quad (52)$$

Transfert entre solution et bulle :

$$\varphi(\text{bulle}) = \left[-D \frac{\partial C}{\partial r} \right]_{\text{parois}} \quad (53)$$

Dans l'hypothèse d'un milieu infini et en négligeant les effets inertiels à l'interface, on a une loi de grossissement de la forme [Franc 1995, Hong 1985, Lee 1996, Scriven 1959] :

$$R \propto \sqrt{Dt} \quad (54)$$

Cette loi est souvent utilisée en première approximation en milieu confiné [Betata 1998, El Yousfi 1992, Moulu 1989a]. En milieux poreux, la dépendance temporelle du rayon d'un amas gazeux est différente de celle déterminée en fluide homogène. Il faut tenir compte de la géométrie du milieu et des effets capillaires. Les bulles occupent alors plusieurs pores et suivent une loi de percolation globale en puissance de t [Dominguez 1997, Dominguez 2000, Kumar 2001a, Li 1991, Li 1995a, Li 1995b, Yortsos 1989]. Ceci est vérifié pour de faibles sursaturations et des bulles de petites tailles. Pour des tailles plus grandes, la croissance est plus rapide et la croissance de la bulle dans le milieu poreux est contrôlée par les mécanismes d'instabilité visqueuse [Li 1995a].

A l'échelle microscopique il faut donc connaître le champ de concentration autour de chaque bulle pour pouvoir prédire le grossissement de la phase gaz. Or les expériences ou les données champs ne nous livrent que des grandeurs moyennes : saturation, concentration, etc..

3.1.2.2. Diffusion avec une population de bulles

Dans ce paragraphe nous discutons du transfert pour une population de bulles, mais il ne s'agit pas encore d'une approche de type Darcy. En effet, dans ce qui suit il est fait appel à des grandeurs inaccessibles à l'échelle de Darcy telles que le nombre de bulles et la détermination exacte de l'interface d'échange.

On vient de voir que le grossissement par diffusion dans le cas d'un liquide déplété est contrôlé par le gradient de concentration à la surface de la bulle. Dans une approche continue, ce gradient local n'est pas accessible et on va le remplacer par un coefficient de transfert surfacique h_s (parfois noté k ou M selon les auteurs et les domaines d'applications). La densité de flux de transfert est supposée proportionnelle à l'écart entre la valeur d'équilibre C_{eq} à l'interface de la bulle et la concentration moyenne C dans le liquide [Defives 1976, Salter 1982, Wilkins 1995, Wu 1998]. Le coefficient de transfert h_s permet de calculer la densité de flux ϕ :

$$\phi = h_s (C - C_{eq}) \quad (55)$$

avec ϕ ($\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$), h_s (m.s^{-1}). Remarquons que h_s est homogène à une vitesse, alors que h_v , défini en (50), est l'inverse d'un temps.

L'introduction d'un coefficient de transfert pour remplacer un gradient local est une démarche relativement commune en physique (thermique, acidification [Pomès 2001], Génie Chimique [Defives 1976], etc.).

Dans ce qui suit nous allons déterminer une expression de h_s en fonction de grandeurs caractéristiques dans le cas du grossissement d'une population de bulles sphériques en milieu infini.

Prenons un volume V fluide (liquide + gaz). La pression dans le gaz est P . On note s la surface totale des bulles dans ce volume et N_0 le nombre total de bulles par unité de volume de fluide. Toutes les bulles sont supposées avoir le même rayon r .

Le volume total des bulles est :

$$V_G = N_0 V \frac{4\pi r^3}{3} \quad (56)$$

La surface des bulles :

$$s = N_0 V 4\pi r^2 \quad (57)$$

On peut éliminer le rayon en exprimant la surface en fonction du volume :

$$s = N_0 V 4\pi \left(\frac{3V_G}{N_0 V 4\pi} \right)^{2/3} \quad (58)$$

Par définition de la densité surfacique de flux :

$$\frac{dn}{dt} = \varphi_s \quad (59)$$

Loi de Henry :

$$C_{eq} = k_S P \quad (60)$$

On obtient alors une équation pour des bulles sphériques de la forme :

$$\frac{dn}{dt} = h_S N_0 V 4\pi \left(\frac{3V_G}{N_0 V 4\pi} \right)^{2/3} (C - k_S P) \quad (61)$$

On peut donner une estimation du coefficient de transfert surfacique h_S en remplaçant le gradient à la paroi dans l'approche locale (Eq. (53)) par un gradient moyen, en utilisant la distance moyenne d'entre bulles :

$$h_s \approx \frac{D}{d} \quad (62)$$

La distance moyenne entre bulles s'exprime en fonction du nombre de bulles N_0 par unité de volume :

$$d^3 = 1 / N_0 \quad (63)$$

D'où finalement :

$$\frac{dn}{dt} = D N_0^{1/3} N_0 V 4\pi \left(\frac{3V_G}{N_0 V 4\pi} \right)^{2/3} (C - k_S P) \quad (64)$$

et en simplifiant :

$$\frac{dn}{dt} = a D N_0^{2/3} V^{1/3} V_G^{2/3} (C - k_S P) \quad (65)$$

où a est une constante :

$$a = (4\pi)^{1/3} 3^{2/3} \approx 4.84 \quad (66)$$

Ce type d'approche a déjà été fait par plusieurs chercheurs pour modéliser le mécanisme de *solution gaz drive* [Torres 2001, Tsimpanogiannis 2001]. Les auteurs introduisent un paramètre ajustable et obtiennent une relation du type de l'équation (65). Remarquons que ces auteurs continuent à utiliser des paramètres qui n'ont un sens qu'à l'échelle d'une bulle tel que le coefficient de diffusion.

3.1.2.3. Échelle de Darcy : diffusion/convection

a. Transfert par diffusion :

A l'échelle de Darcy, nous ne connaissons pas la surface interne des bulles. Nous définissons donc un coefficient de transfert "volumique" h_v , défini en fonction du flux de moles par unité de volume de fluide :

$$\Phi = h_v (C - C_{eq}) \quad (67)$$

La dimension de h_v est (temps)⁻¹. Pour faire ressortir la dépendance de h_v en fonction des différents paramètres "microscopiques" de l'expérience nous allons identifier cette loi avec le résultat du calcul précédent :

$$\Phi = \frac{1}{V} \frac{dn}{dt} = h_v (C - C_{eq}) \quad (68)$$

d'où :

$$h_v \approx a D N_0^{2/3} V^{-2/3} V_G^{2/3} \quad (69)$$

On peut aussi introduire la saturation en gaz ($S_G = V_G/V_{total}$)

$$h_v \approx a D N_0^{2/3} S_G^{2/3} \quad (70)$$

Il faut bien rappeler que ce résultat est obtenu avec un modèle très simplifié de bulles équidistantes et de taille uniforme. Mais il permet d'avoir un aperçu de la dépendance de h_v en fonction des différents paramètres : saturation en gaz, densité de bulles et diffusion moléculaire. En pratique, on pourra ajuster le préfacteur mais aussi les puissances.

Nous avons donc une relation nous donnant l'évolution du nombre de moles de gaz. Dans les problèmes liés aux milieux poreux, il est plus physique de travailler avec des variables telles que les saturations. En utilisant la loi des gaz parfaits on peut faire apparaître la saturation en gaz plutôt que le nombre de moles. La loi des gaz parfaits donne :

$$n = \frac{PV_g}{RT} \quad (71)$$

On a donc en substituant n dans l'équation (68) :

$$\frac{d(P S_G)}{dt} = h_v RT (C - C_{eq}) \quad (72)$$

Nous obtenons alors une équation continue qui donne l'évolution du transfert de masse entre un fluide saturé en éléments légers et la phase gaz. Elle fait intervenir uniquement des variables moyennes qui ont un sens physique dans "l'approche de Darcy", c'est ce point qui est nouveau et important dans le modèle présenté dans cette thèse. Remarquons que cette équation est valable en milieu poreux et hors milieu poreux. Il reste maintenant à discuter du

coefficient de transfert volumique h_V . Quelle forme a-t-on utilisée pour le moment dans le simulateur ? Comment peut-on le déterminer ?

Nous avons vu que ce coefficient de transfert va dépendre dans un premier temps du nombre de bulles qui lui-même dépend de la sursaturation. Afin de déterminer à partir des expériences ce coefficient de transfert par ajustement (*history matching*), au même titre que l'on obtient une courbe capillaire, nous utilisons les résultats obtenus à l'échelle plus fine de la relation (61).

Comme nous l'avons vu précédemment, la nucléation est un mécanisme important et, à cette échelle, le seul moyen d'en tenir compte est d'introduire une distribution de taille de sites. Dans ce modèle cela revient à rendre N_0 dépendant de la sursaturation ΔP , et cela par l'intermédiaire de la distribution de taille de sites. Deux types de loi ont été testés : une loi exponentielle et une loi puissance.

La loi exponentielle correspond au modèle de Yang [Yang 1988] :

$$N_0 = \beta_{\text{NUCL}} \exp\left(-\frac{\delta}{P - P_{\text{eq}}}\right) \quad (73)$$

où β_{NUCL} et δ sont des constantes. Cependant, il faut modifier cette équation pour tenir compte du seuil de sursaturation ΔP_{seuil} . Par exemple :

$$N_0 = 0 \quad \text{pour } P - P_{\text{eq}} < \Delta P_{\text{seuil}}$$

$$N_0 = \beta_{\text{NUCL}} \left[\exp\left(-\frac{\delta}{P - P_{\text{eq}}}\right) - \exp\left(-\frac{\delta}{\Delta P_{\text{seuil}}}\right) \right] \quad \text{pour } P - P_{\text{eq}} > \Delta P_{\text{seuil}} \quad (74)$$

Or d'après l'équation (70) h_V dépend de N_0 :

$$h_V \approx a D N_0^{2/3} S_G^{2/3} \quad (75)$$

On obtient dans ce cas, et en supposant l'écart entre bulles de l'ordre de $1/N_0^{1/3}$:

$$h_V(S_g) = a S_g^{2/3} \beta_{\text{NUCL}}^{2/3} D \left[\exp\left(-\frac{\delta}{P - P_{\text{eq}}}\right) - \exp\left(-\frac{\delta}{\Delta P_{\text{seuil}}}\right) \right]^{2/3} \quad (76)$$

Comme nous l'avons vu précédemment, l'exposant 2/3 provient du rapport surface/volume des bulles et peut être modifié pour tenir compte d'une forme ramifiée (fractale) des bulles dans le milieu poreux.

Prise en compte de l'aspect fractal :

Pour un objet fractal, typiquement une bulle en milieu poreux qui est un amas de percolation (Figure 3.19), on ne peut pas définir le volume et la surface avec les relations classiques. Afin de tenir compte de la zone de drainage de la bulle (en grisé sur la Figure 3.18), on peut définir un rayon de drainage R appelé rayon de giration.

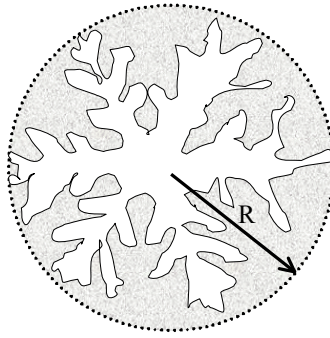


Figure 3.19 : Représentation schématique d'une bulle fractale, R étant le rayon de giration.

Ce rayon est défini en fonction du volume de gaz pour une bulle :

$$\frac{R}{r_c} \propto \left(\frac{v_b}{r_c^3} \right)^{1/D_f} \quad (77)$$

avec v_b le volume de la bulle, R le rayon de giration, r_c une taille caractéristique prise égale à celle des pores et D_f la dimension fractale. Le volume d'une bulle étant S_g/N_0 on a :

$$R \propto \left(\frac{S_g}{N_0} \right)^{1/D_f} r_c^{(1-3/D_f)} \quad (78)$$

rappelons que S_g est la saturation en gaz et que N_0 est la densité de bulles par unité de volume. On obtient pour la surface totale d'échange pour les N_0V bulles :

$$s \propto VN_0^{(1-2/D_f)} S_g^{2/D_f} r_c^{2(1-3/D_f)} \quad (79)$$

On peut alors réécrire l'équation (61) pour le flux de matière à travers cette surface :

$$\frac{dn}{dt} \propto h_S VN_0^{(1-2/D_f)} S_g^{2/D_f} r_c^{2(1-3/D_f)} (C - k_S P) \quad (80)$$

Pour exprimer le coefficient de transfert surfacique h_S dans le cas d'une population de bulles sphériques, nous avons utilisé la distance moyenne entre bulles. Dans le cas de bulles fractales ce choix implique que l'huile entre les ramifications est complètement drainée. Afin de tenir compte de ce point, nous faisons ici l'hypothèse que la distance caractéristique de transfert est celle des pores r_c . On écrit alors $h_S \sim D/r_c$, ce qui donne :

$$\frac{1}{V} \frac{dn}{dt} \propto DN_0^{(1-2/D_f)} S_g^{2/D_f} r_c^{(1-6/D_f)} (C - k_S P) \quad (81)$$

On obtient alors pour le transfert volumique :

$$h_V \propto DN_0^{(1-2/D_f)} S_g^{2/D_f} r_c^{(1-6/D_f)} \quad (82)$$

Par analogie avec ce que l'on obtient pour une bulle sphérique et en posant $d=2/D_f$, on peut généraliser l'équation (76) :

$$h_V(S_g) = S_g^d \beta_D \left[\exp\left(-\frac{\delta}{P - P_{eq}}\right) - \exp\left(-\frac{\delta}{\Delta P_{Seuil}}\right) \right]^{(1-d)} \quad (83)$$

β_D est une constante qui dépend du coefficient de diffusion.

La seconde distribution utilisée est une loi puissance [Wang 1993b]. Wang *et al.*, avec ce type de loi, ont obtenu d'excellentes corrélations avec des expériences de visualisation en ébullition [Wang 1993a, Wang 1993b]. Avec un tel type de loi l'équation (83) devient :

$$h_V(S_g) = S_g^d \beta_D \left[(P - P_{eq})^m - \Delta P_{Seuil}^m \right]^{(1-d)} \quad (84)$$

β_D est une constante qui dépend du coefficient de diffusion, de la taille caractéristique et de la constante dans la loi de distribution. Si on écrit la loi de distribution de la manière suivante :

$$N(\Delta P) = \beta_{NUCL} F \quad (85)$$

avec

$$\begin{cases} F = \Delta P^m \text{ Loi puissance} \\ F = \exp\left(-\frac{\delta}{\Delta P}\right) \text{ Modèle de Yang} \end{cases} \quad (86)$$

Dans ce cas on obtient : $\beta_D \propto D_r^c (1-3d) \beta_{NUCL}^{(1-d)}$. Ce calcul n'est pas fait pour amonceler les notations, mais pour préciser que la constante β_D qui est utilisée pour les simulations dans la partie suivante n'est pas directement la constante dans l'expression de la loi de distribution. Sa dimension est s^{-1} et non bulles.m⁻³ comme c'est le cas pour β_{NUCL} .

Invariants : Le coefficient de diffusion, la dimension fractale et la distribution de taille de sites sont des invariants du système roche-fluides, c'est-à-dire qu'ils ne dépendent pas des conditions opératoires. C'est le point fort de ce modèle. En effet, ceci implique que quels que soient le taux de déplétion ou les volumes en place, les mêmes paramètres permettent de représenter le système. Ce qui veut dire que les paramètres déterminés expérimentalement sont utilisables et ont un sens en conditions réservoir. Cette courbe de transfert $h_V(S_g)$ peut être déterminée expérimentalement, tout comme les courbes de pression capillaire et les perméabilités relatives.

b. Transfert par convection :

Pour le moment cette courbe de transfert n'est supposée dépendre que de la diffusion, l'effet convectif étant négligé. Pourtant en thermique, il est bien connu qu'un échange convectif est beaucoup plus efficace qu'un transfert par diffusion pure avec fluides au repos. Plusieurs

travaux ont montré la dépendance du coefficient de transfert de masse et de la vitesse [Golfier 2002, Pomès 2001, Quintard 1994, Stubos 1999, Takahashi 1988, Wilkins 1995, Wu 1998].

Un exemple de transfert chimique à la paroi des grains d'un milieu poreux est donné sur la Figure 3.20. La vitesse du liquide est exprimée sous la forme adimensionnelle du nombre de Péclet défini par :

$$Pe = \frac{Vl}{D} \quad (87)$$

où V est la vitesse moyenne dans les pores, l une longueur caractéristique et D le coefficient de diffusion.

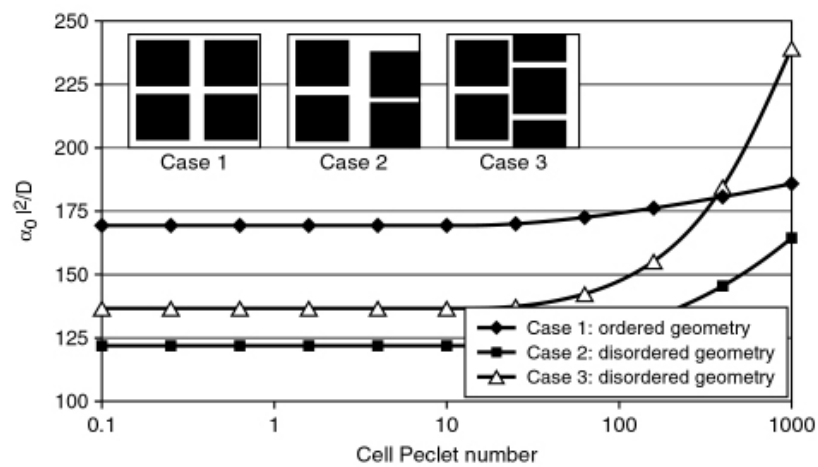


Figure 3.20 : Exemple de valeurs du paramètre de transfert chimique en acidification en fonction de la vitesse d'écoulement du fluide (d'après [Golfier 2002]).

Le coefficient de transfert peut alors être modélisé par une fonction de la forme :

$$h_V = A + BPe^\alpha \quad (88)$$

Dans l'exemple précédent l'effet de la vitesse sur le transfert de masse devient significatif pour un Péclet supérieur à 10. D'autres travaux observent un effet dès la valeur $Pe=0.1$ [Wilkins 1995].

3.1.3. Écoulement des phases

Dans le modèle présenté, nous considérons trois phases (Figure 3.21) :

- l'huile ;
- le gaz discontinu qui peut être piégé et en mouvement ;
- le gaz continu.

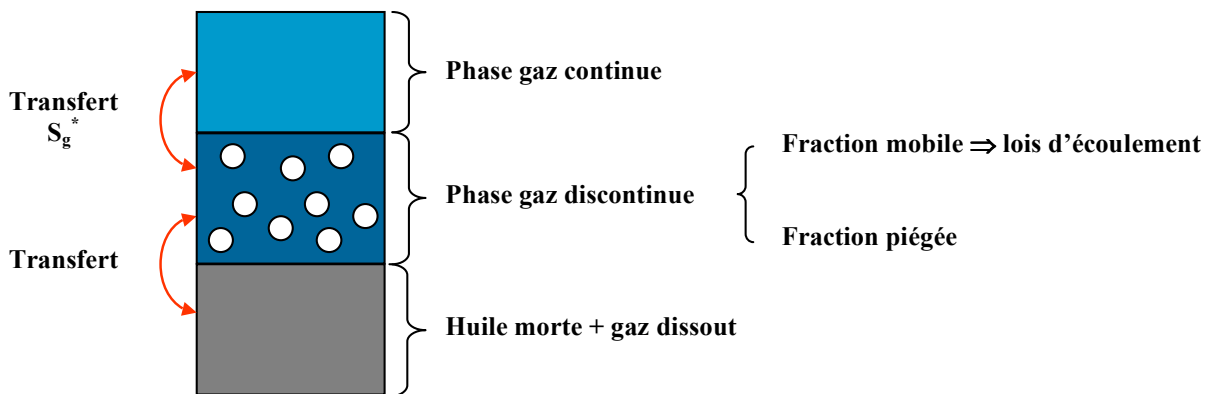


Figure 3.21 : Schéma des différentes "pseudo" phases présentes dans le milieu poreux (la phase eau résiduelle n'est pas mentionnée mais existe toujours)

3.1.3.1. Écoulement du gaz dispersé

Le gaz discontinu ne peut pas être traité avec le formalisme de Darcy puisque ce dernier suppose les phases continues. Pourtant, c'est ce formalisme qui est implanté dans les simulateurs réservoir. Mis à part le simulateur STARS, qui semble donner de bons résultats, les simulateurs classiques ne peuvent simuler plusieurs expériences d'huiles lourdes avec le même jeu de K_r (cf. Chap. 1). Une seconde approche est de considérer l'ensemble gaz dispersé et huile environnante comme une pseudo phase. Les deux approches utilisées jusqu'à présent dans le cas de la production par *solution gas drive* sont donc :

- Introduire des perméabilités relatives au gaz et à l'huile qui permettent de simuler les données directement dans les simulateurs réservoir [Kumar 2000, Mirabal 1996a, Mirabal 1996b, Tang 2001, Tang 1999].
- Considérer ce gaz discontinu comme une pseudo phase et en déterminer les propriétés physiques relatives à cette pseudo phase : viscosité, densité, etc. [Arora 2001, Claridge 1995, Islam 1990, Islam 1999, Kumar 2000, Sarma 1992, Sheng 1997, Sheng 1999a, Smith 1988].

Quelques remarques concernant ces approches :

- La seconde est plus physique. Elle est utilisée pour décrire l'écoulement d'émulsions ou de mousses conventionnelles (aqueuses) dont la viscosité ou la densité ont un sens. C'est le principe du formalisme *Population Balance Modeling*, présenté au premier chapitre (§ 1.3.2.3.b), qui décrit l'évolution de la population de bulles et permet de déterminer une viscosité effective du gaz [Apaydin 2000, Bertin 2000, Bertin 1998, Ettinger 1992, Falls 1986, Falls 1989, Friedmann 1991, Hirasaki 1985, Kovsky 1997, Kovsky 1994, Patzek 1988]. Dans le cas des huiles lourdes, bien qu'appelées parfois "moussantes", les "bulles" de gaz sont bien plus dispersées qu'une mousse usuelle. Il est alors difficile de concevoir une viscosité, une densité, etc., pour un ensemble constitué d'amas gazeux séparés de plusieurs fois leurs tailles par de l'huile.
- Une approche plus réaliste serait de traiter cette phase comme un ensemble de ganglions. La mobilisation d'un ganglion résulte de la compétition entre les forces

capillaires et les forces visqueuses. Cette approche de la mobilité du gaz est celle du simulateur nucléation d'Egermann [Egermann 2000]. Dans ce modèle la mobilité du gaz est modélisée par une fonction de transfert ajustable. Celle-ci correspond au volume de gaz transféré d'une maille à l'autre en fonction de la saturation en gaz.

