Ecoulements de mousse pour la dépollution d'aquifères

Estefania del Campo Estrada

▶ **To cite this version:**

Estefania del Campo Estrada. Ecoulements de mousse pour la dépollution d'aquifères. Mécanique [physics]. Université de Bordeaux, 2014. Français. NNT : 2014BORD0101 . tel-01127350

HAL Id: tel-01127350
https://theses.hal.science/tel-01127350

Submitted on 7 Mar 2015

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.

THÈSE PRÉSENTÉE

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR DE

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

SPÉCIALITÉ : MÉCANIQUE

Par Estefanía DEL CAMPO ESTRADA

Écoulements de mousse pour la dépollution d'aquifères

Sous la direction de : Henri BERTIN

Soutenue le 11 Juillet 2014

Devant la commission d'examen formée de :

M. Pacelli ZITHA, Professeur, Delft University of Technology ..... Rapporteur
M. Daniel BROSETA, Professeur, Université de Pau et des Pays de l'Adour ..... Rapporteur
M. Michel QUINTARD, Directeur de Recherche, CNRS..... Examinateur
M. Fernando LEAL-CALDERON, Professeur, ENSCBP IPB ..... Examinateur
M. Olivier ATTEIA, Professeur, ENSEGID IPB ..... Examinateur
M. Henri BERTIN, Directeur de Recherche, CNRS ..... Examinateur

Ce travail a été réalisé grâce au soutien financier de la Fondation InnovaSol

Redonnons au sol sa valeur

Titre :
Écoulements de mousse pour la dépollution d'aquifères

Résumé :

La pollution d'aquifères par des hydrocarbures est très persistante et difficile à traiter, devenant un enjeu majeur pour l'environnement en raison de l'effet négatif sur la santé humaine. La génération de mousse *in situ* combinée au lavage de sols est une technique de dépollution innovante, permettant un meilleur contrôle de la mobilité des fluides dans des formations hétérogènes. Le but de cette méthode est de bloquer l'écoulement dans les couches à forte perméabilité pour améliorer l'efficacité de balayage des strates peu perméables.

Le mémoire se divise en deux parties principales décrivant une étude expérimentale et une étude numérique.

Une sélection préalable de tensioactifs respectueux de l'environnement à été réalisée sur la base de leur moussabilité. Le sucrose laurate (émulsifiant alimentaire) a été retenu et comparé avec un tensioactif dit classique. Des tests sur colonnes 1-D ont permis d'étudier l'influence de la perméabilité, du type de tensioactif et de la qualité de la mousse sur le facteur de résistance à la mobilité du gaz. Les résultats, interprétés à l'aide de la pression capillaire, révèlent deux régimes d'écoulement, correspondants aux deux textures de mousse : « *weak* » et « *strong* ». Des expériences sur pilotes 2-D hétérogènes ont permis de visualiser les différentes phases du processus de remédiation et de comparer l'efficacité de balayage avec et sans une région bloquée par de la mousse.

La partie modélisation comprend une simulation numérique des tests sur colonne 1-D en utilisant le code UTCHEM et une étude de sensibilité des paramètres les plus importants du modèle, ainsi qu'une modélisation des tests de traçage sur pilote 2-D avec le code MODFLOW.

Mots clés :

Mousse – Milieu poreux – Tensioactif – Dépollution d'aquifères – Étude expérimentale – Modélisation numérique

---

Unité de recherche :

Institut de Mécanique et d'Ingénierie de Bordeaux (I2M)
Département TREFLE
UMR CNRS 5295
Esplanade des Arts et Métiers,
33405 Talence Cedex
France

Title:
Foam flow for aquifer remediation

Abstract:

Aquifer pollution with hydrocarbons is very persistent and difficult to treat, becoming a major issue for the environment because of the negative effect on human health. In situ foam generation combined with soil washing is an innovative remediation technology that allows a better fluid mobility control in heterogeneous formations. The purpose of this method is to block the flow through the high permeability layers in order to improve the sweep efficiency of low permeability strata.

The thesis is divided into two main parts describing an experimental study and a numerical study.

A preliminary selection of environmentally-friendly surfactants was carried out on the basis of their foamability. Sucrose laurate (emulsifier from food industry) was selected and compared with a conventional surfactant. 1-D column tests were performed to study the influence of permeability, surfactant type and foam quality on the resistance factor. The results, interpreted using the capillary pressure, show two flow regimes, corresponding to the two foam textures: "weak" and "strong". Experiments on 2-D heterogeneous pilot allowed visualizing the different steps of the remediation process and comparing the sweep efficiency with and without a region blocked by foam.