Mobilisation des bulles :

Dans ce modèle la phase de gaz dispersé dans l'huile est assimilée à une population de ganglions d'un fluide non-mouillant (le gaz) au sein d'un fluide mouillant (l'huile). Le nombre capillaire, noté Ca , caractérise la compétition entre capillarité et forces visqueuses :

$$Ca = \frac{u_{nw}\mu}{\gamma} \quad (89)$$

où u_{nw} est la vitesse du fluide déplaçant, nw correspond à *non-wetting*, i.e. la phase non-mouillante. Dans notre cas il s'agit de la phase huile, γ est la tension interfaciale. Il existe donc une valeur critique, Ca^* , correspondant à la mobilisation du ganglion, c'est-à-dire au moment où le gradient visqueux devient plus important que la pression capillaire. Cette valeur critique est fonction de la longueur du ganglion, l_b . En utilisant la loi de Darcy, on peut exprimer Ca^* comme suit [Lenormand 1988b] :

$$Ca^* = \frac{K_{ro}K}{\gamma} \frac{\Delta P}{l_b} \quad (90)$$

où K est la perméabilité absolue, K_{ro} est la perméabilité relative de l'huile, ΔP est la différence de pression entre l'amont et l'aval du ganglion. Il y a donc une taille critique de dépiégeage qui à l'échelle de Darcy peut correspondre à une saturation seuil, notée ici S_g^{mob} . La fraction de gaz piégée est prise égale à S_g^{mob} .

La taille moyenne des bulles fractales est donnée par l'équation (78). On définit alors une grandeur simple de mobilisation λ_{mob} , définie comme le produit de l_b et du nombre capillaire :

$$\lambda_{mob} = Ca l_b = \frac{\mu_o u_o}{\gamma} l_b \quad (91)$$

Notons que pour le moment c'est une valeur moyenne sur l'ensemble du milieu. Le S_g^{mob} est alors défini comme la valeur de la saturation en gaz lorsqu'une valeur critique de λ_{mob} , notée λ_{mob}^* , est atteinte :

$$\lambda_{mob}^* = \frac{\mu_o u_o^*}{\gamma} l_b \quad (92)$$

Invariant : Ce paramètre de mobilisation critique est un invariant du système, tout comme la loi de distribution. En effet, nous venons de voir que ce qui contrôle la mobilisation des bulles est la compétition entre les forces visqueuses et capillaires. Si l'on note P_c^* la pression capillaire critique et $\Delta P/l_b$ le gradient visqueux le long d'une bulle, alors il y aura mobilisation quand $\Delta P = P_c^*$. Ce qui peut s'écrire en utilisant la loi de Darcy :

$$\Delta P = \frac{\mu_o u_o^*}{K} l_b = P_c^* = \frac{2\gamma}{r_c} \quad (93)$$

où u_o^* est la vitesse critique de mobilisation. On obtient alors :

$$\frac{\mu_o u_o^*}{\gamma} l_b = \frac{2K}{r_c} = \lambda_{mob}^* \quad (94)$$

Le paramètre critique de mobilisation λ_{mob}^* est donc un invariant du système qui n'est fonction que des caractéristiques du milieu poreux : la perméabilité K et la taille des pores r_c .

Vitesse du gaz :

Il faut pouvoir maintenant traduire l'écoulement de ces ganglions en terme de vitesse de Darcy u_g , défini comme le rapport du débit de gaz sur l'aire de la section. Un grand nombre de travaux expérimentaux et théoriques montre que la vitesse des ganglions va dépendre du nombre capillaire, de leur taille et du rapport des viscosités [Dias 1986, Egbogah 1985, Egbogah 1981, Ng 1978, Valavanides 1998]. A l'échelle de Darcy, une formulation simple est d'exprimer la vitesse des bulles de gaz en fonction de la saturation et de la vitesse du fluide continu :

$$\begin{aligned} u_g &= 0 && \text{pour } S_g < S_g^{mob} \\ u_g &= c(S_g - S_g^{mob})u_o && \text{pour } S_g > S_g^{mob} \end{aligned} \quad (95)$$

où c est une constante de proportionnalité, u_o est la vitesse de l'huile.

3.1.3.2. Écoulement des phases continues

Pour les phases continues, les vitesses sont données par la loi de Darcy. Les perméabilités relatives peuvent être déterminées dans une expérience de déplacement. N'ayant pas de telles expériences à disposition, les perméabilités relatives à l'huile et au gaz, respectivement K_{ro} et K_{rg} , sont calculées par des relations analytiques de type Corey [Dullien 1992] :

$$\begin{aligned} K_{ro} &= K_{ro}^0 \cdot \left(\frac{1 - S_{or} - S_{wi} - S_g}{1 - S_{or} - S_{wi} - S_{gc}} \right)^{n_o} \\ K_{rg} &= K_{rg}^0 \cdot \left(\frac{S_g - S_{gc}}{1 - S_{or} - S_{wi} - S_{gc}} \right)^{n_g} \end{aligned} \quad (96)$$

où S_{or} est la saturation résiduelle en huile, les K_{ro}^0 et K_{rg}^0 sont des constantes, n_g et n_o sont les exposants de Corey. La Figure 3.22 montre la forme de ces perméabilités relatives en fonction de la saturation en gaz.

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

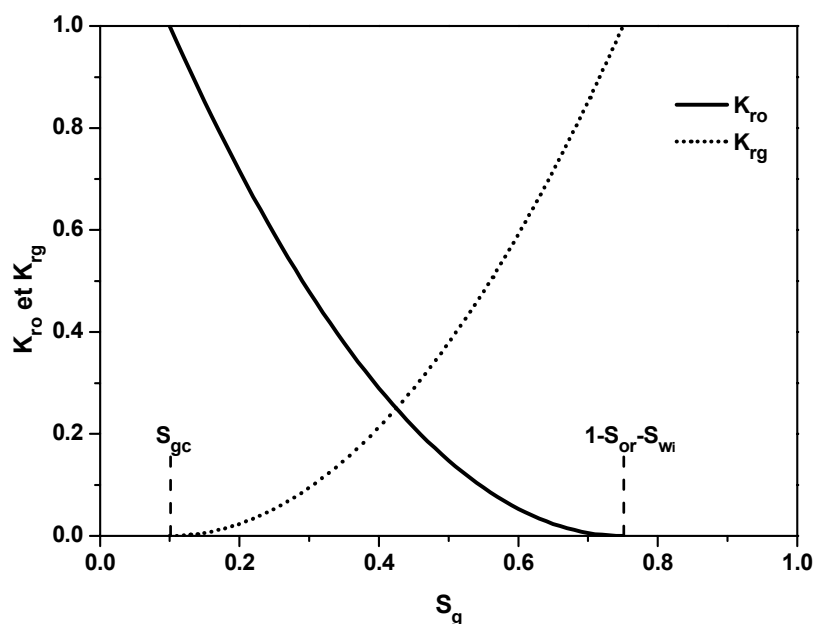


Figure 3.22 : Formes analytiques de type Corey pour les perméabilités relatives à l'huile, K_{ro} , et au gaz, K_{rg} . Avec : $K^0=1$ pour l'huile et le gaz ; n_o et $n_g = 2$; $S_{gc}=0.1$; $S_{or}=0.1$; $S_{wi}=0.15$.

Le S_{or} est la valeur de saturation correspondant à l'huile qui restera piégée dans le milieu. En tenant compte de la fraction d'eau supposée piégée la perméabilité relative à l'huile est nulle pour des saturations en gaz supérieures à $1-S_{or}-S_{wi}$.

La phase huile est continue sur l'ensemble de la production, sa vitesse est donc donnée par la loi de Darcy :

$$u_0 = -\frac{KK_{ro}}{\mu_o} \frac{\partial P}{\partial x} \quad (97)$$

Comme cela a été expliqué dans le premier chapitre, à partir d'une valeur seuil en saturation une fraction du gaz est connectée et s'écoule sous forme continue. La notation S_{gc} est utilisée avec la définition de Maini [Maini 2001] : saturation en gaz critique à partir de laquelle le gaz est continu. Puisque la fraction de gaz connecté est continue à l'échelle du milieu, la loi de Darcy en diphasique peut s'appliquer. On obtient alors pour la vitesse totale de gaz (continu + discontinu) :

$$\begin{aligned} u_g &= 0 && \text{pour } S_g < S_g^{\text{mob}} \\ u_g &= c(S_g - S_g^{\text{mob}})u_o && \text{pour } S_{gc} > S_g > S_g^{\text{mob}} \\ u_g &= c(S_{gc} - S_g^{\text{mob}})u_o - \frac{KK_{rg}}{\mu_g} \frac{\partial P}{\partial x} && \text{pour } S_g > S_{gc} \end{aligned} \quad (98)$$

3.1.4. Le code numérique

3.1.4.1. Système d'équations continues

En plus des équations précédentes, permettant de calculer le flux de masse (h_V) et les vitesses des différentes phases, il faut compléter le système d'équations par la conservation de la masse pour l'huile, le gaz et la concentration en éléments légers. La pression capillaire étant négligée, les différents bilans de masse sont, à une dimension :

Pour l'huile :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} (\rho_o S_o) + \frac{\partial}{\partial x} (\rho_o u_o) = 0 \quad (99)$$

Pour le gaz :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} (P S_g) + \frac{\partial}{\partial x} (P u_g) = \phi R T h_V (S_g) (C - k_s P) \quad (100)$$

Pour la concentration d'éléments légers dans l'huile :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} (C S_o) + \frac{\partial}{\partial x} (C u_o) = -\phi h_V (S_g) (C - k_s P) \quad (101)$$

Dans l'équation (100) la pression apparaît par l'expression de la densité du gaz, ce dernier étant considéré comme un gaz parfait.

3.1.4.2. Conditions limites

Les expériences à simuler sont schématiquement : un milieu poreux, de longueur L , saturé en huile, avec ou sans saturation irréductible en eau, que l'on produit par un côté, à un taux ou un débit donné, alors que l'entrée est fermée (Figure 3.23).

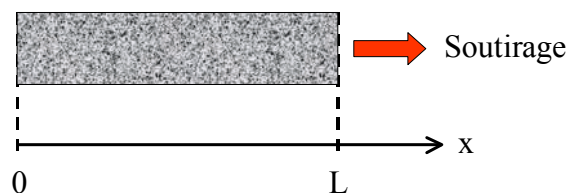


Figure 3.23 : Schéma type des conditions aval et amont d'une expérience de dépressurisation.

On a donc les conditions suivantes :

- En amont : les flux en entrée sont nuls pour le gaz et l'huile, ce qui s'exprime par un gradient de pression nul (loi de Darcy cf. Eq. (97)).

$$\left. \frac{\partial P}{\partial x} \right|_{x=0} = 0 \quad (102)$$

- En aval : pression imposée ou débit imposé.

3.1.4.3. Discrétisation et schéma numérique

Le modèle étant à une dimension, les équations sont discrétisées par la méthode des éléments finis. Le schéma est implicite en temps. L'organigramme du code est représenté Figure 3.24.

Dans ce qui suit les indices i et n sont utilisés respectivement pour l'espace et le temps. Le pas d'espace est noté δx , le pas de temps Δt . Le programme est écrit en FORTRAN, et s'articule en plusieurs sous-routines.

L'équation de conservation pour le gaz, équation (100), permet de calculer la saturation en gaz S_g . La forme discrétisée est :

$$p_i^{n+1} S_{g_i}^{n+1} = p_i^n S_{g_i}^n + \frac{\Delta t}{2} (A_i^{n+1} + A_i^n)$$

avec

$$A_i^k = h_V (S_{g_i}^k) RT (C_i^k - k_s p_i^k) - \frac{(p_i^k u_{g_i}^k - p_{i-1}^k u_{g_{i-1}}^k)}{\delta x} \quad (103)$$

$k = n, n+1$

La saturation en huile est ensuite déduite de S_g .

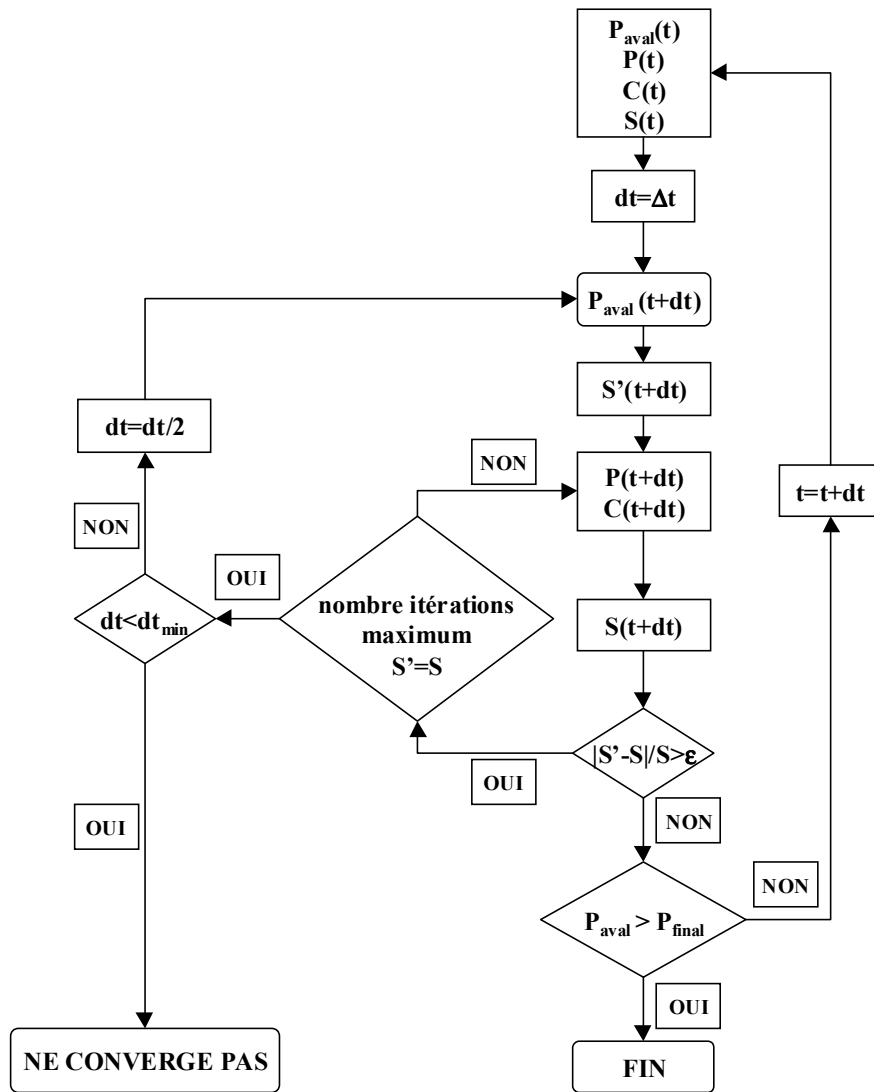


Figure 3.24 : Organigramme général du programme

La pression est calculée par résolution de l'équation bilan pour l'huile (Eq. (99)). $\partial(\rho_o S_o)/\partial t$ est exprimé en fonction de $\partial S_g/\partial t$ à l'aide de l'équation (100). La vitesse de l'huile est exprimée en fonction du gradient de pression avec la loi de Darcy. On obtient alors :

$$(S_g + PS_o c_T) \frac{\partial P}{\partial t} = h_V (S_g) RT (C - k_s P) - \frac{1}{\phi} \frac{\partial}{\partial x} (P u_g) + \frac{1}{\phi \rho_o} \frac{\partial}{\partial x} \left(\rho_o \lambda_o \frac{\partial P}{\partial x} \right) \quad (104)$$

avec la compressibilité isotherme $c_T = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial P}$ et $\lambda_o = \frac{KK_{ro}}{\mu_o}$.

Ce qui donne la forme discrétisée :

$$(S_{g_i}^{n+1} + P_i^{n+1} S_{o_i}^{n+1}) P_i^{n+1} = (S_{g_i}^{n+1} + P_i^{n+1} S_{o_i}^{n+1}) P_i^n + \frac{\Delta t}{2} (A_i^{n+1} + A_i^n) \quad (105)$$

avec

$$A_i^k = h_V (S_{g_i}^k) RT (C_i^k - k_s P_i^k) - \frac{(P_i^k u_{g_i}^k - P_{i-1}^k u_{g_{i-1}}^k)}{\phi \delta x} + \frac{P_i^k}{\rho_{o_i}^k \phi \delta x^2} \left[\rho_{o_i}^k \lambda_{o_i}^k (P_{i+1}^k - P_i^k) - \rho_{o_{i-1}}^k \lambda_{o_{i-1}}^k (P_i^k - P_{i-1}^k) \right] \quad (106)$$

avec $k=n, n+1$.

Enfin la concentration en éléments légers est calculée avec l'équation (101). La forme discrétisée est la suivante :

$$S_{o_i}^{n+1} c_i^{n+1} = S_{o_i}^{n+1} c_i^n + \frac{\Delta t}{2} (A_i^{n+1} + A_i^n) \quad (107)$$

avec

$$A_i^k = h_V (S_{g_i}^k) (C_i^k - k_s P_i^k) - \frac{(C_i^k u_{o_i}^k - C_{i-1}^k u_{o_{i-1}}^k)}{\phi \delta x}, \quad k = n, n+1$$

La convergence se fait sur la saturation en gaz. Le critère ε est fixé à 10^{-3} avec $\varepsilon = |S_g' - S_g| / S_g$, où S_g est la saturation en gaz à la dernière itération et S_g' celle à l'itération précédente. Pour donner le pas temps maximum utilisé, on adimensionne le temps par le rapport entre la pression initiale et le taux de déplétion :

$$t^* = \frac{t P_{ini}}{a} \quad (108)$$

avec $a = \frac{dP_{aval}}{dt}$

où t^* est le temps adimensionné, a est le taux de déplétion, P_{aval} est la pression de sortie et P_{ini} la pression initiale. Le pas de temps maximum utilisé pour les simulations est 10^{-5} . Le nombre de mailles minimum est de 30.

3.1.4.4. Les entrées-sorties du code

Dans ce qui suit les entrées (input) et sorties (output) du code sont énumérées.

a. Input :

- Taux de déplétion i.e. P_{aval} (ou le taux de soutirage i.e. Q_{aval}).
- Échantillon : longueur, section, porosité ϕ , perméabilité absolue K .
- S_{wi} .
- Données "PVT" :
 - densité de l'huile $\rho_o(C)$,
 - viscosité de l'huile $\mu_o(C)$,
 - solubilité du gaz $k_s(C)$,

- viscosité du gaz μ_g ,
- pression de bulle P_b ou concentration initiale C_{ini} en éléments légers.

b. Output :

- Volumes des fluides produits.
- Les champs de saturation, de pression et de concentration.
- Saturation moyenne.

3.1.5. Récapitulatif du modèle

Un schéma du modèle et des paramètres de modélisation est présenté sur la Figure 3.25. Deux points sont importants :

- Les paramètres sont caractéristiques du système roche-fluides étudié. Ils sont donc indépendants des conditions expérimentales de déplétion. Des expériences de dépressurisation peuvent donc être simulées à des taux de déplétion différents avec le même jeu de paramètres.
- Toutes les grandeurs utilisées sont macroscopiques. Elles ont donc un sens que ce soit à l'échelle du réservoir ou à celle d'une carotte, en supposant les milieux homogènes.

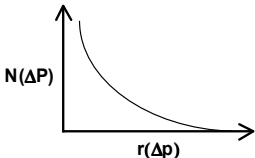
Mécanismes physiques	Modèle	Paramètres indépendants des conditions expérimentales
NUCLEATION		$N(\Delta P)$ $(\beta_{NUCL}; \delta)$ ou $(\beta_{NUCL}; m)$
TRANSFERT DE MASSE (mécanisme hors équilibre)	$h_V(S_g, N)$	D, D_f
ÉCOULEMENT GAZ DISPERSE	S_g^{mob} $u_g(S_g, u_o)$	λ_{mob}^* c, c_{visc}
ÉCOULEMENT PHASES CONTINUES	Darcy $S_{gc}(N_{tot})$	$K_{rg}(S_g), K_{ro}(S_g)$

Figure 3.25 : Schéma récapitulatif des mécanismes physiques, de la modélisation et des paramètres indépendants des conditions expérimentales de déplétion.

3.2. RÉSULTATS

Il y a deux groupes de paramètres : le premier concerne la nucléation (fonction de distribution de taille de sites $N(\Delta P)$) et le transfert de masse (i.e. la fonction h_V) ; le second est lié à l'écoulement du gaz. Pour une série d'expériences à différents taux de soutirage avec un même système roche-fluides, la méthodologie utilisée afin de déterminer les paramètres de calage est la suivante :

- Calage de la fonction de distribution de sites sur deux taux de déplétion. Ici nous ne nous intéressons qu'à la partie des données sans écoulement du gaz. Selon que l'on choisit une loi exponentielle (Eq. (83)) ou puissance (Eq. (84)), le principe est de déterminer les couples $\beta_D \cdot \delta$ ou $\beta_D \cdot m$, et le seuil de sursaturation ΔP_{seuil} . Je rappelle ici que β_D est une constante qui dépend du coefficient de diffusion.
- Détermination des paramètres de mobilisation du gaz : S_g^{mob} , S_{gc} et c la constante de proportionnalité dans l'expression de la vitesse de gaz (Eq. (95)).

Dans cette partie, deux séries de simulations sont présentées. Dans un premier temps les deux seuils en saturation, S_g^{mob} et S_{gc} , sont des paramètres ajustables. Un premier paragraphe présente les résultats obtenus ainsi que les effets des différents paramètres propres à la fonction de transfert h_V : loi de distribution, seuil minimum de sursaturation et puissance d ($d=2/D_f$, D_f dimension fractale). Le fait que S_g^{mob} et S_{gc} soient ajustables rend le modèle peu prédictif. Il faut donc être capable de les déterminer pour l'ensemble des taux de déplétion. Le second paragraphe montre les résultats obtenus en introduisant un même paramètre de mobilisation, λ_{mob}^* , permettant de calculer S_g^{mob} .

Rappel des définitions utilisées pour les seuils de saturation en gaz :

- Le S_g^{mob} est défini comme la saturation critique à partir de laquelle le gaz peut s'écouler sous forme dispersée.
- Le S_{gc} est défini comme la saturation critique correspondant à la formation d'une phase continue dans une "approche de Darcy".
- Expérimentalement le S_{gc} est le plus souvent défini comme la saturation en gaz correspondant au début de production du gaz. Donc entre le modèle et les expériences, le S_g^{mob} et le S_{gc} sont comparables.

3.2.1. Les seuils de mobilisation du gaz (S_g^{mob} et S_{gc}) sont des paramètres ajustables

3.2.1.1. Huile légère

Une première série de simulations a été faite sur les expériences de dépressurisation à taux de déplétion constant de Moulu & Longeron [Moulu 1989a, Moulu 1989b]. L'huile est un mélange ternaire C_1 - C_3 - C_{10} , dont la composition molaire est : 20 % C_1 , 45 % C_3 , 45 % C_{10} .

Les données relatives aux propriétés de l'huile, à l'échantillon et aux conditions expérimentales sont rappelées dans le Tableau 3.2. Les expériences ont été réalisées pour quatre taux de déplétion différents : 0.03 bar.j^{-1} , 0.22 bar.j^{-1} , 1.90 bar.j^{-1} , 5.00 bar.j^{-1} .

Tableau 3.2 : Données des expériences de Moulu-Longeron

Longueur échantillon (cm)	5
Diamètre échantillon (cm)	5
Perméabilité à l'air (D)	0.211
Porosité (%)	29.3
Pression de saturation (bar)	28.44
Température (°C)	37.8
Coefficient de diffusion ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)	$3 \cdot 10^{-9}$
Tension interfaciale (N.m^{-1})	$11.4 \cdot 10^{-3}$

a. Loi de distribution de taille de sites :

Modèle de Yang :

Dans un premier temps il faut caler la fonction de transfert. Pour cela nous nous intéressons aux débuts des courbes expérimentales, sans introduire l'écoulement du gaz. Le modèle de Yang est d'abord utilisé pour modéliser la nucléation avec $d = 2/3$ (Eq. (75)), cette valeur correspond au cas de bulles sphériques. Ceci est une simplification afin de fixer un paramètre dans une première approche. Les différents paramètres ont été calés sur les expériences à plus fort et plus faible taux de déplétion. Les valeurs obtenues sont : $\delta = 5 \text{ bars}$, $\beta_D = 1.1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, et une sursaturation minimum de 0.5 bar. Cette sursaturation minimum correspond à un rayon de l'ordre de $0.45 \mu\text{m}$ ($\sim \frac{2\gamma}{\Delta P_{\text{seuil}}}$).

La Figure 3.26 montre l'évolution de la saturation en gaz en fonction de la pression de sortie pour différents taux de déplétion. Comme cela a été observé par un grand nombre d'auteurs, plus le taux de déplétion augmente plus le retard à l'équilibre augmente [Firoozabadi 1996, Kortekaas 1991, Moulu 1989a, Moulu 1989b, Scherpenisse 1994]. Ceci s'explique par l'augmentation de la sursaturation maximum avec le taux de déplétion Figure 3.27. La sursaturation est l'écart entre la concentration à une pression donnée et la concentration d'équilibre à cette même pression : $(C - C_{\text{eq}})$ avec $C_{\text{eq}} = k_s P$ (cf. § 3.1.2). Sur la Figure 3.27, la sursaturation est exprimée par l'écart entre la pression d'équilibre et la pression, $\Delta P = (C - C_{\text{eq}}) / k_s$. Cet écart à l'équilibre dépend donc de la diminution de C par diffusion

vers les bulles, et de la diminution de C_{eq} par décroissance de la pression. Le premier processus tend à rétablir l'équilibre, le second tend à augmenter l'écart. Donc, en négligeant le transfert de masse par convection et pour un même coefficient de diffusion, la sursaturation maximum augmente lorsque le taux de déplétion augmente.

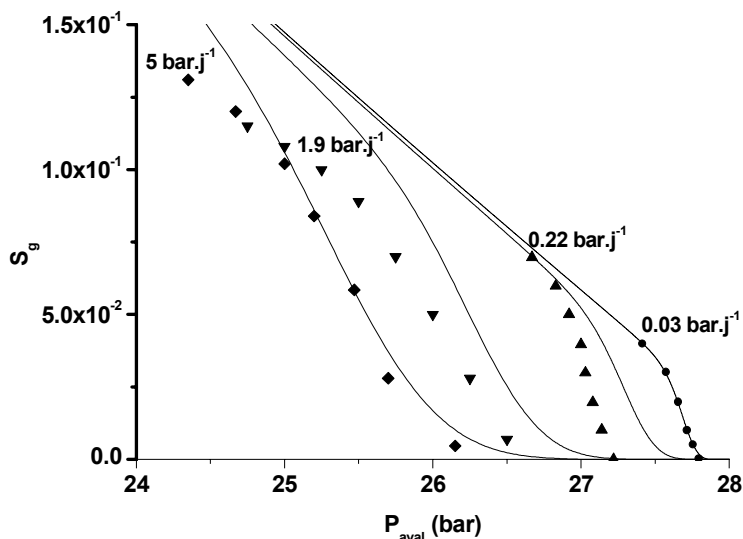


Figure 3.26 : Simulations des expériences de Moulu et Longeron sans mobilisation du gaz et une distribution de taille de sites en loi exponentielle (modèle de Yang) : \blacklozenge expériences, — simulations.

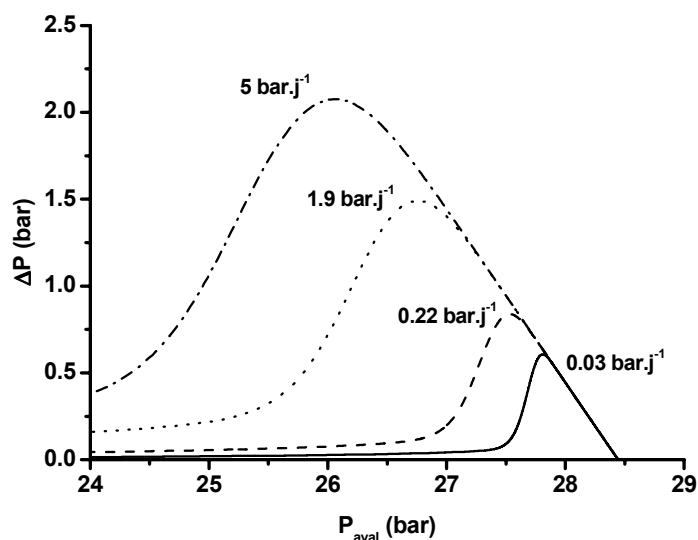


Figure 3.27 : Évolution de la sursaturation en fonction de la pression pour les expériences de Moulu et Longeron (valeurs calculées).

Remarque : Les simulations montrent que si le gaz reste piégé, la saturation tend vers la droite d'équilibre PVT (Figure 3.26). Cela se comprend car sans écoulement du gaz, le système équivaut à une expérience hors milieu poreux servant à déterminer les courbes d'équilibre thermodynamique.

La formulation de la vitesse de gaz discontinu a été discutée dans le paragraphe (3.1.3.1). Nous rappelons la forme générale implémentée dans le simulateur :

$$u_g = c(S_g - S_g^{\text{mob}})u_o \quad (109)$$

où c est une constante.

La Figure 3.28 présente les simulations des expériences de Moulu & Longeron avec mobilisation du gaz. Les paramètres utilisés sont les mêmes que pour la section précédente seule S_g^{mob} est ajusté pour chaque taux de déplétion.

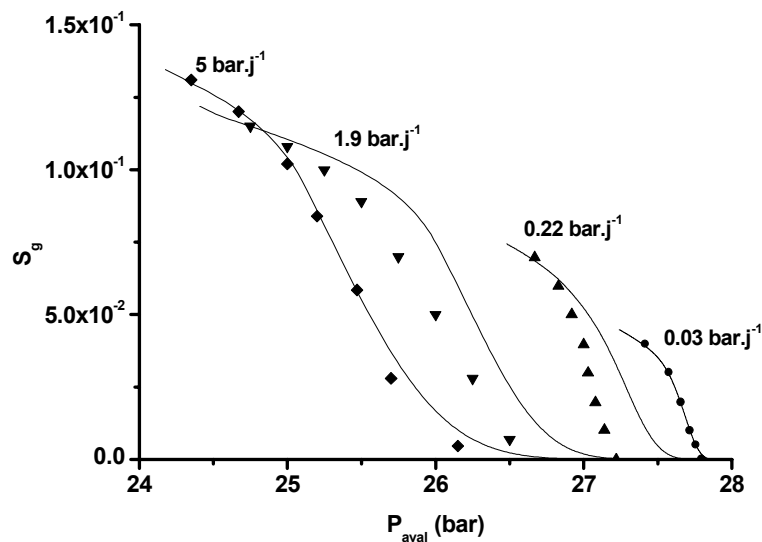


Figure 3.28 : Simulations des expériences de Moulu et Longeron avec mobilisation du gaz et une distribution de taille de sites en loi exponentielle (modèle de Yang) : \blacklozenge expériences, — simulations.

Le Tableau 3.3 présente les valeurs de S_g^{mob} utilisées. On remarque ici que S_g^{mob} , tout comme le S_{gc} expérimental, augmente avec le taux de déplétion. Ce résultat se comprend très bien si l'on regarde la compétition des forces capillaires et visqueuses (§ 3.1.3.1). En effet, le volume seuil S_g^{mob} rend compte de la taille des N_0 bulles, leur taille moyenne étant fonction de S_g/N_0 . Quand le taux de déplétion augmente, N_0 aussi, donc pour une même saturation S_g la taille moyenne des amas diminue. Ou à l'inverse, pour une même taille, la saturation en gaz correspondante augmente avec le taux de déplétion. Pour qu'il y ait mobilisation des amas gazeux, il faut que ceux-ci aient une taille minimum. Donc pour atteindre une même taille critique, il faut entrer un S_g^{mob} qui augmente avec le taux de déplétion.

Tableau 3.3 : Valeurs de S_g^{mob} en fonction du taux de déplétion.

dP/dt (bar/jour)	S_g^{mob} (%)	S_{gc} (%) expérimentale
0.03	3.25	6.6
0.22	6	8.1
1.9	7.5	9.5
5	9.5	12

Loi puissance :

Les simulations précédentes ont été réalisées avec le modèle de Yang pour décrire la distribution de taille de sites. Ce premier choix vient des bonnes corrélations obtenues par d'autres auteurs entre l'expérience et ce modèle [El Yousfi 1992, El Yousfi 1991, El Yousfi 1997, Yang 1988]. Afin de déterminer si la forme de cette distribution est importante, une loi puissance a été testée (Eq. (84)) [Wang 1993a, Wang 1993b]. Les simulations sont réalisées avec la même méthodologie. Les constantes sont déterminées en calant les deux expériences extrêmes. Les paramètres obtenus sont : $m = 3.1$ et $\beta_D = 2.5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (pour des pressions exprimées en bars) et $\Delta P_{seuil} = 0.5 \text{ bar}$.

La Figure 3.29 montre le résultat des simulations, celles-ci sont tout aussi acceptables que celles réalisées avec le modèle de Yang. Sur la Figure 3.30, on peut remarquer qu'il y a peu de différences entre les deux distributions, si ce n'est une légère amélioration vis à vis de la courbe à 1.9 bar.j^{-1} avec la loi puissance. Nous verrons dans le second paragraphe que le choix de la loi de distribution devient crucial lorsque le S_g^{mob} est déterminé par le modèle.

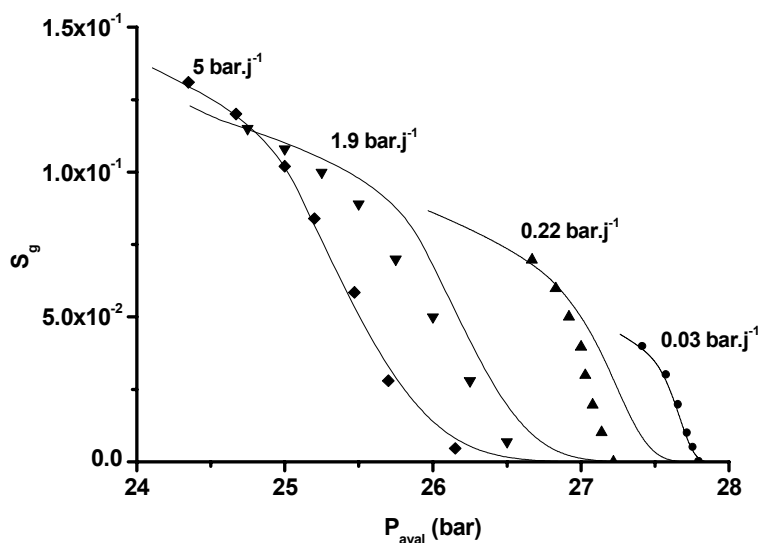


Figure 3.29 : Simulations des expériences de Moulu et Longeron avec mobilisation du gaz et une distribution de taille de sites en loi puissance : $\blacklozenge \blacktriangle \bullet$ expériences, — simulations.

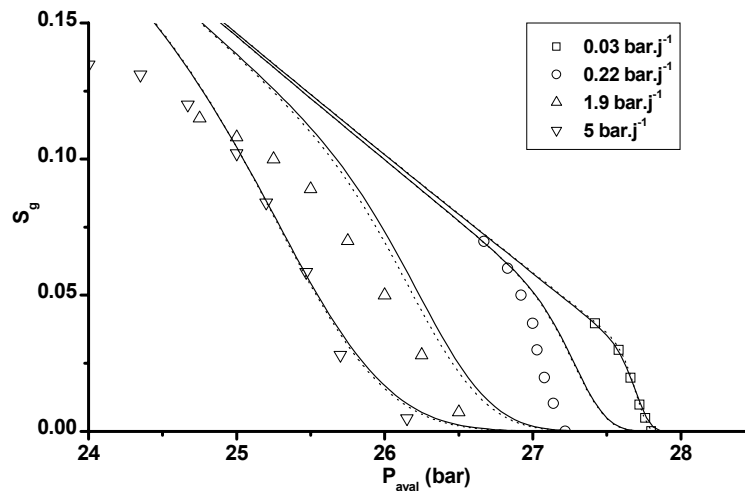


Figure 3.30 : Différences entre les deux types de distributions pour la simulation des expériences de Moulu & Longeron sans écoulement du gaz : - loi puissance, ... modèle de Yang.

b. Mobilisation du gaz :

Dans les simulations précédentes le gaz est supposé s'écouler sous forme dispersée. La constante dans l'expression de la vitesse du gaz est $c=5 \cdot 10^3$. Néanmoins, si l'on suppose que le gaz s'écoule sous forme continue, et que l'on utilise les valeurs des S_g^{mob} pour les S_{g_c} , on obtient les mêmes résultats. La perméabilité relative au gaz est la même pour l'ensemble des taux de déplétion et n'est pas particulièrement faible (Tableau 3.4).

Tableau 3.4 : Perméabilités relatives (Forme analytique Eq. (96)) utilisées pour la simulation des expériences de Moulu & Longeron.

K_{ro}^0	1
K_{rg}^0	0.5
n_0	2
n_g	2
S_{or}	0.3

Nous avons vu dans le premier chapitre (§ 1.3.2.1.a) que pour simuler l'ensemble de la production de gaz à l'aide d'un simulateur classique il faut entrer des pseudo-perméabilités relatives très faibles et dépendantes du taux de déplétion. Cela s'explique par le fait que ces simulateurs ne prennent pas en compte l'aspect hors équilibre, ni l'écoulement du gaz sous forme dispersée.

Puisque l'aspect hors équilibre est pris en compte par la fonction de transfert h_V et que la pseudo-perméabilité relative utilisée est la même pour tous les taux de déplétion, on peut supposer qu'il s'agit d'une perméabilité relative au sens de Darcy. Cela sous-entend, dans le cas de ces expériences, que le gaz peut se connecter rapidement et s'écouler sous forme continue. On ne peut donc pas conclure, en fonction des simulations, si le gaz s'écoule sous forme continue ou dispersée.

Nous verrons que pour les huiles lourdes, la partie qui est modélisée comme l'écoulement d'une phase dispersée ne peut être simulée par une phase continue, à moins d'introduire une pseudo-perméabilité relative au gaz extrêmement faible.

c. Le seuil de sursaturation :

Ce seuil, noté ΔP_{seuil} , est la sursaturation minimum pour qu'il y ait nucléation, c'est-à-dire activation des bulles préexistantes ayant la taille maximum (cf. § 3.1.1.4). C'est donc une caractéristique du système. Afin de déterminer si c'est un paramètre critique dans l'interprétation des expériences, plusieurs simulations ont été réalisées avec différentes valeurs de ΔP_{seuil} pour chacune des lois de distribution. Les valeurs des couples β_D - δ et β_D - m sont gardées identiques à celles obtenues précédemment pour $\Delta P_{\text{seuil}}=0.5$ bar :

$$\beta_D = 1.1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \text{ et } \delta = 5 \text{ bar}$$

$$\beta_D = 2.5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ et } m = 3.1$$

Les résultats obtenus avec le modèle de Yang pour trois valeurs de seuil sont présentés sur la Figure 3.31, ceux obtenus avec une loi puissance pour deux ΔP_{seuil} sont présentés sur la Figure 3.32. Les tailles de sites maximums qui correspondent à ces seuils ($\gamma=11.4 \cdot 10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$) sont :

$$\Delta P_{\text{seuil}} = 0.5 \text{ bar} \rightarrow r_0 = 0.45 \text{ } \mu\text{m}$$

$$\Delta P_{\text{seuil}} = 0.75 \text{ bar} \rightarrow r_0 = 0.3 \text{ } \mu\text{m}$$

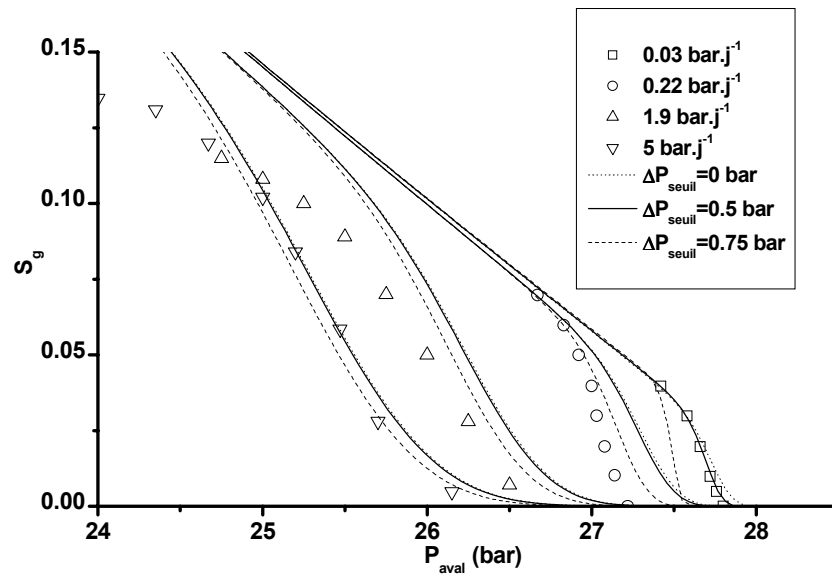


Figure 3.31 : Effet du seuil minimum de sursaturation. Simulations réalisées avec le modèle de Yang pour trois ΔP_{seuil} : 0 bar, 0.5 bar, 0.75 bar.

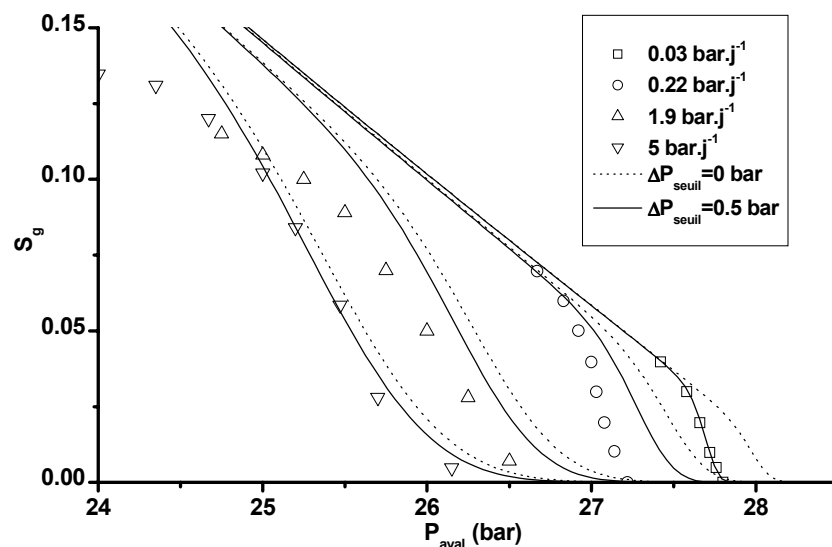


Figure 3.32 : Effet du seuil minimum de sursaturation. Simulations réalisées avec la loi puissance pour deux ΔP_{seuil} : 0 bar et 0.5 bar.

Sur la Figure 3.31 on remarque que le seuil de 0.75 bar est trop grand, puisque pour l'expérience à 0.03 bar.j^{-1} cela retarde trop la production. Ceci implique que les premiers sites de nucléation doivent être plus grands que $0.3 \mu\text{m}$.

Remarque : Par contre, le calage de l'expérience à 0.22 bar.j^{-1} tend à être meilleur. La taille maximum des sites dépend non seulement des caractéristiques du système roche-fluides, mais également de la mise en place des fluides dans le milieu poreux (cf. § 3.1.1.4 [Bankoff 1958, Cole 1974, Jones 1999a, Wang 1993a]). Ce qui veut dire qu'entre deux expériences ce seuil peut être différent.

Considérons maintenant les seuils de 0 et 0.5 bar pour les deux types de distribution (Figure 3.31 et Figure 3.32). On remarque que l'effet du seuil est bien plus important avec la loi puissance sur l'ensemble des expériences (Figure 3.32). Cela s'explique par le fait que la distribution avec la loi puissance augmente bien plus rapidement avec la sursaturation que le modèle de Yang (Figure 3.33).

D'autre part l'effet du seuil s'accroît vers les faibles taux de déplétion. Ceci est dû au fait que la sursaturation maximum diminue avec le taux de déplétion (Figure 3.27), donc l'effet du seuil relatif à celle-ci augmente. Par exemple, un seuil de 0.5 bar pour une expérience où la sursaturation est au plus de 0.5 bar (cas de l'expérience à 0.03 bar.j^{-1}) a forcément plus d'impact que si la sursaturation maximum atteinte est 5 bars. Ce point est important, car lorsque l'on simule une expérience en condition laboratoire on peut conclure que le seuil est négligeable. Or si l'on se place en conditions réservoir, les taux de déplétion sont souvent bien plus faibles. On peut donc faire une erreur sur la prédiction des productions en début de déplétion. Par exemple, si nous simulons une expérience avec un taux de déplétion proche de ce que l'on a sur champs 0.01 bar.^{-1} ($\sim 3.65 \text{ bar par an}$), on peut voir sur la Figure 3.34 que le seuil est loin d'être négligeable.