The numerical part includes modeling 1-D column tests using UTCHEM, a sensitivity study of the most important parameters of the model, and a simulation of tracer tests on 2-D pilot using MODFLOW.

Keywords:

Foam – Porous media – Surfactant – Aquifer remediation – Experimental study – Numerical simulation

---

Research Unit:

Institut de Mécanique et d'Ingénierie de Bordeaux (I2M)
TREFLE department
UMR CNRS 5295
Esplanade des Arts et Métiers,
33405 Talence Cedex
France

Remerciements

Trois ans sont passés et c'est le moment de faire un point. Une thèse n'est pas seulement la réalisation d'un travail scientifique mais aussi une évolution personnelle. Pendant ce temps j'ai appris autant sur moi que sur les écoulements de mousse en milieu poreux, et tout cela n'aurais pu être possible sans le soutien des gens qui m'ont accompagné dans cette aventure, et que je vais remercier pour finir mon manuscrit et tourner la page d'une des plus belles étapes de ma vie.

Tout d'abord je remercie mon directeur de thèse, ***Henri Bertin****. J'ai eu beaucoup de chance d'avoir fait le projet de fin d'études sous ta direction et d'avoir pu continuer avec cette thèse. Cela a été un plaisir de travailler avec toi et de découvrir le fascinant monde des films minces, même si ma volonté de tout comprendre et mon « caractère espagnol » ont rendu la tâche parfois difficile …*

Je remercie également ***Olivier Atteia*** *que j'apprécie beaucoup, et qui m'a vu jour après jour pendant ces trois ans. Je suis très contente d'avoir pu travailler avec toi et d'être restée à l'ENSEGID. C'est grâce à toi que j'aime un peu plus (mais pas trop, il ne faut pas exagérer) la modélisation. Je n'oublierai pas les bons moments passés pendant tous les ~~vacances~~ congrès (oui, parce que comme tu dis, ma thèse porte sur le développement durable mais si l'on fait le bilan carbone ou de kerosène…).*

Je tiens à remercier les membres du jury, ***Michel Quintard****,* ***Daniel Brosetta****,* ***Pacelli Zitha*** *et* ***Fernando Leal – Calderón*** *(merci aussi de nous avoir guidé vers les sucroesters !), d'avoir accepté de juger mon travail et pour les échanges et les questions enrichissants.*

Je voudrais remercier ***Joanna Giermanska****, chercheuse au Centre de Recherche Paul Pascal, pour son aide désintéressée avec l'utilisation du goniomètre.*

Je remercie énormément la ***Fondation InnovaSol*** *de m'avoir permis de réaliser cette thèse dans de très bonnes conditions. Je remercie également tous les membres de la fondation et du comité scientifique, spécialement* ***Jean Luis Crabos*** *et* ***Yves Le Corfec*** *d'avoir suivi mon travail avec grand intérêt.*

Je remercie le personnel du laboratoire I2M - TREFLE, en particulier ***Audrey Duphil*** *pour son aide au cours des expériences ;* ***Alain Sommier*** *pour ses connaissances de LabView ;* ***Alain Oschenhofer*** *pour son travail d'usinage ; à* ***Muriel Ezan - Bore*** *pour toutes les gestions administratives et à* ***Azita Ahmadi-Sénichault*** *pour sa sympathie et ses bons conseils ! Je remercie également les doctorants et postdoctorants, en particulier* ***Franck Nono****,* ***Stéphanie Bontemps****,* ***Cécile Gaboriau****,* ***José Luis Juarez****,* ***Mehrez Aganou****,* ***Louis Hernando, Elvire Tognisso*** *et* ***Tan Nguyen*** *pour leur sympathie !*

Je remercie également tout le personnel de l'ENSEGID pour son chaleureux accueil. Un merci tout particulier à ***Serge Galaup*** *pour sa sympathie et les « soirées DRX » en clandestinité ; à* ***Léa Pigot****, pour son aide et ses précieux conseils, à* ***Florence Bartholin****, pour les bons moments à la bibliothèque, à* ***Sébastien Thomas*** *pour l'aide (avec internet, imprimante, etc) et à* ***Michel Franceschi*** *pour sa bonne humeur et les breaks bonbons Haribo ! Un grand merci aux doctorants (et postdocs) :* ***Yohanna Stupar****,* ***Amélie Blondel****,* ***Jimmy Robinet****,* ***Johan Le Goff****,* ***Nazeer Asmael****,* ***Morgan Le Lous****,* ***Jean Rillard*** *(soirée salsa ? ^^),* ***Grégory Cohen****,* ***Jessy Jaunat****,* ***Elicia Verardo****,* ***Benoît Beguet****,* ***Yohann Cousquer, Hugo Delottier, Wei Feng, Amandine Kehil, Abdullah Almojel, Miloud***

***Chermali, Adel Jabir et Concepción Pla**. Un merci tout particulier pour **Manon Malaval**, **Rémy Jossiaume, Elsa Tournadour, Johnathan** (ou l'excellent Pierre Caillou de Rocher ^^) et **Nicolas Grasseau**, pour tous les repas, les soirées « banane + saint Thomas » et les potins… cela va me manquer ! Un grand merci pour mes collègues de bureau : **Fanny Coutelot**, cela a été un plaisir de passer ces trois ans avec toi, la période « 0% papotage au bureau » incluse ; **Alexandre Bordenave**, merci pour m'écouter et me faire rire quand ça ne va pas, mais surtout pour les bons moments pendant le roadtrip californien (on est at The Top of the World avec Thib et Marlène !) Au fait, n'oublie pas d'arroser les plantes ! ;-).*

*Je ne peux pas laisser de côté la Team InnovaSol. Je remercie **Florie Jousse**, pour son aide avec les manips et pour son soutien ; **Sarah Chahboub**, pour la bonne gestion et pour sa folie ; **Marian Montbrun**, pour l'aide à la conception et réalisation des expériences de laboratoire ; **Vivien Canac**, pour son travail avec les tests sur colonne et **Marius Draga** pour ses conseils et sa bonne humeur.*

*Je voudrais également remercier les participants des écoles d'été à Delft en Juin 2013 (Foam for EOR) et en Juillet 2014 (Chemical EOR). Un merci tout particulier à **José Alvarez** et à **Sebastien Vincent - Bonnieu** pour leur intérêt sur mes travaux de thèse. Merci beaucoup à **Chris Boeije**, c'est toujours un plaisir de retourner à Delft. Et un merci tout spécial pour Monsieur **Nick Ligtenbarg**, pour l'organisation, pour le joli badge (Need a postdoc, please help !), les « petits fours » et les « pains aux raisins ». Mais surtout pour les « coulisses » de l'école, j'espère que cela n'est que le début ;-)*

*Une petite pensée pour tous les gens que j'ai connu pendant l'école d'été ELyT à Sendai en 2012, en particulier à **Sophia Berkani**, **Changwei Zhou**, **Simon Tupin** et **Mehdi Djaloul**. Je garde des très bons souvenirs du temps que l'on a partagé entre baguettes, thé et sushi.*

*Un grand merci à mes amis de Bordeaux. **Antonio Rodríguez**, merci pour être toujours là, même quand les choses sont devenues difficiles. Un énorme merci à **Aurélie Pace**, grande amie, pour son soutien, les fous rires, pour lire mon manuscrit (qui pourrait être utile pour traiter les cas d'insomnie !) et surtout pour son amitié inconditionnelle. A **Daniella Guedes**, la première amie que j'ai eue en France et que j'apprécie énormément. C'est grâce à toi que je peux dire que la distance n'est pas importante. A **Thiago Neves**, pour sa folie et son amitié. A **Claudia** et **Fabien Rouault** pour leur amitié et pour remplir l'automne 2013 de fêtes. A **Ernesto Velázquez** pour m'apprendre une autre variété de l'espagnol, pour les découvertes gastronomiques et les conversations philosophiques à 5h du matin qui ont réussi à me remonter le moral ! A **Yohann Maheut**, pour son amitié et pour être un digne concurrent avec le nombre de congrès (ou kilomètres parcourus) pendant la thèse ! A **Violaine Ponsin**, pour les bons moments en Floride et à Bordeaux, il faut refaire une conférence ensemble ! Merci encore à tous mes amis d'ailleurs (**Beatriz Sánchez**, **Naiara Sangrador**, **Cristina Martín**, **Pablo Gómez**, **Ricardo Román**, **Marina Sánchez**, **Ting Feng**, **Diana Espinosa, Benoît Caillet**…)*