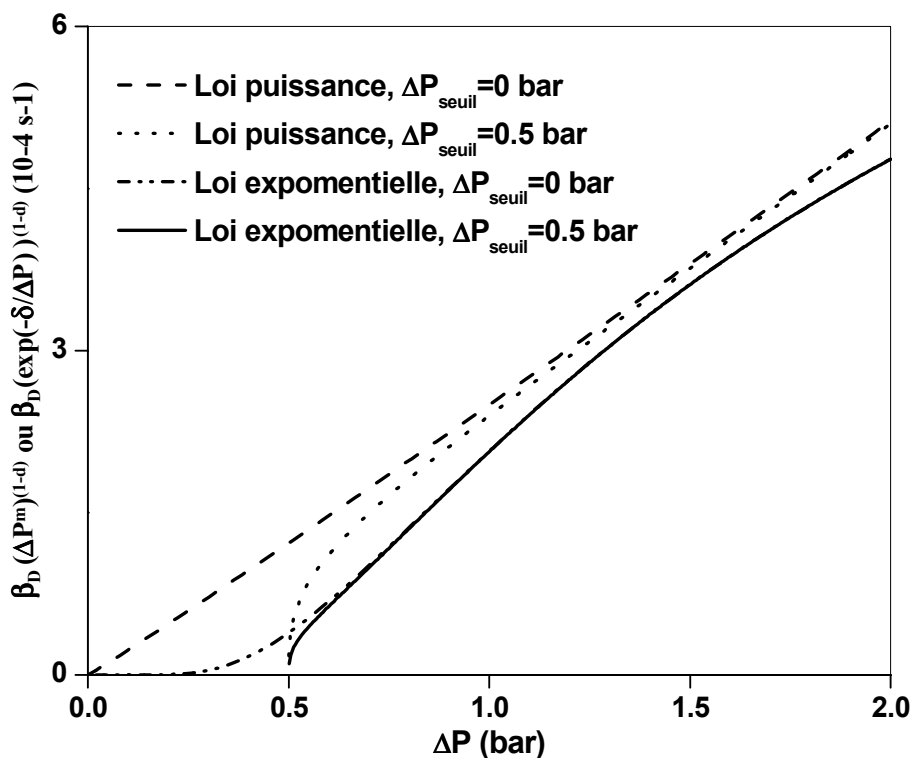


Figure 3.33 : Effet du seuil de sursaturation sur la distribution de taille de sites.

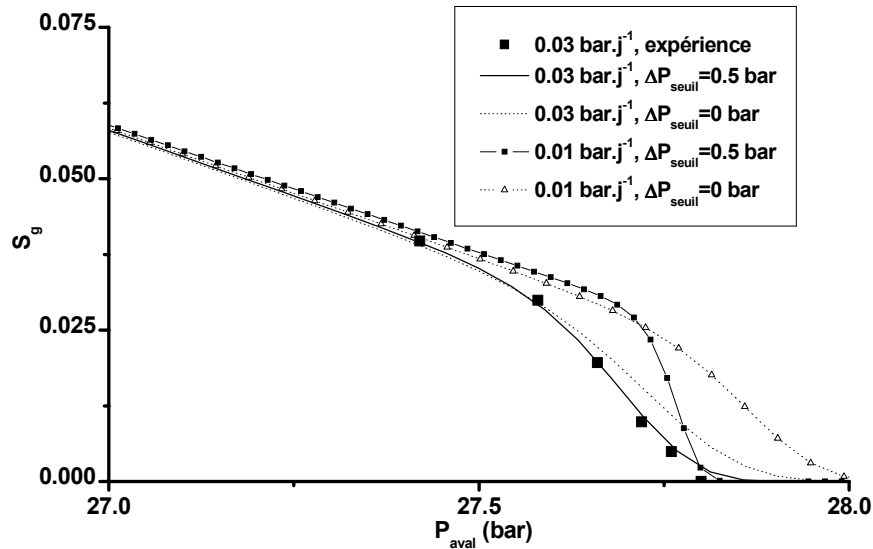


Figure 3.34 : Effet du seuil de sursaturation aux faibles taux de déplétion. Simulations réalisées avec la loi de distribution exponentielle.

d. Pris en compte de l'aspect fractal :

Dans les expressions de la fonction de transfert (Eq. (83) et (84)), d est une puissance qui rend compte de la surface d'échange entre le liquide et une bulle de gaz, $d = \frac{2}{D_f}$ où D_f est la dimension fractale. Dans le cas d'une bulle non fractale sphérique D_f vaut 3 (dimension euclidienne). Jusqu'ici nous avons assimilé l'ensemble des bulles à une population de sphères, $d=2/3$. En milieu poreux les bulles ne peuvent plus être sphériques une fois qu'elles ont atteint la taille des pores. Une série de simulations, avec la loi puissance, a été effectuée en ajustant la puissance d en plus des paramètres précédents. Le meilleur résultat est obtenu pour $d = 0.725$ qui correspond à une dimension fractale de 2.75 (Figure 3.35). L'ensemble des paramètres est récapitulé dans le Tableau 3.5.

Tableau 3.5 : Paramètres d'ajustements obtenus avec une loi puissance pour différentes valeurs pour la dimension fractale D_f .

d	D_f	β_D (s^{-1})	m	ΔP_{seuil} (bar)
2/3	3	$2.4 \cdot 10^{-4}$	3.1	0.5
0.725	2.75	$4.5 \cdot 10^{-4}$	2.9	0.5
0.8	2.5	$4.5 \cdot 10^{-4}$	6.4	0.4

La valeur obtenue est proche de ce qu'El Yousfi trouve lors d'observations en micromodèles pour une huile légère [El Yousfi 1992]. Cette valeur 2.25 est intermédiaire entre la dimension euclidienne, 3, et celle d'un amas de percolation à trois dimensions, 2.53 [Du 1999, Li 1995a].

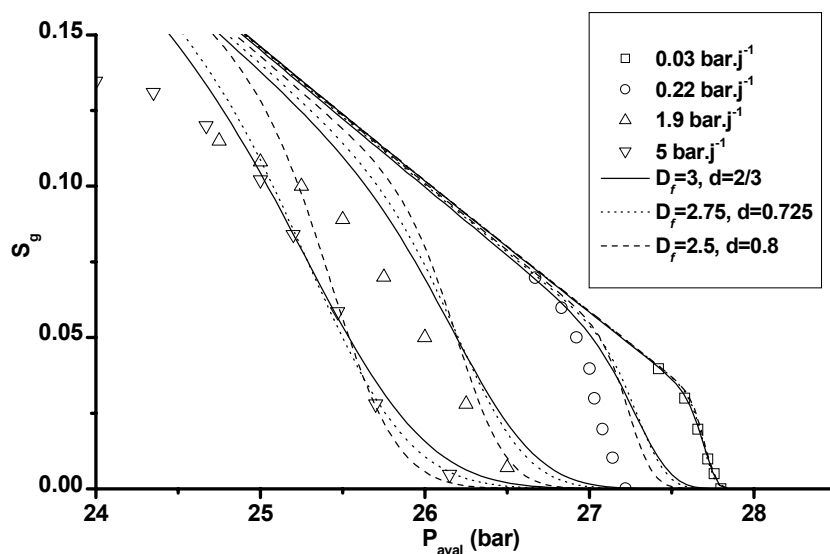


Figure 3.35 : Effet de la puissance d pour trois valeurs, simulations réalisées avec la loi puissance.

3.2.1.2. Huiles lourdes

Le paragraphe précédent présentait les résultats des simulations des expériences de déplétion avec une huile légère de Moulu et Longeron [Moulu 1989a, Moulu 1989b]. Nous allons nous intéresser maintenant au cas des huiles lourdes. Dans ce qui suit, deux séries de simulations sont présentées. Ce sont des expériences réalisées au *Petroleum Recovery Institute* à Calgary Canada (PRI) et des expériences réalisées dans le cadre d'un contrat ARTEP (contrat de recherche entre Total, Elf, IFP et Gaz de France) par Elf et Total (maintenant TotalFinaElf).

a. Les expériences du PRI [Maini 1999a, Maini 1995] :

Maini & al ont réalisé une série d'expériences à taux de déplétion constants avec différentes huiles. L'intérêt est de pouvoir tester le modèle pour deux huiles différentes sur un même milieu poreux. Le milieu est un sable non-consolidé dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau 3.6. Rappelons que dans le cas d'un milieu non-consolidé un processus de décompaction s'ajoute au processus de *Solution Gas Drive*, favorisant la production d'huile (cf. chap. 1).

Tableau 3.6 : Caractéristiques du milieu poreux pour les expériences du PRI
[Maini 1999a, Maini 1995].

Longueur échantillon (m)	2
Surface de la section (m ²)	16.1 10 ⁻⁴
Perméabilité à l'air (D)	3.33
Porosité (%)	33
Taille des grains (Mesh)	140-200

Les auteurs ont utilisé six huiles différentes, les simulations ne concernent que deux de ces fluides :

- Un brut d'Hamaca d'origine vénézuélienne saturé en méthane à 70 bars avec un GOR de solution de 16.5 vol/vol. Les tests sont réalisés à 67 °C. Dans ces conditions la densité de l'huile non saturée est 0.976 g.ml⁻¹ et sa viscosité est de 3.3 Pa.s. Le brut saturé a une viscosité de 0.75 Pa.s.
- Un brut de Boscan d'origine vénézuélienne saturé en gaz réservoir à 70 bars (en plus du méthane : 0.8 % d'azote, 3.9 % d'éthane, 1.2 % de CO₂, 4.7 % de propane, 1.9 % de butane), avec un GOR de solution de 19.7 vol/vol. Les tests sont réalisés à 77 °C, dans ces conditions la densité de l'huile non saturée est 0.973 g.ml⁻¹ et sa viscosité est de 0.56 Pa.s. Le brut saturé a une viscosité de 295 mPa.s.

Les simulations portent sur trois expériences avec l'huile de Boscan (8.75 bar.j⁻¹, 28 bar.j⁻¹, 53.85 bar.j⁻¹) et deux expériences avec l'huile d'Hamaca (8.75 bar.j⁻¹ et 70 bar.j⁻¹). Le modèle de Yang a d'abord été utilisé. Les résultats des simulations pour l'huile de Boscan sont présentés sur la Figure 3.36. Les paramètres β_D et δ de l'équation sont calés sur les expériences au plus fort et au plus faible taux de déplétion, les valeurs obtenues sont : $\beta_D=5 \cdot 10^{-3}$ et $\delta=4$ bars. Les seuils de saturation, S_g^{mob} et S_{gc} , sont récapitulés dans le Tableau 3.7.

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

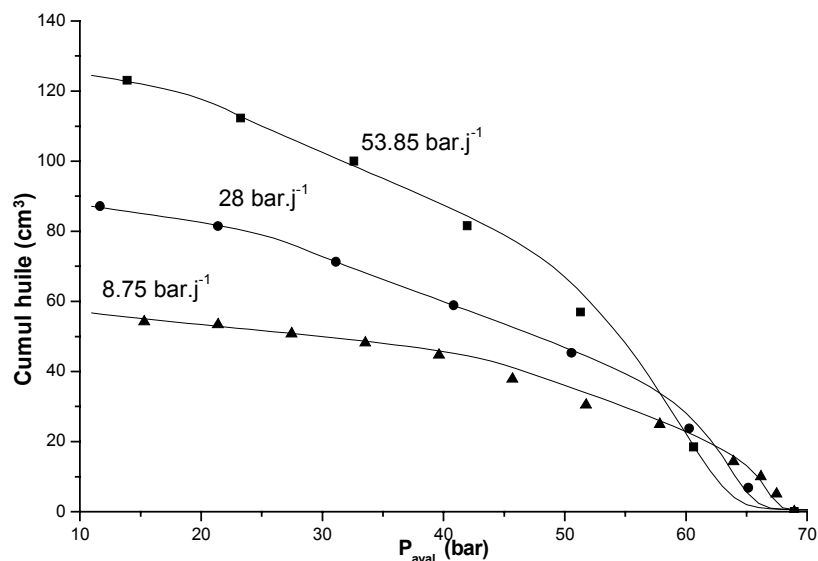


Figure 3.36 : Simulations des expériences de dépressurisation réalisées au PRI avec l'huile de Boscan [Maini 1999a, Maini 1995].

Tableau 3.7 : Valeurs de S_g^{mob} et S_{gc} en fonction du taux de déplétion.

dP/dt (bar/jour)	S_g^{mob} (%)	S_{gc} (%)
BOSCAN		
8.75	0.50	3.50
28.00	1.85	6.60
53.85	5.00	10.25
HAMACA		
8.75	1.90	2.75
70.00	13.00	-

Le modèle est ensuite utilisé avec le même couple β_D et δ pour les deux expériences avec l'huile d'Hamaca. Les résultats des simulations sont présentés sur la Figure 3.37. On remarque que la corrélation avec l'expérience est satisfaisante. Dans la partie consacrée à la modélisation (§ 3.1), nous avons vu que la loi de distribution de taille de sites était une caractéristique du système roche-fluides. Ces résultats montrent que la distribution de taille de sites n'est pas très sensible à la nature de l'huile pour ces expériences. Ce point est encourageant dans une optique de généralisation des résultats à d'autres systèmes.

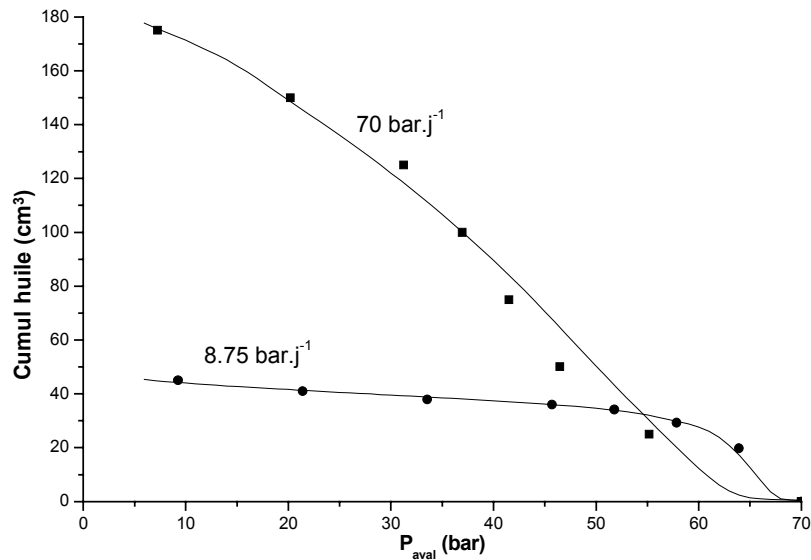


Figure 3.37 : Simulations des expériences de dépressurisation réalisées au PRI avec l'huile de d'Hamaca [Maini 1999a, Maini 1995].

Effet de la viscosité sur la vitesse du gaz :

Si l'on s'intéresse maintenant à l'écoulement du gaz, pour obtenir des résultats satisfaisants il a fallu non seulement ajuster pour chaque huile les valeurs critiques en gaz (Tableau 3.7), mais également la constante de proportionnalité dans l'expression de la vitesse (Eq. (95)). Pour le brut de Boscan $c=250$ alors que pour celui d'Hamaca $c=750$.

Plusieurs travaux ont montré que la vitesse de ganglions dépendait du rapport des viscosités en plus du nombre capillaire [Dias 1986, Egbogah 1985, Egbogah 1981, Valavanides 1998]. Les viscosités des deux huiles étant différentes il y a peut être un tel effet.

Si l'on introduit dans l'expression de la vitesse du gaz le rapport des viscosités, $\kappa = \frac{\mu_o}{\mu_g}$, tel

que :

$$u_g = c_{\text{visc}} \kappa (S_g - S_g^{\text{mob}}) u_o \quad (110)$$

Alors on obtient des simulations tout aussi satisfaisantes pour les deux huiles, avec la même expression pour la vitesse, i.e. même constantes c_{visc} . Bien que les gaz soient différents, leurs viscosités sont supposées identiques. Le calage est obtenu pour le même couple β_D et δ , avec $c_{\text{visc}}=5.10^{-3}$. Les valeurs des S_g^{mob} et des S_{gc} sont données dans le Tableau 3.8.

Tableau 3.8 : Valeurs de S_g^{mob} et S_{gc} en fonction du taux de déplétion.

dP/dt (bar/jour)	S_g^{mob} (%)	S_{gc} (%)
BOSCAN		
8.75	0.50	3.50
28.00	2.50	6.60
53.85	5.50	10.25
HAMACA		
8.75	1.90	2.75
70.00	13.50	-

Effet physico-chimique :

Pour un même taux de déplétion, 8.75 bar.j^{-1} , les seuils sont différents selon l'huile utilisée. L'huile d'Hamaca présente des S_g^{mob} plus importants, or le milieu poreux est le même et c'est l'huile la plus visqueuse. Le gradient visqueux pour cette huile doit donc être plus grand. On pourrait alors s'attendre à ce que l'huile d'Hamaca présente des S_g^{mob} plus faibles que l'huile de Boscan.

Les deux huiles n'ayant pas la même composition chimique (concentration en asphaltènes, en résines, etc.), on peut supposer que les tensions interfaciales sont différentes. D'autant que dans le chapitre précédent il a été montré que la composition en asphaltènes et en résines avait un impact sur les propriétés de surface. Au quel cas, les effets capillaires peuvent être différents entre les deux huiles alors que le milieu est le même. Le S_g^{mob} rend donc compte des propriétés physico-chimiques de l'huile. Les tensions interfaciales ne sont pas données dans les publications.

Le modèle ne fait intervenir que des grandeurs macroscopiques, donc tout effet physico-chimique se traduira par un paramètre macroscopique, ici le S_g^{mob} . Par exemple, dans une "approche de Darcy" on ne peut expliciter les angles de mouillage, par contre la courbe de pression capillaire permet de rendre compte de la mouillabilité.

Les perméabilités relatives :

Comme cela a été expliqué dans le premier chapitre (cf. § 1.2.1) et rappelé dans le paragraphe précédent (cf. § 3.2.1.1 Mobilisation du gaz : p. 117), lorsque des expériences de déplétion d'huiles lourdes sont interprétées à l'aide de simulateurs classiques, l'écoulement du gaz est simulé par une pseudo-perméabilité relative $\langle K_{rg} \rangle$ extrêmement faible et qui doit être ajustée pour chaque taux de déplétion. Ceci vient du fait que ces simulateurs ne prennent pas en compte l'aspect hors équilibre ni l'écoulement du gaz sous forme dispersée.

Les simulations indiquent que si l'écoulement du gaz est considéré sous deux formes, dispersée puis continue, alors les expériences peuvent être interprétées avec la même vitesse pour le gaz dispersé et la même perméabilité relative pour l'ensemble des taux de déplétion. De plus, la forme de la perméabilité relative au gaz est proche de ce qui est obtenu pour des

expériences de déplacement classiques. En effet, les valeurs des exposants de Corey et des constantes (Eq. (3)) ne sont pas extrêmes (Tableau 3.9). C'est un résultat important car il indique que lorsque le gaz devient continu ce n'est pas une pseudo-perméabilité relative que l'on utilise mais bien une perméabilité relative, mesurable expérimentalement avec une expérience de déplacement.

D'autre part, le modèle confirme les résultats obtenus avec les simulateurs classiques. En effet si l'ensemble de la production de gaz est simulé par l'écoulement d'une phase continue, alors il faut introduire une pseudo-perméabilité relative très faible, de l'ordre de 10^{-4} , et qui doit être ajustée pour chaque taux de déplétion.

Tableau 3.9 : Valeurs des paramètres utilisés pour les perméabilités relatives.

	Boscan	Hamaca
K_{ro}^0	0.5	0.55
K_{rg}^0	1	1
n_0	2	2
n_g	2	2
S_{0r}	0.4	0.4

Effet de la distribution de sites :

La distribution de tailles de sites de type puissance, donne les paramètres suivant : $\beta_D=10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et $m = 5$. Il n'y a pas de réelle amélioration, raison pour laquelle la figure n'est pas présentée. D'autre part, à la différence du mélange ternaire, la sursaturation minimum n'a pas d'effet sur les simulations, tout du moins pour des valeurs qui ont un sens physique, c'est-à-dire de l'ordre de 0.5 bar. Comme nous l'avons vu (§ 3.2.1.1), ceci peut s'expliquer par le fait que les taux de déplétion sont relativement forts. Avec le mélange ternaire, le seuil de sursaturation commençait à ne plus être négligeable pour des taux inférieurs à $\sim 0.01 \text{ bar.j}^{-1}$.

b. Les expériences ARTEP :

Dans le cadre du projet ARTEP "Production froide des huiles lourdes", des expériences de dépressurisation ont été effectuées à différents taux de déplétion : une série 1 à 0.8 et 8 bar.j^{-1} , et une série 2 à 0.5, 12 et 25 bar.j^{-1} [Bayon 2002, Urgelli 1999].

Le schéma général du dispositif est représenté Figure 3.38. Il est composé d'un bloc cylindrique de grés, afin d'éviter les effets de décompactions que l'on pourrait observer avec un milieu non consolidé. Le milieu est saturé avec une huile recombinaisonnée, après la mise en place d'une saturation en eau irréductible S_{wi} de 18.7 % (série 1), 15 % (série 2). La composition du gaz en pourcentage de moles est donnée dans le Tableau 3.10.

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

Tableau 3.10 : Composition du gaz utilisé pour les expériences ARTEP.

	%
C ₁	89.29
CO ₂	9.66
C ₂	0.49
C ₃	0.09
nC ₄	0.15
nC ₅	0.32

Tableau 3.11 : Caractéristiques du système roche-fluides pour les deux séries d'expériences ARTEP.

	série 1	série 2
Longueur du bloc (cm)	91.2	66.8
Diamètre (cm)	5.0	6.8
Porosité (%)	21.6	16.0
Perméabilité (mD)	630	850
Viscosité de l'huile saturée (mPa.s)	308	1360
Pression de saturation (bar)	52	50
Swi	0.18	0.15

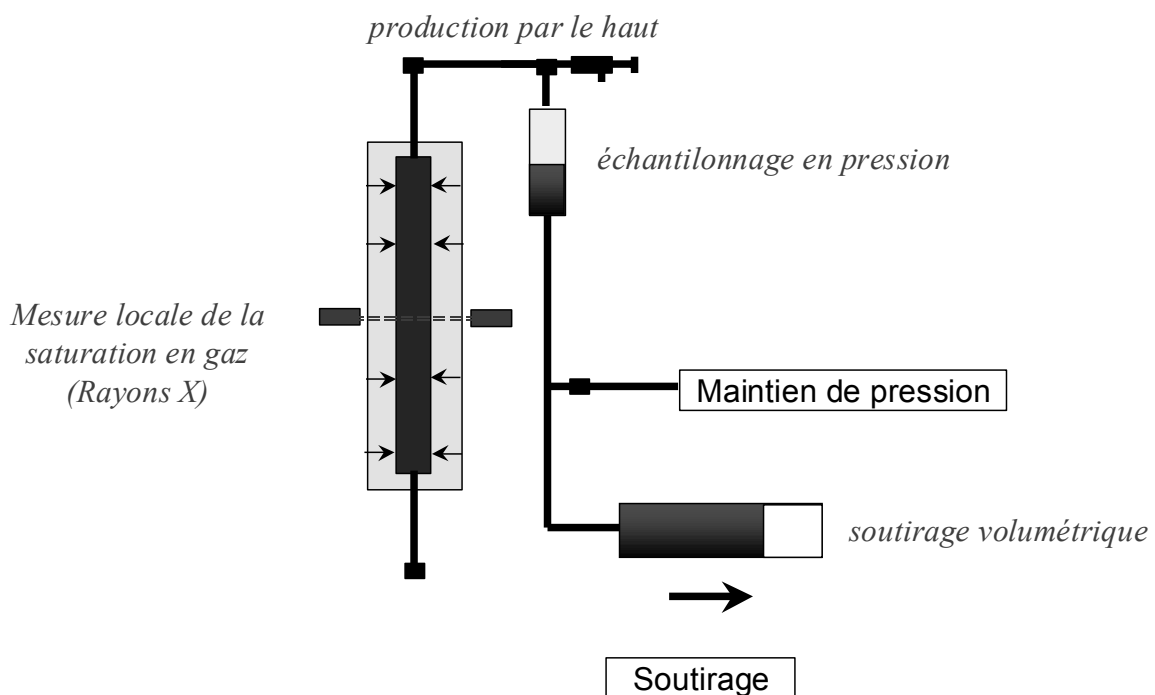


Figure 3.38 : Schéma du dispositif utilisé pour la série 1.

Les expériences sont toutes réalisées à 49 °C, les caractéristiques des milieux poreux et des huiles sont présentées dans le Tableau 3.11.

Expériences Elf : Pour les expériences à 8 bar.j⁻¹ et 0.8 bar.j⁻¹, le fluide est soutiré par le haut, le bas étant fermé. La saturation est mesurée par absorption de rayons X. Ces expériences montrent une très bonne récupération pour un mécanisme de production primaire : ~ 20 % pour l'expérience à 0.8 bar.j⁻¹ et ~ 35 % pour celle à 8 bar.j⁻¹. On observe une forte

saturation en gaz qui continue à augmenter après la percée du gaz, ce qui favorise une production diphasique.

Expériences Total : C'est le même type d'expériences pour trois taux de déplétion, 0.5, 12 et 25 bar.j⁻¹ (Urgelli *et al.* [Urgelli 1999]). Les auteurs ne mesurent pas la saturation en gaz, mais ils étudient l'effet de la gravité en effectuant des mesures avec l'échantillon vertical ou horizontal. Les auteurs observent l'influence de la gravité sur la production. Le S_{gc} ne dépend, par contre, que du taux de déplétion. Les expériences à 12 et 25 bar.j⁻¹ ont été réalisées à l'horizontale, celle à 0.5 bar.j⁻¹ a été faite à la verticale en produisant d'abord par le haut puis par le bas.

Remarque : Les deux séries d'expériences ont été normalement réalisées avec la même huile gisement, pourtant les données PVT en fonction de la concentration sont différentes (solubilité, viscosité, etc.). Pour les simulations les données relatives à chaque série ont été utilisées, comme s'il s'agissait de deux huiles différentes.

Simulation des expériences à 0.8 et 8 bar.j⁻¹ :

Les simulations sont effectuées en suivant la même méthodologie que précédemment. La Figure 3.39 montre les résultats obtenus avec les deux types de distribution avec $d=2/3$, cas des bulles non fractales ($D_f=3$, cf. § 3.2.1.1.d). Les valeurs obtenues sont récapitulées dans le Tableau 3.12. Notons que le seuil de sursaturation n'a pas d'effet qu'il soit à 0.75 ou 0 bar, ceci est probablement dû au fait que les taux de déplétions ne sont pas assez faibles (cf. § 3.2.1.1.c).

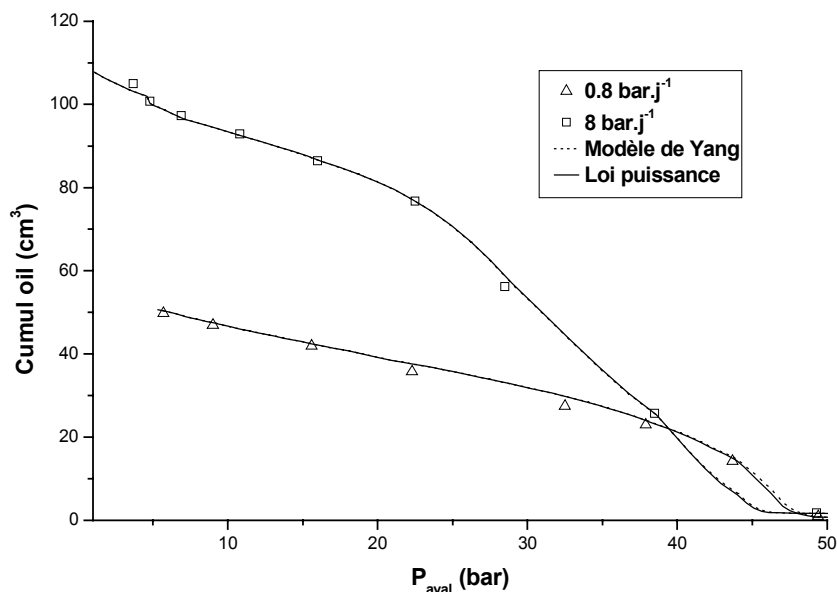


Figure 3.39 : Simulations de la production d'huile pour les expériences ARTEP à 0.8 et 8 bar.j⁻¹, comparaison entre les deux types de loi de distribution (courbes confondues).

A la différence des expériences précédentes le gaz ne s'écoule que sous forme dispersée. Si l'on essaie de simuler l'écoulement du gaz uniquement sous forme continue, les pseudo-perméabilités relatives au gaz à utiliser sont extrêmement faibles.

Les constantes dans l'expression de la vitesse du gaz sont : $c=150$ si le rapport des viscosités n'est pas explicité (Eq. (95)) et $c_{\text{visc}}=1.5 \cdot 10^{-3}$ sinon (Eq. (110)). Les S_g^{mob} sont 0.17 pour l'expérience à 8 bar.j⁻¹ et 0.03 pour 0.8 bar.j⁻¹, expérimentalement les valeurs sont 0.17 et 0.05. La corrélation entre les simulations et les données expérimentales pour le gaz est satisfaisante (Figure 3.40), compte tenu de la difficulté à mesurer la production de gaz. Pour la perméabilité à l'huile les paramètres suivants ont été utilisés : $K_{ro}^0=0.5$, $n_o=2$ et $S_{or}=0.5$.

On remarque que le choix de la loi de distribution semble avoir peu d'effet. Il faut tout de même souligner que nous n'avons que deux expériences, or les deux paramètres sont calés sur deux expériences. Nous verrons plus loin que le choix de la distribution devient important lorsque la mobilisation du gaz est déterminée par un seul critère pour l'ensemble des taux de déplétion.

Tableau 3.12 : Paramètres pour la simulation des expériences ARTEP à 8 et 0.8 bar.j⁻¹ avec les deux types de distribution.

	Modèle de Yang	Loi puissance
β_D (s ⁻¹)	$5 \cdot 10^{-4}$	$7.5 \cdot 10^{-6}$
δ (bar), m	15.9	5.5
ΔP_{seuil} (bar)	0	0

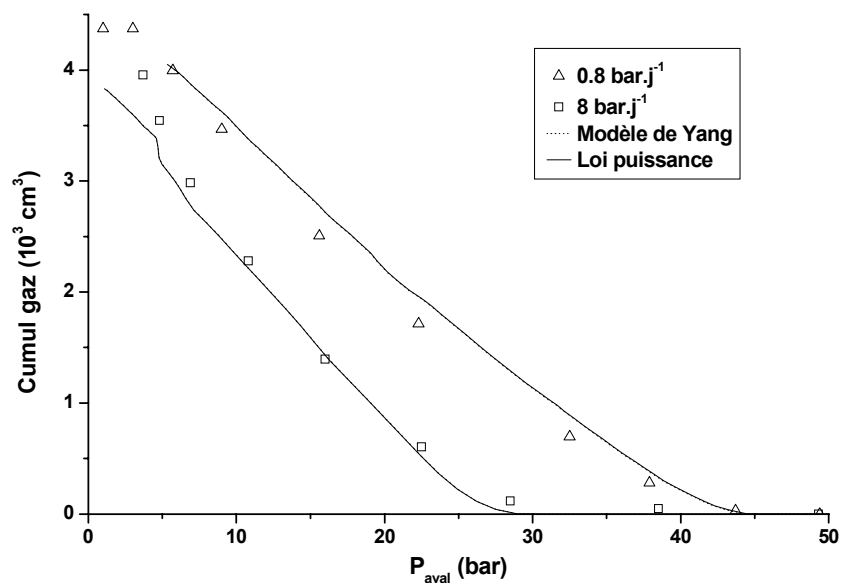


Figure 3.40 : Simulations de la production de gaz pour les expériences ARTEP à 0.8 et 8 bar.j⁻¹, comparaison entre les deux types de loi de distribution.

Plusieurs valeurs de d ont été testées. Le Tableau 3.13 montre les valeurs obtenues pour les paramètres de calage pour $d=0.8$ ($D_f=2.5$) et $d=2/3$ ($D_f=3$). Les résultats ne sont pas présentés car il n'y a pas de différences notables pour ce qui est des courbes de production. Par contre, nous verrons dans la partie suivante que la détermination du S_g^{mob} par un seul critère de mobilisation nécessite de prendre en compte l'aspect fractal des bulles et donc d'avoir des valeurs de d différentes de $2/3$.

3. MODÈLE DU TYPE "APPROCHE DE DARCY"

Tableau 3.13 : Valeurs des paramètres de calage des expériences ARTEP à 0.8 et 8 bar.j⁻¹ pour d=2/3 et 0.8.

	Modèle de Yang		Loi puissance	
	2/3	0.8	2/3	0.8
d	2/3	0.8	2/3	0.8
D _f	3	2.5	3	2.5
β _D (s ⁻¹)	5 10 ⁻⁴	9 10 ⁻⁴	7.5 10 ⁻⁶	2 10 ⁻⁶
δ (bar), m	15.9	32	5.5	15
ΔP _{seuil} (bar)	0	0	0	0

Simulation des expériences à 0.5, 12 et 25 bar.j⁻¹ :

La même démarche a été suivie pour ces expériences. Les deux types de distribution ont été utilisés. Les paramètres de calage sont donnés dans le Tableau 3.14. La valeur du seuil de sursaturation est égale à zéro car il n'a aucun effet notable sur le résultat. On peut remarquer que les paramètres du modèle de Yang sont identiques à ceux des simulations précédentes, et dans le cas de la loi puissance seule la valeur de m varie. Il faut toutefois prendre cela avec prudence car le calage n'est pas automatisé, donc n'est pas optimum. Le résultat important est que pour deux systèmes roche-fluides proches (huiles sensées être identiques), les paramètres sont du même ordre, voir similaires.

Tableau 3.14 : Paramètres pour la simulation des expériences ARTEP à 0.5,12 et 25 bar.j⁻¹ avec les deux types de distribution.

	Modèle de Yang	Loi puissance
β _D (s ⁻¹)	5 10 ⁻⁴	7.5 10 ⁻⁶
δ (bar), m	15.9	4.5
ΔP _{seuil} (bar)	0	0

Les simulations réalisées avec le modèle de Yang sont présentées sur la Figure 3.41, celles utilisant une loi puissance sur la Figure 3.42. On n'observe aucune différence. Pour les deux types de distribution le calage sur le faible taux de déplétion est relativement moins bon par rapport aux autres simulations. Cette expérience a été réalisée en position verticale avec un changement de sens de production, alors que les deux autres ont été faites en position horizontale. Il y a peut-être un petit effet de gravité qui n'est pas pris en compte ici.

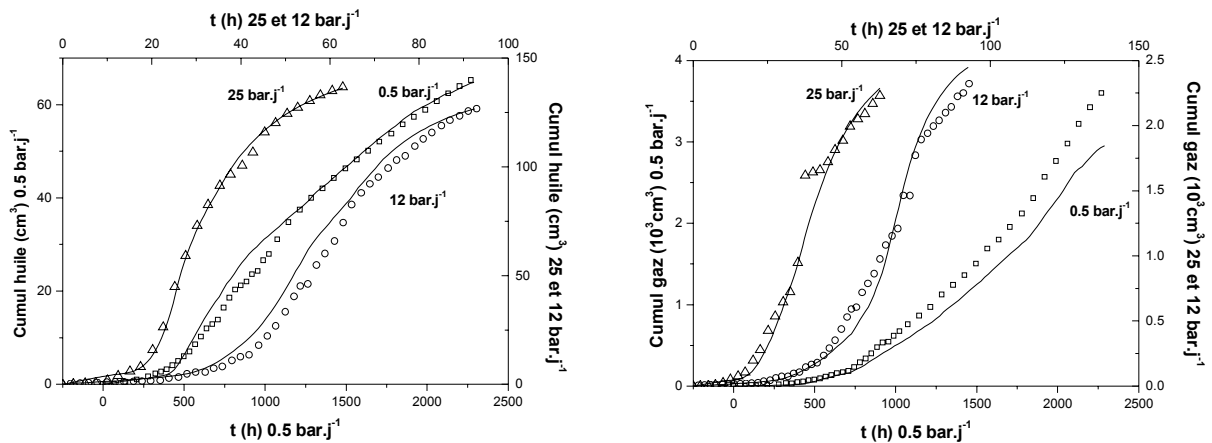


Figure 3.41 : Simulations des expériences ARTEP à 0.5,12 et 25 bar.j⁻¹ avec le modèle de Yang.

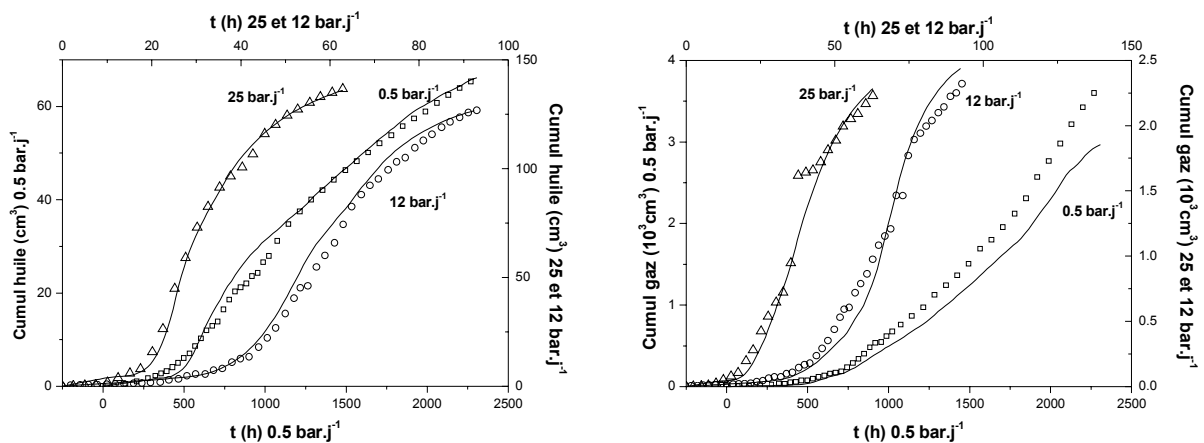


Figure 3.42 : Simulations des expériences ARTEP à 0.5,12 et 25 bar.j⁻¹ avec une loi puissance.

Dans les simulations, l'écoulement du gaz ne se fait que sous forme dispersée pour les deux plus forts taux de déplétion. Pour l'expérience à 0.5 bar.j⁻¹, il y a tout d'abord production sous forme dispersée puis formation d'une phase gaz continue. Les valeurs des seuils en saturation sont données dans le Tableau 3.15. La constante de proportionnalité est, dans le cas où le rapport des viscosités n'est pas explicité, $c=80$ (Eq. (95)), dans l'autre cas $c_{\text{visc}}=3 \cdot 10^{-4}$ (Eq. (110)). On remarque une corrélation satisfaisante entre les valeurs des S_g^{mob} et les valeurs des S_{gc} expérimentaux, tous les deux correspondent au début de production du gaz.

Tableau 3.15 : Valeurs des S_g^{mob} et S_{gc} utilisées pour la simulation des expériences ARTEP à 0.5, 12 et 25 bar.j⁻¹.

dP/dt (bar.j ⁻¹)	S_g^{mob} (%)	S_{gc} (%)	S_{gc} expériences (%)
0.5	3.5	11.0	4.2
12	17.0	-	15.0
25	21.0	-	25.5

Les constantes utilisées pour la vitesse du gaz sont plus faibles pour la série 2 (0.5, 12 et 25 bar.j⁻¹) des expériences ARTEP que pour la série 1, même dans le cas où le rapport des viscosités entre l'huile et le gaz est explicité. Cela sous-entend que la constante est aussi une caractéristique du système roche-fluides. En effet, dans le cas des expériences du PRI les huiles sont différentes mais le milieu poreux est le même. Ici les huiles et les milieux poreux sont différents, or la seule prise en compte de la viscosité ne suffit pas.

3.2.1.3. Conclusion

Loi de distribution de taille de sites :

La loi de distribution de taille de sites modélisant la nucléation est une caractéristique du système roche-fluides étudié. Elle fait intervenir un couple de paramètres identique quel que soit le taux de soutirage : $\beta_D-\delta$ si c'est une loi exponentielle (Eq. (83)) et β_D-m si c'est une loi puissance (Eq. (84)).

Entre le mélange ternaire de Moulu et Longeron et les expériences du PRI ces paramètres sont du même ordre. Par contre, ceux utilisés pour la simulation des expériences ARTEP sont environs d'un à deux ordres de grandeur plus petits. Les valeurs sont récapitulées dans le Tableau 3.16 pour une valeur de $d=2/3$ ($D=3$). La fonction h_v qui traduit le transfert de masse rend compte du retard à l'équilibre, plus les paramètres vont être petits, plus le transfert sera lent et plus grand sera le retard. Tous les travaux montrent que dans le cas des huiles lourdes le système est fortement hors équilibre (cf. § 1.2). La différence entre les expériences ARTEP et le mélange ternaire va donc dans le bon sens. Les valeurs pour les huiles lourdes montrent un retard à l'équilibre nettement plus important. N'ayant pas le coefficient de diffusion pour les huiles lourdes, il est difficile de déterminer si cela provient de la loi de distribution proprement dite ou du coefficient de diffusion. Mais la différence est d'un ordre de grandeur qui pourrait très bien correspondre à la différence entre coefficients de diffusion. En effet, le paramètre β_D est proportionnel au coefficient de diffusion, donc un rapport de 10 se répercutera dans la valeur de β_D .

Tableau 3.16 : Tableau récapitulatif des paramètres de calage pour un d égale à $2/3$.

	Modèle de Yang		Loi Puissance	
	β_D (s^{-1})	δ (bar)	β_D (s^{-1})	m
$C_1-C_3-C_{10}$	$1.1 \cdot 10^{-3}$	5	$2.5 \cdot 10^{-4}$	3.1
Expériences du PRI	$5.0 \cdot 10^{-3}$	2	$1.0 \cdot 10^{-3}$	5
Expériences ARTEP à 0.8 et 8 bar.j ⁻¹	$5.0 \cdot 10^{-4}$	15.9	$7.5 \cdot 10^{-6}$	5.5
Expériences ARTEP à 0.5, 12 et 25 bar.j ⁻¹	$5.0 \cdot 10^{-4}$	15.9	$7.5 \cdot 10^{-6}$	4.5

Par contre, les simulations des expériences du PRI ne semblent pas aller dans le bon sens. Cela peut s'expliquer par la nature du milieu poreux. En effet dans le cas des expériences du PRI le milieu est non consolidé (pour les expériences ARTEP le milieu est consolidé). Or il est montré que la production des huiles lourdes en milieu non consolidé peut être fortement augmentée par un phénomène de décompaction du milieu. Puisque les paramètres sont calés sur les courbes de production, toute augmentation de celles-ci par un phénomène de décompaction sera simulée par des paramètres plus grands, c'est-à-dire un β_D plus grand.

Mobilisation et écoulement du gaz :

Pour le mélange ternaire l'ensemble de l'écoulement du gaz peut être simulé : soit par une phase dispersée, soit par une phase continue. Dans le cas de l'écoulement d'une phase continue la perméabilité relative au gaz est la même pour l'ensemble des taux de déplétion et n'est pas particulièrement faible. Il est donc difficile de dire seulement en fonction des simulations si l'écoulement du gaz se fait sous forme dispersée, continue ou sous les deux aspects.

Pour les huiles lourdes, l'écoulement du gaz ne peut être simulé que par une phase gaz dispersée, suivi dans certains cas par un l'écoulement d'une fraction continue du gaz. L'écoulement du gaz dispersé, pour un même système roche-fluides et pour l'ensemble des taux de déplétion, est simulé avec la même expression pour la vitesse. La phase continue s'il y en a une est simulée à l'aide d'une perméabilité relative qui n'est pas un pseudo, mais qui est accessible expérimentalement (K_r déplacement).

Remarque : Si l'on veut simuler l'ensemble de la production de gaz par une phase continue, il faut entrer une pseudo-perméabilité au gaz, $\langle K_r \rangle$, extrêmement faible et dépendante du taux de déplétion. Par exemple pour simuler l'ensemble de l'écoulement du gaz des expériences ARTEP de 0.8 et 8 bar.j⁻¹ par une pseudo-perméabilité relative $\langle K_r \rangle$, il faut prendre un k_{rg}^0 de l'ordre de 10^{-4} dans l'expression de Corey (Eq. (3)).

Seuil de sursaturation minimum :

La sursaturation minimum n'a aucun effet sur les expériences d'huiles lourdes simulées ici. Cela n'est pas dû à une caractéristique des huiles lourdes, mais aux forts taux de déplétion employés. Les simulations montrent que ce seuil devient non négligeable aux faibles taux de déplétion. En effet, dans le cas du mélange ternaire l'effet du seuil de sursaturation augmente quand le taux de déplétion diminue. Une simulation pour le même système proche des conditions réservoir, à $0.01 \text{ bar}\cdot\text{j}^{-1}$ ($3.65 \text{ bar}\cdot\text{an}^{-1}$), montre que l'effet serait très important. Dans la dernière partie (§ 3.2.2) le seuil de saturation n'est pas pris en compte, mais si l'on veut simuler des expériences à très faibles taux de déplétion il est nécessaire d'en tenir compte.