*Un grand merci au « guetto hispano ». A **Helena Rodriguez**, pour ses bons conseils et pour les soirées vernis « water marble » ! A **Marcos Herrero**, c'est grâce à toi que j'ai souri les derniers mois de rédaction. A **Aitor Sanzo**, qui à fini au Trefle (comme prévu…), pour toutes les soirées rue Brémontier ! A **Ingrid Goikoetxea**, pour les bons moments au « zamat » ; à « los parceros » **Lina Agudelo** et **Santiago Arroyave**, rendez-vous à « Locombia » pour danser le vrai reggaeton. A **Pauline Koulytchizky**, ma dernière coloc aux Arts et Métiers, pour la compréhension et le partage d'expériences ! A **Luis García** « el bata », merci pour les bons moments (on doit encore débroussailler la menthe pour*

préparer… du thé à la menthe n'est pas ?!) Et à mes chers voisins ***Abel***, ***Berza***, ***Anaid***, ***Andrés***, ***Ivonne, Jorge, Ernesto « pequeño »*** *e* ***Iván****.*

Enfin, je remercie à toute ***ma famille****. J'ai été élevée pour être une personne patiente, pour ne jamais se décourager, pour être constante et curieuse, enfin, sans le savoir, vous avez fait de moi une chercheuse ! Merci.*

Et merci à toi, qui lis ces lignes.

Table des matières

Chapitre 1. Introduction. Contexte général de l'étude 1

Chapitre 2. Généralités 7

1. Milieu poreux 7
   1.1. Échelles du milieu poreux 7
   1.2. Écoulements en milieu poreux 9
      1.2.1. Écoulements monophasiques 9
      1.2.2. Écoulements polyphasiques 14
2. Mousse 26
   2.1. Mousse hors milieu poreux 26
      2.1.1. Tensioactifs 26
      2.1.2. Structure et phénomènes impliqués dans la formation et stabilité des lamelles 30
      2.1.3. Stabilité de la mousse en présence d'huile 35
   2.2. Mousse en milieu poreux 38
      2.2.1. Adsorption de tensioactif 38
      2.2.2. Mécanismes de formation des lamelles 41
      2.2.3. Stabilité de la mousse en milieu poreux 42
      2.2.4. Régimes de mousse en milieu poreux à l'état stationnaire 46
      2.2.5. Modélisation des écoulements de mousse en milieu poreux 48
3. Mousse et remédiation de sols pollués 53
   3.1. Comportement de la mousse dans des milieux hétérogènes 53
      3.1.1. Blocage ou contrôle de mobilité 53
      3.1.2. Effet de communication entre les couches 54
   3.2. Application sur site de la technique mousse/solution de tensioactif 55
      3.2.1. Description du site de l'étude 56
      3.2.2. Description de la pollution 56
      3.2.3. Sélection du tensioactif 58
      3.2.4. Processus de dépollution 58
      3.2.5. Résultats et interprétation 59

Chapitre 3. Étude expérimentale 61

1. Moussabilité. Choix du tensioactif 61
   1.1. Les candidats 62
      1.1.1. Tensioactifs classiques. Le Triton® X-100 62
      1.1.2. Biotensioactifs. Les rhamnolipides 64
      1.1.3. Les esters de sucres. Le laurate de saccharose 65
   1.2. Mesure de la Concentration Micellaire Critique (CMC) 66
      1.2.1. Méthode analytique. Le goniomètre 67
   1.3. Méthodes pour mesurer la stabilité de la mousse 69
      1.3.1. Méthode de Ross-Miles 69
      1.3.2. Méthode de Bikerman 70
      1.3.3. Méthode mixte 70
   1.4. Description du dispositif expérimental 70
   1.5. Matériaux. Tensioactifs 70
   1.6. Protocole expérimental 71
2. Échelle locale. Expériences sur colonnes 1-D 72
   2.1. Description du montage expérimental 72
      2.1.1. Colonne 73
      2.1.2. Pompe piston 74
      2.1.3. Régulateur de débit massique 74
      2.1.4. Capteur de pression différentielle 74
      2.1.5. Collecteur de fractions 74
   2.2. Matériaux et fluides 74
      2.2.1. Milieu poreux 74
      2.2.2. Tensioactifs 76
      2.2.3. Air 76
   2.3. Protocole expérimental 77
      2.3.1. Fabrication de la colonne 77
      2.3.2. Saturation de la colonne 77
      2.3.3. Calcul de la porosité et du volume de pores 78
      2.3.4. Mesure de la perméabilité k 78
      2.3.5. Saturation en solution de tensioactif et calcul de l'adsorption 78
      2.3.6. Co-injection de gaz et solution de tensioactif 84
3. Grande échelle. Expériences sur pilotes 2-D 85
   3.1. Description du montage expérimental 85

3.2. Matériaux et fluides 87
3.2.1. Milieux poreux 87
3.2.2. Tensioactifs 88
3.2.3. Gaz 88
3.3. Protocole expérimental 88
3.3.1. Remplissage du pilote 88
3.3.2. Test de traçage. Estimation de la perméabilité 88
3.3.3. Co-injection solution de tensioactif et du gaz 89
3.3.4. Réinjection de solution de tensioactif 90

Chapitre 4. Résultats et discussion 91

1. Moussabilité. Choix du tensioactif 91
1.1. Mesure de la Concentration Micellaire Critique des tensioactifs 91
1.2. Mesure du temps de demi-vie 92
1.2.1. Triton X-100 92
1.2.2. Sucrose Laurate 93
1.2.3. Rhamnolipide JBR425 93
1.3. Sélection de tensioactifs. Conclusion 94
2. Échelle locale. Expériences sur colonnes 1-D 96
2.1. Résultats détaillés pour la Colonne 1 96
2.1.1. Porosité et perméabilité 96
2.1.2. Mesure de l'adsorption de tensioactif 97
2.1.3. Co-injection air-solution de tensioactif 103
2.2. Résultats détaillés pour la Colonne 2 105
2.2.1. Porosité et perméabilité 105
2.2.2. Co-injection air-solution de tensioactif 106
2.3. Tableau récapitulatif des expériences sur colonne 108
2.4. Interprétation des résultats. Facteur de résistance à la mobilité RF et influence sur la texture de la mousse 109
2.4.1. Expériences à faible perméabilité 110
2.4.2. Expériences à forte perméabilité 114
2.4.3. Gradient de pression minimal pour la génération de « strong foam » 116
2.4.4. Saturation en eau des colonnes en régime permanent 120
2.5. Interprétation des résultats. Approche empirique en terme de viscosité de la mousse 122
2.6. Discussion 126

3. Grande échelle. Expériences sur pilotes 2-D 129
3.1. Résultats pour le Pilote 1 129
3.1.1. Calcul du volume de pores 129
3.1.2. Test de traçage. Estimation de la perméabilité 129
3.1.3. Co-injection 130
3.1.4. Réinjection de liquide 131
3.2. Résultats pour le Pilote 2 132
3.2.1. Calcul du volume de pores 132
3.2.2. Test de traçage. Estimation de la perméabilité. 132
3.2.3. Co-injection 133
3.2.4. Réinjection de liquide 133
3.3. Discussion 138

Chapitre 5. Modélisation numérique 141

1. Modélisation des tests sur colonnes 1-D. UTCHEM 141
1.1. Description du logiciel 142
1.1.1. Modèle pour la mousse 143
1.2. Données du modèle 144
1.3. Estimation des paramètres 145
1.3.1. Vitesse de référence du gaz $u_{g,ref}$ (VELGR) et coefficient de fluidification par cisaillement σ (SHRTN) 145
1.3.2. R_{max}. Valeur maximale du facteur de réduction de mobilité du gaz R (RFMAX) 147
1.3.3. S_w^*. Saturation en phase aqueuse correspondante à la pression capillaire limite P_c^* 147
1.4. Étude de sensibilité pour les paramètres du modèle mousse. Influence sur la valeur ΔP en régime permanent 148
1.4.1. Saturation résiduelle en phase aqueuse (S1RWC) 148
1.4.2. Facteur de réduction de mobilité du gaz R (RFMAX) 149
1.4.3. Paramètre de fluidification par cisaillement σ (SHRTN) 150
1.4.4. Vitesse de référence pour le gaz $u_{g,ref}$ (VELGR) 151
1.4.5. Conclusion 152
1.5. RFMAX pour les tests sur colonne 153
1.6. Résultats obtenus avec UTCHEM 155
1.6.1. Courbe de perte de charge avant percée 155
1.6.2. Distribution de pression dans la colonne 156