Seuils de saturation en gaz :

Sur la Figure 3.43 sont présentés, en fonction du taux de déplétion, les valeurs des S_g^{mob} pour les huiles lourdes, et des S_{gc} ou S_g^{mob} pour le mélange ternaire. Il est connu depuis longtemps que la valeur du S_{gc} suit une loi d'échelle avec le taux de déplétion (cf. § 1.1). Les S_{gc} correspondent habituellement au début de production du gaz, sans précision sur l'aspect de la phase. Ils caractérisent donc l'écoulement du gaz quelle que soit sa forme, dispersée ou continue. Il n'est donc pas surprenant que les S_g^{mob} suivent aussi ce type de loi en fonction du taux de déplétion (Figure 3.43). On peut également remarquer que chaque couple roche-fluides semble suivre une loi d'échelle qui lui est propre. Pour la mobilisation d'amas gazeux (cf. § 3.1.3.1) cela se comprend par le fait que pour une taille donnée d'amas, la saturation correspondante (à l'échelle de Darcy) augmente si le nombre de bulle augmente. Or la mobilisation est liée à cette taille et au gradient visqueux. Donc, quand le taux de déplétion augmente, le nombre de bulles s'accroît et la saturation correspondant à la taille critique également. Puisque la loi de distribution est une caractéristique du système roche-fluides, la variation du nombre de bulles fonction de dP/dt le sera aussi, par conséquent il n'est pas surprenant de trouver une loi d'échelle pour le S_g^{mob} en fonction de dP/dt propre à chaque système roche-fluides.

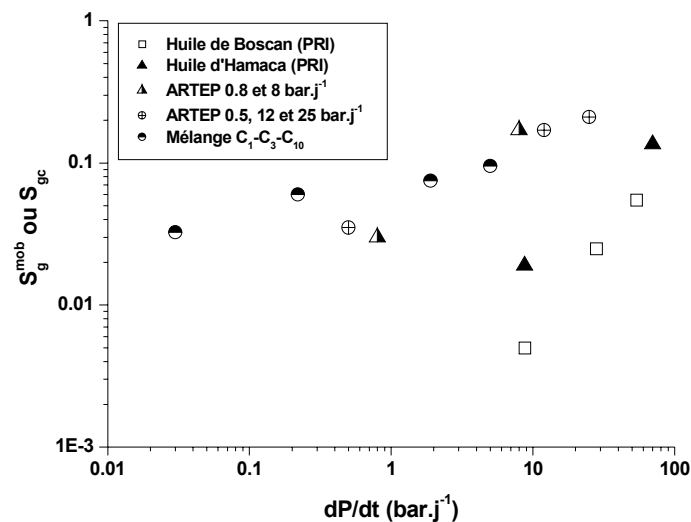


Figure 3.43 : Valeurs des seuils de saturation en gaz pour la mobilisation : S_g^{mob} ou S_{gc} pour l'huile légère.

On peut remarquer que les deux séries d'expériences ARTEP semblent suivre la même loi en fonction du taux de déplétion, alors que dans le cas des expériences du PRI de deux huiles différentes et d'un même milieu poreux, les lois semblent différentes. Dans le premier cas, le brut d'origine est le même, mais les huiles recombinaées ont des caractéristiques différentes. Dans le second cas les huiles sont différentes. Il semble donc que la nature de l'huile a un effet sur le seuil de mobilisation. Ce qui pourrait s'expliquer par des propriétés interfaciales différentes associées à des concentrations en asphaltènes et résines différentes.

3.2.2. Utilisation d'un critère de mobilisation du gaz (λ_{mob}^*) indépendant des conditions de déplétion

Jusqu'à présent les paramètres ajustables étaient :

- Pour la nucléation : les deux paramètres de la distribution de taille de sites et le seuil de sursaturation, pris nul ici pour les raisons données au paragraphe précédent (§ 3.2.1.3).
- Pour la mobilisation du gaz : une constante dans l'expression de la vitesse du gaz, le S_g^{mob} et le S_{gc} .

Les paramètres relatifs à la nucléation et la constante dans le flux de gaz étaient déterminés à partir de deux expériences, et étaient identiques pour un système roche-fluides quel que soit le taux de déplétion. Par contre, les deux seuils de saturation étaient ajustés pour chaque taux. De ce point de vue, le modèle ne peut être prédictif. Il faut donc essayer de déterminer les seuils à partir des deux expériences servant à caler les autres paramètres.

Dans la partie consacrée à la mobilisation du gaz dispersé (cf. § 3.1.3.1) un paramètre de mobilisation, noté λ_{mob} , est donné. Il rend compte de la compétition entre forces visqueuses et forces capillaires, par l'intermédiaire du nombre capillaire et de la taille caractéristique des

bulles. Un nombre critique de mobilisation, λ_{mob}^* , peut alors être défini comme le moment où le gradient visqueux devient plus important que la pression capillaire par rapport à la taille moyenne des bulles. Nous avons vu que ce nombre était un invariant qui ne dépendait que de la taille des pores et de la perméabilité. Il ne dépendra donc pas du taux de déplétion. C'est ce que nous allons vérifier avec les simulations des expériences ARTEP.

Simulation des expériences à 0.8 et 8 bar.j⁻¹

La détermination d'un critère de mobilisation (λ_{mob}^*) unique pour l'ensemble des taux de déplétion nécessite de prendre en compte l'aspect fractal des bulles, c'est-à-dire d'avoir d supérieur à 2/3 ($D_f < 3$).

La taille caractéristique des pores peut être calculée à partir d'une relation empirique couramment utilisée dans le domaine pétrolier : $r_c = \sqrt{8K/\phi}$. Pour ces expériences ARTEP, la perméabilité est de $0.63 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$ et $\phi=0.216$ ce qui donne $r_c \sim 4.8 \cdot 10^{-6} \text{ m}$.

La meilleure corrélation a été obtenue avec une loi puissance comme loi de distribution et une puissance d de 0.8 correspondant à une dimension fractale $D_f=2.5$ (Figure 3.44). Les paramètres dans ce cas sont : $\beta_D=2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, $m=14$ et pour la vitesse $c_{visc}=1.5 \cdot 10^{-3}$. Le paramètre de mobilisation trouvé est $\lambda_{mob}^*=1.7 \cdot 10^{-8}/\gamma$, avec γ la tension interfaciale. Ce qui donne, pour une tension interfaciale de 10 mN.m^{-1} , une valeur de $\lambda_{mob}^* = 1.7 \cdot 10^{-6} \text{ m}$.

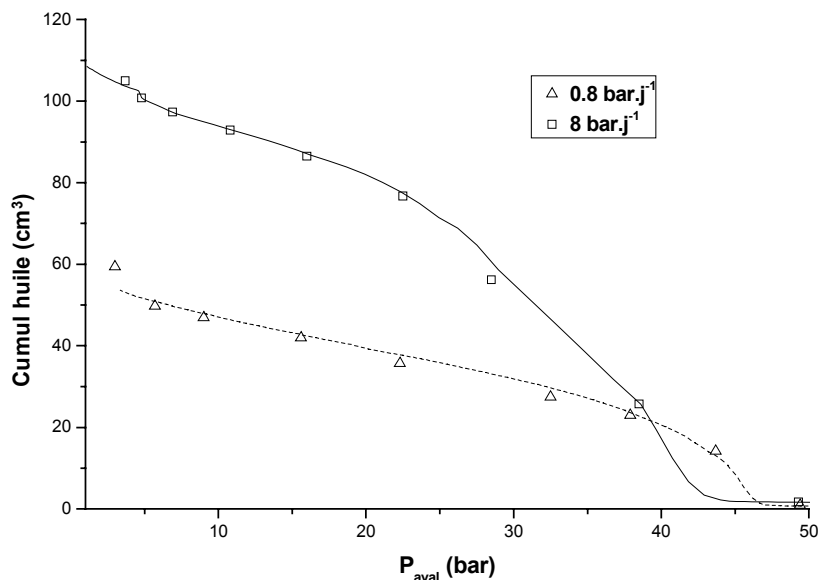


Figure 3.44 : Simulation des expériences à 8 et 0.8 bar.j⁻¹, avec une loi puissance, $d=0.79$ et un critère de mobilisation unique.

Nous avons vu que ce paramètre critique de mobilisation était, selon les calculs effectués au paragraphe 3.1.3.1, donné par la relation $2K/r_c$ où K est la perméabilité et r_c la taille des pores. La valeur calculée de λ_{mob}^* est alors $2.6 \cdot 10^{-7} \text{ m}$.

Comme cela a été dit plus tôt, nous n'avons pas la valeur de la tension interfaciale. Pour qu'il y ait égalité entre la valeur de λ_{mob}^* déterminée par la simulation et la valeur calculée, il faudrait une tension de surface de $65 \cdot 10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$. Cette valeur est de l'ordre de ce que l'on a en conditions standards, ce qui est peu probable puisque les expériences sont réalisés à $49 \text{ }^\circ\text{C}$, la tension de surface devrait être plus faible. Mais le résultat est encourageant car l'ordre de grandeur est raisonnable et surtout λ_{mob}^* est un invariant.

Remarque : Tout comme la tension interfaciale, nous n'avons pas à notre disposition la valeur du coefficient de diffusion. Le λ_{mob}^* donné précédemment correspond à des simulations avec $D = 10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$. Maintenant, si l'on suppose que le coefficient de diffusion est deux fois plus petit, alors on obtient avec une tension de 10^{-2} N.m^{-1} : $\lambda_{\text{mob}}^* \sim 4 \cdot 10^{-7} \text{ m}$.

En conclusion l'utilisation de λ_{mob}^* comme paramètre de mobilisation n'est possible que si les données PVT des fluides sont connues (coefficient de diffusion D , tension interfaciale γ , etc.).

3.3. CONCLUSION

Le modèle 1D, présenté dans ce chapitre, permet d'interpréter et de simuler des expériences de production par dépressurisation du milieu d'une huile saturée, cela pour des huiles lourdes ou légères. Il fait intervenir un nombre limité de paramètres :

- un couple de paramètres dans la loi de distribution de taille de sites pour la nucléation ;
- une constante dans l'expression de la vitesse du gaz dispersé ;
- un paramètre de mobilisation des amas de gaz, λ_{mob}^* ;

Les avantages de ce modèle :

- **Les paramètres sont des invariants caractéristiques du système roche-fluides étudié.** Tous les paramètres utilisés sont propres au système roche-fluides et sont indépendants des conditions de soutirage. Ce point est important car cela veut dire que le modèle est prédictif. Nous avons vu dans le chapitre bibliographique que ce qui faisait défaut aux simulateurs classiques avec une "approche de Darcy" était la dépendance des pseudo-perméabilités relatives avec le taux de déplétion. Ce qui rendait ces simulateurs non prédictifs, car les taux de déplétion en conditions de réservoir sont bien plus faibles que ceux en conditions de laboratoire. Le modèle répond donc à ce problème puisque le même jeu de paramètres est utilisable quel que soit le taux de soutirage.
- **Les grandeurs sont macroscopiques.** Les mécanismes physiques sont tous modélisés à une échelle macroscopique avec une "approche de Darcy". Les grandeurs ont donc toutes un sens à l'échelle du milieu que ce soit à l'échelle du réservoir ou d'une carotte. Ce point répond donc au problème de changement d'échelle (hors hétérogénéités).
- **Les paramètres de simulation sont limités en nombre et sont accessibles expérimentalement.** Ce dernier point est très important car c'est ce qui fait la différence avec d'autres modèles telle que l'approche *Population Balance Modeling*. La loi de distribution de taille de sites est une caractéristique du système, on peut donc la déterminer expérimentalement comme une courbe de pression capillaire ou les perméabilités relatives de déplacement. D'autre part, le paramètre de mobilisation dépend de cette distribution et du nombre capillaire on peut donc supposer être capable de le calculer. Enfin, nous connaissons les dépendances des différents paramètres, par exemple proportionnalité de la constante β_D avec le coefficient de diffusion ou dépendance de λ_{mob}^* avec le nombre capillaire; nous pouvons donc extrapoler les valeurs laboratoires à des paramètres champs.

Le modèle répond donc aux deux points qui sont le changement d'échelle et la prédictibilité. Il est donc capable de simuler des courbes de production à des conditions différentes de celles du laboratoire. Ces productions peuvent ensuite être simulées à l'aide d'un simulateur d'écoulement de phases continues afin d'obtenir les pseudo-perméabilités relatives utilisables

par les simulateurs réservoir commerciaux. Nous avons donc ici un modèle générateur de pseudo-perméabilités relatives (Figure 3.45).

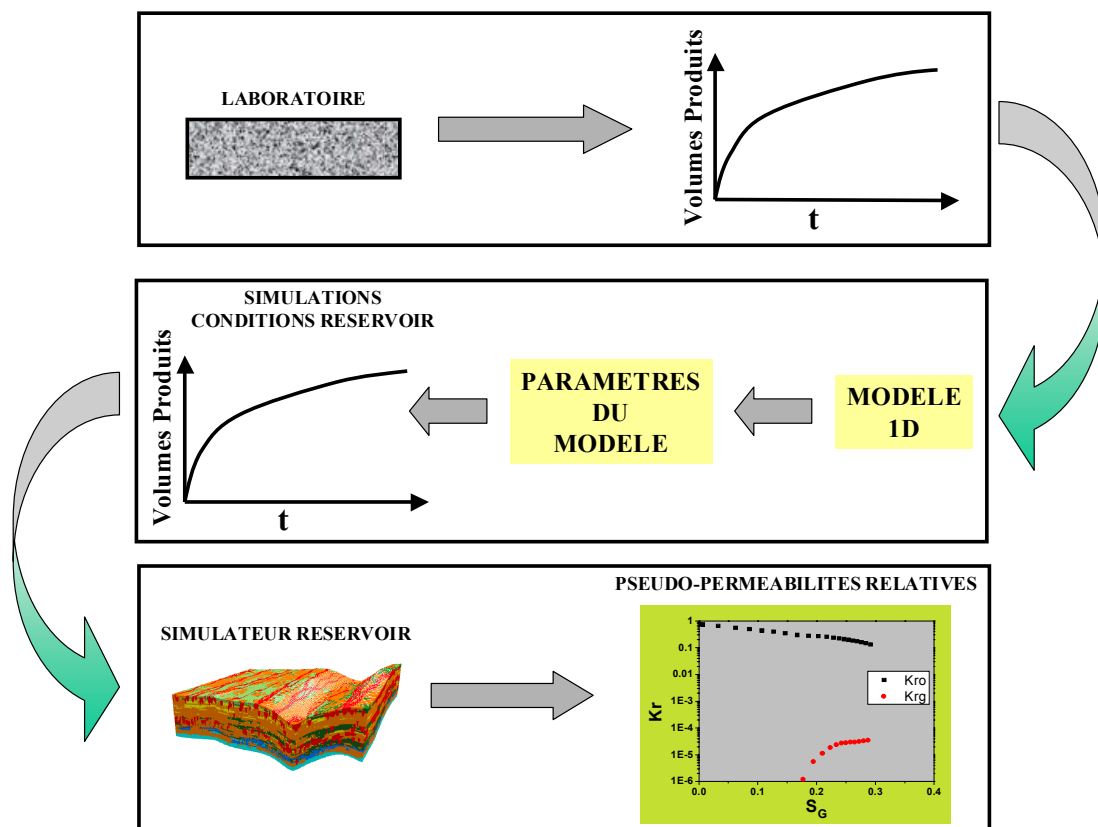


Figure 3.45 : Méthodologie pour la génération de pseudo-perméabilités relatives en conditions réservoir.

Les résultats hors milieu poreux du chapitre 2 montrent que la concentration en asphaltènes a des effets importants sur l'interface gaz/huile à partir d'une concentration seuil. Les simulations indiquent que ces effets sont pris en compte par le paramètre qui contrôle la mobilité du gaz. En effet :

- Les simulations de deux huiles différentes (compositions chimiques différentes) avec un même milieu poreux (expériences du PRI) montrent que la même fonction de transfert peut être utilisée, ainsi que la même expression de la vitesse du gaz dispersé. Par contre, les valeurs des saturations de mobilisation ne suivent pas la même loi en fonction du taux de déplétion. Pour un même taux de déplétion ces seuils en saturation sont différents.
- Les deux séries d'expériences ARTEP portent sur deux roches différentes avec le même brut d'origine. Il faut préciser à nouveau que les caractéristiques des huiles recombinaées sont malgré tout différentes. La fonction de transfert est alors légèrement différente, tout comme l'expression de la vitesse du gaz. Par contre, les saturations seuils de mobilisation semblent suivre la même loi avec le taux de déplétion. Ceci corrobore les observations du chapitre précédent indiquant l'importance de la composition chimique de l'huile.

CONCLUSION

Le propos de la thèse était la modélisation de la production par dépressurisation d'huiles lourdes, ces huiles visqueuses ayant un comportement atypique par rapport aux huiles légères. Deux hypothèses existent pour expliquer cette différence de comportement :

- Les huiles lourdes ont une concentration en asphaltènes plus importante. Les asphaltènes étant tensioactifs, ils peuvent être à l'origine de propriétés interfaciales fortement différentes.
- Les différences de comportement peuvent s'expliquer uniquement par la différence de viscosité.

Les travaux expérimentaux présentés au second chapitre, concernant les propriétés physico-chimiques des asphaltènes, montrent que la concentration en asphaltènes a des effets importants sur la moussabilité et les propriétés de l'interface huile/gaz. On peut donc s'attendre à observer des différences de comportements en fonction de la composition de l'huile. Les résultats de la dernière partie montrent qu'un modèle de type mécanique des fluides, avec une "approche de Darcy", permet d'interpréter et de prédire des productions lors d'expériences de déplétion. Les effets physico-chimiques ne sont pas négligés mais sont pris en compte par l'intermédiaire de grandeurs macroscopiques telles que la fonction de transfert et la saturation en gaz seuil caractérisant la mobilisation du gaz dispersé.

La thèse s'est déroulée en deux étapes : une étude expérimentale des propriétés physico-chimiques des asphaltènes et des résines, et un travail théorique pour l'élaboration d'un modèle continu à "l'échelle de Darcy".

Les résultats hors milieu poreux présentés au second chapitre ont montré qu'il existait une concentration critique en asphaltènes d'environ 10 % en poids, à partir de laquelle la nature de l'interface change :

- Augmentation de la moussabilité et du temps de vie d'un film mince.
- Changement de la nature de l'interface caractérisé par la formation d'une croûte solide. Ce comportement est similaire à celui des protéines.

L'ajout de résines à partir d'un rapport seuil résines/asphaltènes de 1 empêche la formation de la croûte et augmente la tension interfaciale. Ces observations indiquent un effet notable des asphaltènes et des résines sur les propriétés interfaciales. Quelques expériences ont ensuite été réalisées en micromodèle pour identifier ces effets en milieu poreux. Les observations visuelles ne montrent aucun effet de la concentration en asphaltènes sur la nucléation ou la

coalescence, et aucune formation de croûte solide. Notons qu'il faudrait d'autres expériences pour tester la reproductibilité.

De ces dernières observations, la thèse a été orientée vers la modélisation proprement dite avec une approche mécanique des fluides. L'approche se situe à l'échelle de Darcy. Il s'agit d'une modélisation par un système d'équations continues avec des paramètres mesurables à l'échelle du laboratoire. Trois mécanismes sont pris en compte :

- La formation de la phase gazeuse lorsque la pression devient inférieure à un certain seuil.
- La croissance de la phase gazeuse.
- L'écoulement des phases huile et gaz.

La caractéristique principale du modèle est la possibilité de décrire une situation thermodynamique hors équilibre. Un seul simulateur commercial permet de prendre en compte les phénomènes hors équilibre, mais il est dérivé des réactions chimiques et est mal adapté pour décrire les écoulements de phase (STARS de la compagnie CMG [Coombe 1994]). La plupart des modèles de recherche utilisent une approche microscopique faisant appel à un grand nombre de paramètres difficiles à déterminer expérimentalement.

Dans le modèle élaboré durant la thèse, le nombre de paramètres ajustables a pu être fortement réduit, et ne sont introduites que des grandeurs mesurables ayant une signification physique. Cela a été possible en améliorant la modélisation physique sur plusieurs points :

- Modélisation du mécanisme de nucléation en utilisant la notion de bulles préexistantes, théorie largement admise dans les domaines de l'ébullition et de la cavitation. Cela permet de relier la densité de bulles créées à la sursaturation, indépendamment des conditions extérieures de l'expérience.
- Modélisation du grossissement de la phase gazeuse par l'introduction d'un coefficient de transfert volumique ayant une signification à l'échelle de Darcy. Cette approche est utilisée en génie chimique pour les transferts thermiques et les réactions chimiques. Une modélisation basée sur des modèles simples permet de déterminer la dépendance de ce paramètre de transfert avec les paramètres de l'expérience (diffusion moléculaire, propriétés des fluides, taux de déplétion, vitesse locale de l'écoulement, etc.). La détermination de ces lois de dépendance est indispensable pour extrapoler les résultats d'une expérience à des conditions réservoir.
- Modélisation de l'écoulement de la phase gazeuse. La phase gaz est sous différentes formes : une fraction piégée immobile, une fraction discontinue entraînée par le mouvement de l'huile et une phase continue. Contrairement au modèle STARS, basé sur des cinétiques chimiques, l'évolution entre les différentes formes de gaz est décrite en utilisant une modélisation de type mécanique des fluides. Par exemple, la mise en mouvement de la phase immobile se calcule à partir d'un bilan de forces sur les bulles. Ce type d'approche est déjà utilisé mais les modèles ont une approche du type "microscopique".

Le modèle, testé sur des expériences, est capable de reproduire les observations. L'objectif est atteint en tant que nombre limité de paramètres à déterminer et possibilité d'extrapoler les simulations pour d'autres conditions expérimentales (modèle prédictif).

Il reste cependant quelques points à préciser dans le modèle :

- Amélioration du modèle de transfert par convection. Il faut pouvoir intégrer les résultats publiés dans d'autres domaines pour proposer une loi empirique reliant le coefficient de transfert à la vitesse (nombre de Péclet) et à la densité de bulles.
- Amélioration du modèle d'écoulement. La présence d'une phase dispersée mobile est remise en question dans certaines publications récentes. L'explication est que le piégeage capillaire peut dominer la remise en mouvement sous l'effet des forces visqueuses. Les mécanismes mis en jeu sont relativement bien connus et les bilans de forces pourront être estimés pour les expériences et les déplacements en réservoirs. Si l'on peut prouver que ce type de mécanisme est négligeable, il sera avantageux de ne pas en tenir compte pour simplifier le modèle et réduire le nombre de paramètres. Par contre, il est nécessaire d'en tenir compte pour l'interprétation des expériences en laboratoire. En effet, les taux de déplétion étant souvent plus forts en laboratoire, les gradients visqueux peuvent être plus importants.
- Mise au point d'une méthodologie expérimentale pour mesurer les perméabilités relatives en déplacement. La difficulté ne provient pas seulement de la forte viscosité de l'huile mais aussi de la forte perméabilité des échantillons qui entraîne des effets importants de ségrégation par gravité. Des essais ont été réalisés et une méthodologie devrait être mise au point dans les mois à venir.

RÉFÉRENCES

- Acevedo, S., Castillo, J., Fernandez, A., Goncalves, S., Ranaudo, M.A., 1998, *A Study of Multilayer Adsorption of Asphaltenes on Glass Surfaces by Photothermal Surface Deformation. Relation of this Adsorption to Aggregate Formation in Solution*, Energy & Fuels, **12**, 386-390.
- Alvarez, J.M., Rivas, H.J., Rossen, W.R., 1999, *Unified Model for Steady-State Foam Behavior at High and Low Foam Qualities*, SPE 56825 Annual Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 3-6.
- Andarcia, L., Heny, C., Rico, A., 2000, *Experimental Study on Production Performance of Two Different Heavy Oils in Venezuela*, CIM 43 CIM Annual Technical Meeting, Calgary, Canada, June 4-8.
- Andarcia, L., Kamp, A.M., Vaca, P., 2001, *Heavy Oil Solution Gas Drive in the Venezuelan Orinoco Belt: Laboratory Experiments and Field Simulation*, SPE 69715 International Thermal Operations and Heavy Oil Symposium, Porlamar, Margarita Island, Venezuela, March 12-14.
- Andersen, S.I., Speight, J.G., 1993, *Observations on the Critical Micelle Concentration of Asphaltenes*, Fuel, **72**(9), 1343-1344.
- Apaydin, O.G., Kovsky, A.R., 2000, *Transient Foam Flow in Homogeneous Porous Media: Surfactant Concentration and Capillary End Effects*, SPE 59286 SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium, Tulsa, OK, April 2-5.
- Arora, P., Kovsky, A.R., 2001, *Mechanistic Modeling of Solution Gas Drive in Viscous Oils*, SPE 69717 International Thermal Operations and Heavy Oil Symposium, Porlamar, Margarita Island, Venezuela, March 12-14.
- Bankoff, S.G., 1958, *Entrapment of Gas in the Spreading of a Liquid over a Rough Surface*, AIChE Journal, **4**, 24-26.
- Bauget, F., Langevin, D., Lenormand, R., 2001, *Dynamic surface properties of asphaltenes and resins at the oil-air interface*, Journal of Colloid and Interface Science, **239**(2), 501-508.
- Bayon, Y.M., Cordelier, P.R., 2002, *A New Methodology to Match Heavy-Oil Long-Core Primary Depletion Experiments*, SPE 75133 SPE/DOE 13th Symposium on Improved Oil Recovery, Tulsa, Oklahoma, Usa, April 13-17.
- Benjamins, J., Cagna, A., Lucassen-Reynders, E.H., 1996, *Viscoelastic Properties of Triacylglycerol/water Interfaces Covered by Proteins*, Colloids and Surfaces, A, **114**, 245-254.

- Bergeron, V., 1999, *An introduction to forces and structure in individual foam and emulsion films*, in *Foams and Emulsions*, J. F. Sadoc and N. Rivier Eds., Kluwer Academic Publishers, Netherlands, pp 45-72.
- Bertin, H.J., 2000, *Foam Diversion Modeling Using a Bubble-Population Correlation*, SPE 59366 SPE\DOE Improved Oil Recovery Symposium, Tulsa, Oklahoma, April 3-5.
- Bertin, H.J., Quintard, M.Y., Castanier, L.M., 1998, *Development of a Bubble-Population Correlation for Foam-Flow Modeling in Porous Media*, SPE Journal, **December**, 356-362.
- Betata, S.A., 1998, *Les Ecoulements Polyphasiques aux Abords de Puits dans Les Gisements d'Hydrocarbures Contribution à l'Etude des Mécanismes de Formation d'une Phase Gazeuse par Detente d'une Solution Binaire (Liquide-Gaz) en Milieux Poreux*, Thèse de Doctorat, Paris VI, Paris, France.
- Bhattacharyya, A., Monroy, F., Langevin, D., Argillier, J.-F., 2000, *Surface rheology and foam stability of mixed surfactant-polyelectrolyte solutions*, Langmuir, **16**(23), 8727-8732.
- Bonfillon, A., Sicoli, F., Langevin, D., 1994, *Dynamic Surface Tension of Ionic Surfactant Solutions*, Journal of Colloid and Interface Science, **168**, 497-504.
- Bora, R., Maini, B.B., Chakma, A., 1997, *Flow Visualization Studies of Solution Gas Drive Process in Heavy Oil Reservoirs Using a Glass Micromodel*, SPE 37519 International Thermal Operations and Heavy Oil Symposium, Bakersfield, California, February 10-12.
- Callaghan, I.C., McKecheenie, A.L., Ray, J.E., Wainwright, J.C., 1985, *Identification of Crude Oil Components Responsible for Foaming*, SPE Journal(April), 171-175.
- Callaghan, I.C., Neustadter, E.L., Chem. And Ind., J., 53 (1981)., 1981, *Foaming of Crude oils: a Study of Non-aqueous Foam Stability*, Chemistry and Industry(January), 53-57.
- Carr, M.W., Hillman, A.R., Lubetkin, S.D., 1995, *Nucleation Rate Dispersion in Bubble Evolution Kinetics*, Journal of Colloid and Interface Science, **169**(1), 135-142.
- Cassani, F., Ortega, P., Davila, A., Rodriguez, W., Serrano, J., 1992, *Evaluation of Foam Inhibitors at the Jusepin Oil/Gas Separation Plant, El Furrial Field, Eastern Venezuela*, SPE 23681 Second Latin American Petroleum Engineering Conference, II LAPEC, Caracas, Venezuela, March 8-11.
- Chakma, A., Islam, M.R., Berruti, F., 1994, *Asphaltene - Viscosity Relationship of Processed and Unprocessed Bitumen*, in *Asphaltene Particles in Fossil Fuel Exploration, Recovery, Refining, and Production Processes*, M. K. Sharman and T. F. Yen Eds., Plenum Press, New York, pp .
- Claridge, E.L., Prats, M., 1995, *A Proposed Model and Mechanism for Anomalous Foamy Oil Behavior*, SPE 29243 International Heavy Oil Symposium, Calgary, Alberta, Canada, June 19-21.
- Cole, R., 1974, *Boiling Nucleation*, in *Advances in Heat Transfer*, Academic Press ed., T. F. Irvine and J. P. Harnett Eds., New York, Vol. 10, pp 85-149.
- Cole, R., van Stralen, S., 1979, *Boiling Phenomena*, McGraw-Hill ed., New York.
- Coombe, D., Maini, B., 1994, *Modeling Foamy Oil Flow*, Petroleum Recovery Institute Workshop on Foamy Oil Flow, Calgary, Canada, April 27.

RÉFÉRENCES

- Cossé, R., 1988, *Le gisement*, Editions Technip ed., Paris.
- Crum, L.A., 1982, *Nucleation and Stabilization of Microbubbles in Liquids*, Applied Scientific Research, **38**, 101-115.
- de Gennes, P.G., *communication privée*.
- Defay, R., Prigogine, I., Bellemans, A., Everett, D.H., 1966, *Surface Tension and Adsorption*, John Wiley and Sons, Inc. ed., New York.
- Defives, D., Rojey, A., 1976, *Transfert de Matière : Efficacité des Opérations de Séparation du Génie Chimique*, Technip ed., Paris, France.
- Dias, M.M., Payatakes, A.C., 1986, *Network Models for Two-phase Flow in Porous Media Part 2. Motion of Oil Ganglia*, Journal of Fluid Mechanics, **164**, 337-358.
- Dominguez, A., 1997, *Formation d'une Phase Gazeuse par Décompression d'une Solution Binaire (Liquide-Gaz) en Milieu Poreux*, Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse.
- Dominguez, A., Bories, S., Prat, M., 2000, *Gas cluster growth by solute diffusion in porous media. Experiments and automaton simulation on pore network*, International Journal of Multiphase Flow, **26**(12), 1951-1979.
- Du, C., Yortsos, Y.C., 1999, *A Numerical Study of the Critical Gas Saturation in a Porous Medium*, Transport in Porous Media, **35**(2), 205-225.
- Dullien, F.A.L., 1992, *Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure*, Academic Press ed., San Diego, California.
- Egbogah, E.O., 1985, *The concept of relative Ganglion Velocity and Generalization to Oil Bank Movements in Porous Media*, SPE 10115 56th Annual Fall Technical Conference and Exhibition, San Antonio, Texas, October 5-7.
- Egbogah, E.O., Wright, R.J., Dawe, R.A., 1981, *A Model of Oil Ganglion Movement in Porous Media*, 56th Annual Fall Technical Conference and Exhibition, San Antonio, Texas, October 5-7.
- Egermann, P., Vizika, 2000, *Critical Gas Saturation and Relative Permeability During Depressurization in the Far Field and The Near-Wellbore Region*, SPE 63149 Annual Technical Conference and Exhibition, Dallas, Texas, October 1-4.
- Ehlig-Economides, C.A., Fernandez, B.G., Gongora, C.A., 2000, *Global Experiences and Practice For Cold Production of Moderate and Heavy Oil*, SPE 58773 Formation Damage Control Internatinal Symposium, Lafayette, La, February 23-24.
- El Yousfi, A., 1992, *Contribution à l'étude des mécanismes de formation d'une phase gazeuse par détente d'une solution binaire (liquide-gaz) en milieu poreux*, Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse.
- El Yousfi, A., Zarcone, C., Bories, S., Lenormand, R., 1991, *Mécanismes de Formation d'une Phase Gazeuse par Détente d'un Liquide en Milieu Poreux*, Comptes Rendus de l'Académie Des Sciences, Série II, **313**, 1093-1098.
- El Yousfi, A., Zarcone, C., Bories, S., Lenormand, R., 1997, *Physical Mechanisms for Bubble Growth During Solution Gas Drive*, SPE 38921 Annual Technical Conference and Exhibition, San Antonio, Texas, October 5-8.

- Elkins, L.F., Morton, D., Blacwell, W.A., 1972, *Experimental Fireflood in a Very Viscous Oil-Consolidated Sand Reservoir*, SPE 4086 47th Annual Fall Meeting of the Society of Petroleum Engineers of AIME, San Antonio, Texas, October 8-11.
- Ese, M.H., Galet, L., Clause, D., Sjoblom, J., 1999, *Properties of Langmuir surface and interfacial films built up by asphaltenes and resins: influence of chemical demulsifiers*, Journal of Colloid and Interface Science, **220**, 293-301.
- Ettinger, R.A., Radke, C.J., 1992, *Influence of Texture on Steady Foam Flow in Berea Sandstone*, SPE Reservoir Engineering, **February**, 83-90.
- Exerowa, D., Kashchiev, D., Platikanov, D., 1992, *Stability and permeability of amphiphile bilayers*, Advances in Colloid and Interface Science, **40**, 201-256.
- Falls, A.H., Gauglitz, P.A., Hirasaki, G.J., Miller, D.D., Patzek, T.W., Ratulowski, J., 1986, *Development of a Mechanistic Foam Simulator: The Population Balance and Generation by Snap-Off*, SPE 14961 SPE/DOE Fifth Symposium on Enhanced Oil Recovery of the Society of Petroleum Engineers and the Department of Energy, Tulsa, OK, April 20-23.
- Falls, A.H., Musters, J.J., Ratulowski, J., 1989, *The Apparent Viscosity of Foams in Homogeneous Beadpacks*, SPE Reservoir Engineering, **May**, 155-164.
- Fang, J.P., Joos, P., 1992, *The Dynamic Surface Tension of SDS-Dodecanol Mixtures: 1. The Submicellar Systems*, Colloids and Surfaces, **65**, 113-120.
- Fenistein, D., Barré, L., Frot, D., 2000, *From Aggregation to Flocculation of Asphaltenes, a Structural Description by Radiation Scattering Techniques*, Oil & Gas Science and Technology, **55**, 123-128.
- Fergui, O., Bertin, H., Quintard, M., 1998, *Transient aqueous foam flow in porous media: experiments and modeling*, Journal of Petroleum Science and Engineering, **20**, 9-29.
- Finkelstein, Y., Tamir, A., 1985, *Formation of Gas Bubble in Supersaturated Solution of Gases in Water*, AIChE Journal, **31**(9), 1409-1419.
- Firoozabadi, A., 1997, *Author's reply to Discussion of "Pressure and Volume Evolution During Gas Phase Formation in Solution Gas Drive"*, SPE Journal, **June**, 228-231.
- Firoozabadi, A., 1999a, *Thermodynamics of Hydrocarbon Reservoirs*, McGraw-Hill ed., New York.
- Firoozabadi, A., 2001, *Mechanisms of Solution Gas Drive in Heavy Oil Reservoirs*, Journal of Canadian Petroleum Technology, **40**(3), 15-20.
- Firoozabadi, A., Aronson, A., 1999b, *Visualization and Measurement of Gas Evolution and Flow of Heavy Oil in Porous Media*, SPE Reservoir Evaluation and Engineering, **2**(6), 550-557.
- Firoozabadi, A., Kashchiev, D., 1996, *Pressure and Volume Evolution During Gas Phase Formation in Solution Gas Drive*, SPE Journal, **September**, 219-227.
- Firoozabadi, A., Ottesen, B., Mikkelsen, M., 1992, *Measurements of Supersaturation and Critical Gas Saturation*, SPE Formation Evaluation, **December**, 337-344.
- Fordedal, H., Schildberg, Y., Sjoblom, J., Volle, J.L., 1996, *Crude oil emulsions in high electric fields as studied by dielectric spectroscopy. Influence of interaction between commercial and indigenous surfactants*, Colloids and Surfaces, A, **106**, 33-47.

RÉFÉRENCES

- Franc, J.P., Avellan, F., Belahadji, B., Billard, J.Y., Briançon-Marjollet, L., Fréchou, D., Fruman, D.H., Karimi, A., Kueny, J.L., Michel, J.M., 1995, *La Cavitation: Mécanismes Physiques et Aspects Industriels*, Presses Universitaires de Grenoble ed., Grenoble.
- Fredd, C.N., Fogler, H.S., 1998, *Influence of Influence of Transport and Reaction on Wormhole Formation in Porous Media*, AIChE Journal, **44**(9), 1933-1949.
- Friedmann, F., Chen, W.H., Gauglitz, P.A., 1991, *Experimental and Simulation Study of High-Temperature Foam Displacement in Porous Media*, SPE Reservoir Engineering, **February**, 37-45.
- Golfier, F., Zarcone, C., Bazin, B., Lenormand, R., Lasseux, D., Quintard, M., 2002, *On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium*, Journal of Fluid Mechanics, **457**, 213-254.
- Griffith, P., Wallis, J.D., 1960, *The Role of Surface Conditions in Nucleate Boiling*, Chemical Engineering Progress, Symposium Series, **56**(30), 49-63.
- Hénaut, I., Barré, L., Argillier, J.-F., Brucy, F., Bouchard, R., 2001, *Rheological and structural properties of heavy crude oils in relation with their asphaltenes content*, SPE 65020 Oilfield Chemistry, Houston, February 13-16.
- Heny, E., Fradin, C., Lago, M., Kamp, A., 2001, *Visualization Study During Depletion Experiments of Venezuelan Heavy Oils Using Glass Micromodels Doped with Clay*, V Latin American and Caribbean Congress on Fluid Mechanics, Caracas, Venezuela, May 14-17.
- Hirasaki, G.J., 1989, *The Steam-Foam Process*, Journal of Petroleum Technology, **May**.
- Hirasaki, G.J., Lawson, J.B., 1985, *Mechanisms of Foam Flow in Porous Media: Apparent Viscosity in Smooth Capillaries*, SPE Journal, **April**, 176-190.
- Hirasaki, G.J., O'Meara Jr., D.J., Rohan, J.A., 1988, *Centrifuge Measurements of Capillary Pressure: Part 2 - Cavitation*, SPE 18592 Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 2-5.
- Hong, J., Woo, H.S., 1985, *Application of the Fractional Derivatives Method to Bubble Growth/Dissolution Processes with or without First-Order Chemical Reaction*, AIChE Journal, **31**(10), 1695-1706.
- Huerta, M., Otero, C., Rico, A., Jiménez, I., Mirabal, M., Rojas, G., 1996, *Understanding Foamy Oil Mechanisms for Heavy Oil Reservoirs During Primary Production*, SPE 36749 Annual Technical Conference and Exhibition, Denver, Colorado, October 6-9.
- Islam, M.R., Chakma, A., 1990, *Mechanics of Bubble Flow in Heavy Oil Reservoirs*, SPE 20070 60th California Regional Meeting, Ventura, California, April 4-6 1990.
- Islam, M.R., Paddock, J., 1999, *A New Equation of State for Crude Oils with Microbubbles*, CSPG\CIM Petroleum Society Joint Convention, Calgary, Canada, June 14-18.
- Jaffrennou-Laroche, C., 1999, *Déplacements triphasiques en milieu poreux de mouillabilité hétérogène*, Thèse de Doctorat, Université Paris XI, Paris.
- Johnson, D.O., Stebe, K.J., 1994, *Oscillating Bubble Tensiometry: A Method for Measuring the Surfactant Adsorptive-Desorptive Kinetics and Surface Dilational Viscosity*, Journal of Colloid and Interface Science, **168**, 21-31.

- Johnson, D.O., Stebe, K.J., 1996, *Experimental Confirmation of The Oscillating Bubble Technique with Comparison to the Pendant Bubble Method: The Adsorption Dynamics of 1-Decanol*, Journal of Colloid and Interface Science, **168**, 526-538.
- Jones, S.F., Evans, G.M., Galvin, K.P., 1999a, *Bubble Nucleation from Gas Cavities: A Review*, Advances in Colloid and Interface Science, **80**(1), 27-50.
- Jones, S.F., Evans, G.M., Galvin, K.P., 1999b, *The Cycle of Bubble Production from a Gas Cavity in a Supersaturated Solution*, Advances in Colloid and Interface Science, **80**(1), 51-84.
- Jones, T.J., Neustadter, E.L., Whittingham, K.P., 1978, *Water-in-Crude Oil Emulsion Stability and Emulsion Destabilization by Chemical Demulsifiers*, Journal of Canadian Petroleum Technology, **17**(2), 100-108.
- Joseph, D.D., Kamp, A.M., Bai, R., 2002a, *Modeling Foamy Oil Flow in Porous Media*, International Journal of Multiphase Flow, **accepted**.
- Joseph, D.D., Kamp, A.M., Bai, R., 2002b, *Modeling Foamy Oil Flow in Porous Media II: Nonlinear Relaxation Time Model of Nucleation*, International Journal of Multiphase Flow, **submitted**.
- Kamath, J., Boyer, R.E., 1995, *Critical Gas Saturation and Supersaturation in Low-Permeability Rocks*, SPE Formation Evaluation, **December**, 247-253.
- Kamp, A.M., Heny, C., Andarcia, L., Lago, M., Rodriguez, A., 2001a, *Experimental Investigation of Foamy Oil Solution Gas Drive*, SPE 69725 International Thermal Operations and Heavy Oil Symposium, Porlamar, Margarita Island, Venezuela, March 12-14.
- Kamp, A.M., Joseph, D.D., Bai, R., 2001b, *A New Modeling Approach for Heavy Oil Flow in Porous Media*, SPE 69720 International Thermal Operations and Heavy Oil Symposium, Porlamar, Margarita Island, Venezuela, March 12-14.
- Kashchiev, D., 2000, *Nucleation : Basic Theory with Applications*, Butterworth Heinemann ed., Oxford.
- Kashchiev, D., Firoozabadi, A., 1993, *Kinetics of the Initial Stage of Isothermal Gas Phase Formation*, Journal of Chemical Physics, **98**(6), 4690-4699.
- Kennedy, H.T., Olson, C.R., 1952, *Bubble Formation in Supersaturated Hydrocarbon Mixture*, Transactions AIME, **195**, 271-278.
- Khatib, Z.I., Hirasaki, G.J., Falls, A.H., 1988, *Effects of capillary pressure on coalescence and phase mobilities in foams flowing through porous media*, SPE Reservoir Engineering, **August**, 919-934.
- Kortekaas, T.F.M., van Poelgeest, F., 1991, *Liberation of Solution Gas During Pressure Depletion of Virgin and Water-Out Oil Reservoirs*, SPE Reservoir Engineering, **August**, 329-335.
- Kovscek, A.R., Patzek, T.W., Radke, C.J., 1997, *Mechanistic Foam Flow Simulation in Heterogeneous and Multidimensional Porous Media*, SPE Journal, **December**, 511-526.
- Kovscek, A.R., Radke C.J., 1994, *Fundamentals of Foam Transport in Porous Media*, in *Foams : Fundamentals and Applications in the Petroleum Industry*, L. L. Schramm Ed., American Chemical Society, Washington (D.C.), pp 115-163.