1.6.3. Récupération de liquide à la sortie de la colonne 157
1.7. Discussion 158
2. Modélisation des expériences sur pilotes 2-D. MODFLOW et MT3D 159
2.1. Description des logiciels 159
2.1.1. MODFLOW 159
2.1.2. MT3D 160
2.2. Modélisation du Pilote 1 160
2.2.1. Modélisation du premier test de traçage. Calcul de la perméabilité 160
2.2.2. Modélisation du deuxième test de traçage. Calcul de RF 162
2.3. Modélisation du Pilote 2 166
2.3.1. Modélisation du premier test de traçage. Calcul de la perméabilité 166
2.3.2. Modélisation du deuxième test de traçage. Calcul de RF 168
2.4. Conclusions 172

Chapitre 6. Conclusions et perspectives 173

1. Conclusions 173
2. Perspectives 174

Références 177

Annexes 185

Annexe 1. Fichier UTCHEM, expérience 7 185

Liste de symboles

$\boldsymbol{A}$	Section, en m^2 Indice d'acide de l'acide gras
$\overline{\overline{\boldsymbol{A}}}$	Matrice de coefficients des cellules actives du système, en $m^2 \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{a}$	Rayon du capillaire, en m
$\boldsymbol{B}$	Coefficient de pontage (« *Bridging Coefficient* »), en $N^2 \cdot m^{-2}$
$\boldsymbol{C}$	Concentration, en $kg \cdot m^{-3}$
$\boldsymbol{C_g}$	Paramètre modèle « Bilan de Population de Bulles »
$\boldsymbol{C_c}$	Paramètre modèle « Bilan de Population de Bulles », en s^{-1}
$\boldsymbol{CAC}$	Concentration d'Admicelles Critique, en $g \cdot L^{-1}$
$\boldsymbol{CE_{50}}$	Concentration Efficace Médiane, en $g \cdot L^{-1}$
$\boldsymbol{CMC}$	Concentration Micellaire Critique, en $g \cdot L^{-1}$
$\boldsymbol{CV}$ $\boldsymbol{CR}$ $\boldsymbol{CC}$	Conductances hydrauliques entre le nœud i, j, k et un nœud voisin, en $m^2 \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{d}$	Diamètre moyen des grains, en m
$\boldsymbol{D}$	Coefficient de diffusion moléculaire, en $m^2 \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{D_{int}}$	Diamètre interne de la colonne, en m
$\boldsymbol{D_{50}}$	Diamètre médian des particules (*50 %* des grains a un diamètre inférieur), en m
$\boldsymbol{DL_{50}}$	Dose Létale Médiane, en $g \cdot kg^{-1}$
$\boldsymbol{E}$	Pourcentage en masse des motifs éthoxy des tensioactifs non ioniques polyéthoxylés, *adimensionnel* Fonction de distribution de temps de séjour Coefficient d'entrée (« E*ntering Coefficient* »), en $N \cdot m^{-1}$
$\boldsymbol{f_i}$	Débit fractionnaire de la phase *i*, *adimensionnel*
$\boldsymbol{F_G}$	Facteur géométrique, *adimensionnel*
$\boldsymbol{F_P}$	Facteur de proportionnalité, *adimensionnel*
$\boldsymbol{F_T}$	Facteur de tortuosité, *adimensionnel*
$\boldsymbol{h}$	Épaisseur des films, en m Charge hydraulique, en m