RÉFÉRENCES

- Kraus, W., McCaffrey, W., Boyd, G., 1993, *Pseudo-Bubble Point Model for Foamy Oils*, CIM 45 CIM Annual Technical Meeting, Calgary, Canada, May 9-12.
- Kumar, R., Pooladi-Darvish, M., 2000, *An investigation into enhanced recovery under solution gas drive in heavy oil reservoirs*, SPE 59336 SPE\DOE Improved Oil Recovery Symposium, Tulsa, Oklahoma, April 3-5.
- Kumar, R., Pooladi-Darvish, M., 2001a, *Effect of Viscosity and Diffusion Coefficient on the Kinetics of Bubble Growth in Solution-Gas Drive in Heavy Oil*, Journal of Canadian Petroleum Technology, **40**(3), 30-37.
- Kumar, R., Pooladi-Darvish, M., 2001b, *Solution-Gas Drive in Heavy Oil: Viscosity Effect on Gas Relative Permeability*, CIM 152 CIM Annual Technical Meeting, Calgary, Canada, June 12-14.
- Lago, M., Gomes, R., Huerta, M., 2000, *Visualization Study During Depletion Experiments of Venezuelan Heavy Oils Using Glass Micromodels*, 56 CIM Annual Technical Meeting, Calgary, Canada, June 4-8.
- Lakatos, I., Bauer, K., Lakatos-Szabó, J., Puskás, S., Palásthy, G., Trömböczki, S., Kosztin, B., 1999, *Injection of Lean Gases into Light Oil Reservoirs: Interfacial Aspects*, SPE 56605 Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 3-6.
- Langevin, D., 1998, *La Coalescence*, Bulletin de la Société Française de Physique, **115**(Juillet), 9-13.
- Langevin, D., 1999, *Surface Energy and Surface Rheology Relation to Foam Properties*, in *Foams and Emulsions*, J. F. Sadoc and N. Rivier Eds., Kluwer Academic, Dordrecht; Boston (Mass.); London, Vol. Series E, Applied Sciences # 355, pp 595-613.
- Langevin, D., Saint-Jalmes, A., Durand, M., Safouane, M., 2002, *Les Mousses*, Bulletin de la Société Française de Physique, **134**(mai), 11-16.
- Lebel, J.P., 1994, *Performance Implications of Various Reservoir Access Geometries*, 11th Annual Heavy Oil & Oil Sands Technical Symposium, Calgary, Canada, March 2.
- Lee, H.S., Merte, H., Jr., 1996, *Spherical Vapor Bubble Growth in Uniformly Superheated Liquids*, International Journal of Heat and Mass Transfer, **39**(12), 2427-2447.
- Lenormand, R., 1999, *Visualization of Flow Patterns in 2-D Model Network*, Experimental Methods in the Physical Sciences, **35**, 43-68.
- Lenormand, R., Touboul, E., Zarcone, C., 1988a, *Numerical Models and Experiments on Immiscible Displacements in Porous Media*, Journal of Fluid Mechanics, **189**, 165-187.
- Lenormand, R., Zarcone, C., 1988b, *Physics of Blob Displacement in a Two-Dimensional Porous Medium*, SPE Formation Evaluation, **March**, 271-278.
- Levich, V.G., 1962, *Physicochemical Hydrodynamics*, Prentice-Hall ed., New York.
- Li, X., Yortsos, Y.C., 1991, *Visualization and Numerical Studies of Bubble Growth during Pressure Depletion*, SPE 22589 66th Annual Technical Conference and Exhibition, Dallas, Texas, October 6-9.
- Li, X., Yortsos, Y.C., 1993, *Critical Gas Saturation: Modeling and Sensitivity Studies*, SPE 26662 68th Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 3-6.

- Li, X., Yortsos, Y.C., 1994, *Bubble Growth and Stability in an Effective Porous Medium*, *Physics of Fluids*, **6**(5), 1663-1676.
- Li, X., Yortsos, Y.C., 1995a, *Theory of Multiple Bubble Growth in Porous Media by Solute Diffusion*, *Chemical Engineering Science*, **50**(8), 1247-1271.
- Li, X., Yortsos, Y.C., 1995b, *Visualization and Simulation of Bubble Growth in Pore Network*, *AIChE Journal*, **41**(2), 214-222.
- Liger-Belair, G., 2001, *Histoire Illustrée d'une Bulle de Champagne*, *Bulletin de la Société Française de Physique*, **127**, 9-11.
- Lin, S.Y., McKeigue, K., Maldarelli, C., 1990, *Diffusion-Controlled Surfactant Adsorption Studied by Pendant Drop Digitization*, *AIChE Journal*, **36**(12), 1785-1795.
- Liu, Y.C., Sheu, S.H., Storm, D.A., 1995, *Fractal Structure of Asphaltenes in Toluene*, *Fuel*, **74**(9), 1352-1356.
- Loh, W., Mohamed, R.S., Ramos, A.C.S., 1999, *Aggregation of Asphaltenes Obtained from Brazilian Crude Oil in Aromatic Solvent*, *Petroleum Science and Technology*, **17**(1-2), 147-163.
- Loughead, D., Saltuklaroglu, M., 1992, *Lloydminster Heavy Oil Production-Why so Unusual?*, 9th Annual Heavy Oil and Oil Sand Symposium, Calgary, Canada, March 11.
- Lubetkin, S.D., 1994, *Bubble nucleation and Growth*, in *Controlled Particle, Droplet and Bubble Formation*, D. J. Wedlock Ed., Butterworth-Heinemann Ltd, Oxford, pp 159-190.
- Lucassen, J., Giles, D., 1975, *Journal of Chemical Society Faraday Transaction i*, **71**.
- Lucassen-Reynders, E.H., Cagna, A., Lucassen, J., 2001, *Gibbs Elasticity, Surface Dilational Modulus and Diffusional Relaxation in Nonionic Surfactant Monolayers*, *Colloids and Surfaces, A*, **186**, 63-72.
- Maini, B., 1998, *Is It Futile to Measure Relative Permeability for Heavy Oil Reservoirs?*, *Journal of Canadian Petroleum Technology*, **32**(4), 56-62.
- Maini, B., 1999a, *Laboratory Evaluation of Solution Gas Drive Recovery Factors in Foamy Heavy Oil Reservoirs*, 99-44 CSPG and Petroleum Society Joint Convention, Calgary, Canada, June 14-18.
- Maini, B., Sheng, J.J., Nicola, F., 1995, *Laboratory Investigation of Foamy Oil Flow for Improved Primary Production*, PRI, Calgary, Canada.
- Maini, B.B., 1999b, *Foamy Oil Flow in Primary Production of Heavy Oil under Solution Gas Drive*, SPE 56541 Annual Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 3-6.
- Maini, B.B., 2001, *Foamy-Oil Flow*, *Journal of Petroleum Technology*, **October**, 54-64.
- Maini, B.B., Sarma, H.K., George, A.E., 1993, *Significance of Foamy Oil Behaviour in Primary Production of Heavy Oils*, *Journal of Canadian Petroleum Technology*, **32**(9), 50-54.
- McDougall, S.R., Mackay, E.J., 1998, *The Impact of Pressure-Dependent Interfacial Tension and Buoyancy Forces Upon Pressure Depletion in Virgin Hydrocarbon Reservoir*, *Trans IChemE*, **76**(Part A), 553-560.

RÉFÉRENCES

- McLean, J.D., Kilpatrick, P.K., 1997a, *Comparaison of Precipitation and Extrography in the Fractionation of Crude Oil Residua*, Energy & Fuels, **11**, 570-585.
- McLean, J.D., Kilpatrick, P.K., 1997b, *Effects of asphaltene aggregation in model heptane-toluene mixtures on stability of water-in-oil emulsions*, Journal of Colloid and Interface Science, **196**, 23-34.
- McLean, J.D., Kilpatrick, P.K., 1997c, *Effects of Asphaltene Solvency on Stability of Water-in-Crude-Oil Emulsions*, Journal of Colloid and Interface Science, **189**, 242-253.
- Miller, R., Kretzschmar, G., 1991, *Adsorption Kinetics of surfactants at fluid interfaces*, Advances in Colloid and Interface Science, **37**, 97-121.
- Miller, R.a., 2000, *Surfactant Adsorption Kinetics and Exange of Matter for Surfactant Molecules with Changing Orientation Within the Adsorption Layer*, in *Emulsions, Foams and Thin Films*, P. Kumar and K. L. Mittal Eds., Marcel Dekker, New York, pp 313-327.
- Mirabal, M., Gordillo, R., Rojas, G., Rodriguez, H., Huerta, M., 1996a, *Impact of Foamy Oil Mechanism on the Hamaca Oil Reserves*, SPE 36140 4th Latin American and Caribbean Petroleum Engineering Conference, Port-of-Spain, Trinidad & Tobago, April 23-26.
- Mirabal, M., Gordillo, R., Rojas, G., Rodriguez, H., Sanchez, R., 1996b, *Integrated Study for the Characterization and Development of the MFB-53 Reservoir, North Hamaca-Orinoco Belt, Venezuela*, SPE 36095 4th Latin American and Caribbean Petroleum Engineering Conference, Port-of-Spain, Trinidad & Tobago, April 23-26.
- Monroy, F., Giermanska Khan, J., Langevin, D., 1998, *Dilational viscoelasticity of surfactant monolayers*, Colloids and Surfaces, A, **143**, 251-260.
- Mori, B.K., Baines, W.D., 2001, *Bubble Departure from Cavities*, International Journal of Heat and Mass Transfer, **44**(4), 771-783.
- Moulu, J.C., 1989a, *Solution-Gas Drive: Experiments and Simulation*, Journal of Petroleum Science and Engineering, **2**, 379-386.
- Moulu, J.-C., Longeron, D., 1989b, *Solution-Gas drive : Experiments and Simulation*, Fifth European Symposium on improved oil recovery, Budapest, Hungary, April.
- Ng, K.M., Davis, H.T., Scriven, L.E., 1978, *Visualization of Blob Mechanics in Flow Through Porous Media*, Chemical Engineering Science, **33**, 1009-1017.
- Pan, H., Firoozabadi, A., 1998, *Thermodynamic Micellization Model for Asphaltene Aggregation and Precipitation in Petroleum Fluids*, SPE Production & Facilities, **May**, 118-127.
- Parlar, M., Yortsos, Y.C., 1989, *Nucleation and Pore Geometry Effects in Capillary Desorption Processes in Porous Media*, Journal of Colloid and Interface Science, **132**(2), 425-443.
- Patzek, T.W., 1988, *Description of Foam Flow Porous Media by the Population Balance Method*, Surfactant-Based Mobility Control, ACS Symposium, Ann Arbor, MI, June 21-27.
- Payvar, P., 1987, *Mass Transfer-controlled Bubble Growth During Rapid Decompression of a Liquid*, International Journal of Heat and Mass Transfer, **30**(4), 699-706.

- Pérez, J.P., Romulus, A.M., 1993, *Thermodynamique: Fondements et Applications*, Masson ed., Paris.
- Pfeiffer, J.P., Saal, R.N., 1940, *Asphaltic Bitumens as a Colloidal System*, Journal of Physical Chemistry, **44**, 139.
- Pomès, V., Bazin, B., Golfier, F., Zarcone, C., Lenormand, R., Quintard, M., 2001, *On the use of upscaling methods to describe acid injection in carbonates*, SPE 71511 Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, Louisiana, 30 September-3 October.
- Pooladi-Darvish, M., Firoozabadi, A., 1999, *Solution-gas Drive in Heavy Oil Reservoirs*, Journal of Canadian Petroleum Technology, **38**(4), 54-61.
- Quintard, M., Whitaker, S., 1994, *Convection, Dispersion and Interfacial Transport of Contaminants: Homogeneous Porous Media*, Advances in Water Resources, **17**(4), 221-239.
- Ramos, A.C.S., Haraguchi, L., Notrispe, F.R., Loh, W., Mohamed, R.S., 2001, *Interfacial and Colloidal Behavior of Asphaltenes Obtained from Brazilian Crude Oils*, Journal of Petroleum Science and Engineering, **32**, 201-216.
- Readey, D.W., Cooper, A.R., Jr., 1966, *Molecular diffusion with a Moving Boundary and Spherical Symmetry*, Chemical Engineering Science, **21**, 917-922.
- Renard, G., Nauroy, J.-F., Deruyter, C., Moulu, J.C., Sarda, J.P., Le Romancer, J.F., 2000, *Production froide des huiles visqueuses*, Oil & Gas Science and Technology, **55**(1), 35-66.
- Rogel, E., Leòn, O., Espidel, J., González, J., 2001, *Asphaltene Stability in Crude Oils*, SPE Production & Facilities, **16**(2), 84-88.
- Sahni, A., Gadelle, F., Kumar, M., Kovscek, A., Tomutsa, L., 2001, *Experiments and Analysis of Heavy Oil Solution Gas Drive*, SPE 71498 Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, Louisiana, 30 September-3 October.
- Salter, S., Mohanty, K.K., 1982, *Multiphase Flow in Porous Media: 1. and Modeling Macroscopic Observations*, SPE 57th Annual Fall Technical Conference and Exhibition, New Orleans, LA., September 26-29.
- Sarma, H., Maini, B., 1992, *Role of Solution Gas In Primary Production of Heavy Oils*, 2nd Latin American Petroleum Engineering Conference II LAPEC, Caracas, Venezuela, March 8-11.
- Scherpenisse, W., Wit, K., Zweers, A.E., Shoei, G., Wolfswinkel, A.V., 1994, *Predicting Gas Saturation Buildup During Depressurisation of a North Sea Oil Reservoir*, SPE 28842 European Petroleum Conference, London, U.K., October 25-27.
- Scriven, L.E., 1959, *On the Dynamics of Phase Growth*, Chemical Engineering Science, **10**(1/2), 1-13.
- Serrien, G., Geeraerts, G., Ghosh, L., Joos, P., 1992, *Dynamic Surface Properties of Adsorbed Protein Solutions: BSA, Casein and Buttermilk*, Colloids and Surfaces, **68**, 219-233.
- Serrien, G., Joos, P., 1990, *Dynamic Surface Properties of Aqueous Sodium Dioctyl Sulfosuccinate Solutions*, Journal of Colloid and Interface Science, **139**(1), 149-159.
- Sheng, J.J., 1997, *Foamy Oil Flow in Porous Media*, PhD Dissertation, University of Alberta, Edmonton, Canada.

RÉFÉRENCES

- Sheng, J.J., Hayes, R.E., Maini, B.B., Tortike, W.S., 1999a, *Modelling Foamy Oil Flow in Porous Media*, *Transport in Porous Media*, **35**(2), 227-258.
- Sheng, J.J., Maini, B.B., Hayes, R.E., Tortike, W.S., 1999b, *Critical Review of Foamy Oil Flow*, *Transport in Porous Media*, **35**(2), 157-187.
- Sheu, E.Y., Detar, M.M., Storm, D.A., 1994, *Surface Activity and Dynamics of Asphaltenes*, in *Asphaltene Particles in Fossil Fuel Exploration, Recovery, Refining, and Production Processes*, M. K. Sharman and T. F. Yen Eds., Plenum Press, New York, pp .
- Sheu, E.Y., Detar, M.M., Storm, D.A., Deciano, S.J., 1992, *Aggregation and Kinetics of Asphaltenes in Organic Solvents*, *Fuel*, **71**(3), 299-302.
- Sheu, E.Y., Storm, D.A., Detar, M.M., 1991, *Asphaltenes in Polar Solvents*, *Journal of Non-Crystalline Solids*, **131-33**, 341-347.
- Sheu, E.Y., Storm, D.A., Shields, M.B., 1995, *Adsorption Kinetics of Asphaltenes at Toluene/Acid Solution Interface*, *Fuel*, **74**(10), 1475-1479.
- Smith, G.E., 1988, *Fluid Flow and Sand Production in Heavy-Oil Reservoirs under Solution-Gas Drive*, *SPE Reservoir Engineering*, **May**, 169-180.
- Solanski, S., Metwally, M., 1995, *Heavy Oil Reservoir Mechanisms, Lindbergh and Frog Lake Fields, Alberta: pt.2: Geomechanical evaluation*, SPE 30249 International Heavy Oil Symposium, Calgary, Alberta, Canada, June 19-21.
- Speight, J.G., 1999, *The Chemical and Physical structure of Petroleum: Effects on Recovery Operations*, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, **22**, 3-15.
- Storm, D., Sheu, E.Y., 1995, *Characterization of Colloidal Asphaltenic Particles in Heavy Oil*, *Fuel*, **74**(8), 1140-1145.
- Storm, D.A., Sheu, E.Y., Detar, M.M., 1993, *Macrostructure of Asphaltenes in Vacuum Residue By Small-Angle X-Ray Scattering*, *Fuel*, **72**(7), 977-981.
- Strassner, J.E., 1968, *Effect of pH on Interfacial Films and Stability of Crude Oil-Water Emulsions*, SPE 1939 42nd Annual Full Meeting, Houston, Texas, October 1-4 1967.
- Stubos, A.K., Poulou, S., 1999, *Oil Recovery Potential From Fractured Reservoirs by Mass Transfer Processes*, SPE 56415 Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 3-6.
- Takahashi, K.M., Alkire, R.C., 1988, *Mass Transfer from Dispersed Bubble to Electrolyte Solution in Packed Beds*, *AIChE Journal*, **34**(9), 1505-1510.
- Tang, G., Firoozabadi, A., 2001, *Effect of GOR, Temperature, and Initial Water Saturation on Solution-Gas Drive*, SPE 71499 Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, Louisiana, 30 September-3 October.
- Tang, G.Q., Firoozabadi, A., 1999, *Gas and Liquid-Phase Relative Permeabilities for Cold Production from Heavy Oil Reservoirs*, SPE 56540 Annual Conference and Exhibition, Houston, Texas, October 3-6.
- Torres, J.A., Kamp, A.M., Rodriguez, A., Hammond, P.C., 2001, *Simulation of the Flow of Heavy Oils in Porous Media under Solution Gas Drive*, V Latin American and Caribbean Congress on Fluid Mechanics, Caracas, Venezuela, May 14-17.
- Treinen, R.J., Ring, W.W., Spence, A.P., Mirabal, M., Huerta, M., 1997, *Hamaca: Solution Gas Drive in a Heavy Oil Reservoir, Experimental Results*, SPE 39031 Latin

- American and Caribbean Petroleum Engineering Conference and Exhibition, Rio de Janeiro, Brazil, 30 August-3 September.
- Tsimpanogiannis, I.N., Yortsos, Y.C., 2001, *An Effective Continuum Model for the Liquid-To-Gas Phase Change in a Porous Medium Driven by Solute Diffusion: I. Constant Pressure Decline Rates*, SPE 71502 Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, Louisiana, 30 September-3 October.
- Turta, A.T., Maini, B.B., Jackson, C., 2001, *Mobility of Gas-in-Oil Dispersions in Enhanced Solution Gas Drive (Foamy Oil) Exploitation of Heavy Oil Reservoirs*, CIM 149 CIM Annual Technical Meeting, Calgary, Canada, June 12-14.
- Urgelli, D., Durandau, M., Foucault, Besnier, J.F., 1999, *Investigation of foamy oil effect from laboratory experiments*, SPE 54083 International Thermal Operations and Heavy Oil Symposium, Bakersfield, California, March 17-19.
- Valavanides, N.S., Constantinides, G.N., Payatakes, A.C., 1998, *Mechanistic Model of Steady-State Two-Phase Flow in Porous Media Based on Ganglion Dynamics*, Transport in Porous Media, **30**(3), 267-299.
- Verbist, G., Weaire, D., Phelan, R., 1999, *Rheology and Drainage of Liquid Foams*, in *Foams and Emulsions*, J. F. Sadoc and N. Rivier Eds., Kluwer Academic, Dordrecht; Boston (Mass.); London, Vol. Series E, Applied Sciences # 355, pp 595.
- Vrij, A., 1966, *Possible mechanism for the spontaneous rupture of thin, free liquid films*, Discussions of the Faraday Society, **42**(43), 23-32.
- Wang, C.H., Dhir, V.K., 1993a, *Effect of Surface Wettability on Active Nucleation Site Density During Pool Boiling of Water on a Vertical Surface*, Journal of Heat Transfer, **August**, 659-669.
- Wang, C.H., Dhir, V.K., 1993b, *On the Gas Entrapment and Nucleation Site Density During Pool Boiling of Saturated Water*, Journal of Heat Transfer, **August**, 670-679.
- Wang, Y., 1997, *Sand Production and Foamy Oil Flow in Heavy-Oil Reservoirs*, SPE 37553 International Thermal Operation & Heavy Oil Symposium, Bakersfield, California, February 10-12.
- Ward, C.A., Balakrishnan, A., Hooper, F.C., 1970, *On the Thermodynamics of Nucleation in Weak Gas-Liquid Solutions*, Transactions of the ASME, **97**, 695-704.
- Ward, C.A., Levart, E., 1984, *Conditions for stability of bubble nuclei in solid surfaces contacting a liquid-gas solution*, Journal of Applied Physics, **56**(2), 491-500.
- Ward, C.A., Tikuisis, P., Venter, R.D., 1982, *Stability of bubble in a closed volume of liquid-gas solution*, Journal of Applied Physics, **53**(9), 6076-6084.
- Weaire, D., Hutzler, S., 1999, *The Physics of foams*, Oxford University Press ed., Oxford.
- Wilkins, M.D., Abriola, L.M., Pennell, K.D., 1995, *An Experimental Investigation of Rate-limited Nonaqueous Phase Liquid Volatilization in Unsaturated Porous Media: Steady State Mass Transfer*, Water Resources Research, **31**(9), 2159-2172.
- Wilt, P.M., 1986, *Nucleation Rates and Bubble Stability in Water-Carbon Dioxide Solutions*, Journal of Colloid and Interface Science, **112**(2), 530-538.
- Winterton, R.H.S., 1977, *Nucleation of Boiling and Cavitation*, Journal of Physics. D. Applied Physics, **10**, 2041-2056.

RÉFÉRENCES

- Wu, W.-J., Wang, P., Delshad, M., Wang, C., Pope, G.A., Sharma, M.M., 1998, *Modeling Non-Equilibrium Mass Transfer Effects for a Gas Condensate Field*, SPE 39746 Asia Pacific Conference on Integrated Modeling for Asset Management, Kuala Lumpur, Malaysia, March 23-24.
- Xu, Y., Koga, Y., Strausz, O.P., 1995, *Characterization of Athabasca Asphaltenes by Small-Angle X-Ray Scattering*, Fuel, **74**(7), 960-964.
- Yang, S.R., Kim, R.H., 1988, *A mathematical Model of the Pool Boiling Nucleation Site Density in terms of the Surface Characteristics*, International Journal of Heat and Mass Transfer, **31**(6), 1127-1135.
- Yarranton, H.W., Alboudwareij, H., Jakher, R., 2000a, *Investigation of Asphaltene Association with Vapor Pressure Osmometry and Interfacial Tension Measurements*, Industrial and Engineering Chemistry Research, **39**(8), 2916-2924.
- Yarranton, H.W., Hussein, H., Masliyah, J.H., 2000b, *Water in Hydrocarbon Emulsions Stabilized by Asphaltenes at Low Concentrations*, Journal of Colloid and Interface Science, **228**, 52-63.
- Yen, T.F., 1974, *Structure of Petroleum Asphaltene and Its Significance*, Energy Sources, 447.
- Yeung, A., Dabros, T., Masliyah, J., Czarnecki, J., 2000, *Micropipette: A New Technique in Emulsion Research*, Colloids and Surfaces, A, **174**, 169-181.
- Yortsos, Y.C., 1997, *Discussion of "Pressure and Volume Evolution During Gas Phase Formation in Solution Gas Drive"*, SPE Journal, **June**, 223-227.
- Yortsos, Y.C., Parlar, M., 1989, *Phase Change in Binary Systems in Porous Media: Application to Solution-Gas Drive*, SPE 19697 64th Annual Technical Conference and Exhibition of the Society of Petroleum Engineers, San Antonio, Texas, October 8-11.
- Yount, D.E., Strauss, R.H., 1976, *Bubble Formation in Gelatin: A Model for Decompression Sickness*, Journal of Applied Physics, **47**(11), 5081-5089.
- Zaki, N., Schorling, P.C., Rahimian, I., 2000, *Effect of Asphaltene and Resins on the Stability of Water-in-Waxy Oil Emulsions*, Petroleum Science and Technology, **18**(7-8), 945-963.