$\overline{\boldsymbol{h}}$	Vecteur de charge hydraulique, en *m*
$\boldsymbol{h}_{i,j,k}^{m}$	Charge hydraulique dans la cellule i, j, k au pas de temps m, en *m*
$\boldsymbol{i}$	Gradient hydraulique, *adimensionnel*
$\boldsymbol{k}$	Perméabilité intrinsèque, en m^2
$\boldsymbol{k_e}$	Perméabilité effective, en m^2
$\boldsymbol{k_i}$	Perméabilité effective pour la phase *i*, en m^2
$\boldsymbol{k_{ri}}$	Perméabilité relative à la phase *i*, *adimensionnel*
$\boldsymbol{K}$	Conductivité hydraulique, en $m \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{Kxx}$ $\boldsymbol{Kyy}$ $\boldsymbol{Kzz}$	Valeurs de la conductivité hydraulique dans les axes, x, y, z respectivement, en $m \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{L}$	Longueur, en *m*
$\boldsymbol{M}$	Masse moléculaire, en $g \cdot mol^{-1}$
$\boldsymbol{m, n}$	Paramètres du modèle Van Genuchten Paramètres modèle Bilan de Population de Bulles
$\boldsymbol{N}$	Facteur de forme
$\boldsymbol{n_f}$	Densité de lamelles mobiles par unité de volume, en m^{-3}
$\boldsymbol{n_t}$	Densité de lamelles stationnaires par unité de volume, en m^{-3}
$\boldsymbol{Mh}$	Masse moléculaire de la partie hydrophile du tensioactif, en $g \cdot mol^{-1}$
$\boldsymbol{N_{ca}}$	Nombre capillaire, *adimensionnel*
$\boldsymbol{N_L}$	« *Lamella Number* », *adimensionnel*
$\boldsymbol{P}$	Pourcentage en masse de polyol des tensioactifs non ioniques polyéthoxylés
$\boldsymbol{P_i}$	Pression de la phase *i*, en *Pa*
$\boldsymbol{P_c}$	Pression capillaire, en *Pa*
$\boldsymbol{P_d}$	Pression de déplacement, en *Pa*
$\boldsymbol{Pe}$	Nombre de Péclet, *adimensionnel*
$\boldsymbol{P_{i,j,k}}$	Somme des coefficients de charge hydraulique des termes source et puits, en $m^2 \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{PIT}$	« *Phase Inversion Temperature* », en *°C*
$\overline{\boldsymbol{q}}$	Vecteur de termes constants des nœuds de la maille, en $m^3 \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{Q}$	Débit volumique, en $m^3 \cdot s$

Q_b	Terme source/puits, en $m^{-3}s^{-1}$
$Q_{i,j,k}$	somme d'éléments constants du terme source/puits pour la cellule i, j, k, en $m^3 \cdot s^{-1}$
Q_{mousse}	Qualité de la mousse, *en %*
r	Rayon, en *m*
r_g	Taux de génération de lamelles, en $m^{-3}s^{-1}$
r_c	Taux de destruction de lamelles, en $m^{-3}s^{-1}$
R	Coefficient de retard, *adimensionnel* Paramètre de réduction de la mobilité du gaz utilisé sur UTCHEM, *adimensionnel* Constante molaire des gaz, $8{,}314\ J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$ Courbure moyenne, en *m*
R_t	Dimension caractéristique des seuils du pore (« *pore throat* »), en *m*
R_b	Dimension caractéristique des corps du pore (« *pore body* »), en *m*
s_s	Coefficient d'emmagasinement spécifique du matériel poreux, en m^{-1}
S	Indice de saponification de l'ester Coefficient d'étalement (« *spreading coefficient* »), en $N \cdot m^{-1}$
S_i	Saturation de la phase *i*, *adimensionnel*
S_{wi}	Saturation irréductible de la phase aqueuse, *adimensionnel*
S_{or}	Saturation résiduelle de la phase huile, *adimensionnel*
S_{we}	Degré de saturation effectif, *adimensionnel*
t	Temps, en *s*
$t_{1/2}$	Temps de demi-vie, en *s*
T	Température, en *°C*
u	Flux ou « vitesse de Darcy », en $m \cdot s^{-1}$
v	Vitesse réelle moyenne ou vitesse interstitielle, en $m \cdot s^{-1}$
V	Volume, en m^3
W	Flux volumétrique d'apports ou extractions de liquide, en s^{-1}
ΔP_R	Différence de pression à travers la surface huile/eau, en *Pa*
VP	Volume de pore, en m^3
z	Hauteur, en *m*

Lettres Grecques

$\boldsymbol{\alpha}$	Paramètre Van Genuchten, en Pa^{-1} Coefficient de dispersion intrinsèque ou dispersivité, en *m* Paramètre viscosité (approche van Genuchten)
$\boldsymbol{\beta}$	Angle de contact, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\varepsilon}$	Tolérance de saturation de la phase aqueuse utilisée sur UTCHEM (EPXLO), *adimensionnel*
$\boldsymbol{\theta}$	Angle par rapport à l'horizontale, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\lambda}$	Indice de distribution de la dimension des pores, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\lambda_i}$	Mobilité de la phase *i*, en $m^3 \cdot s \cdot kg^{-1}$
$\boldsymbol{\mu}$	Viscosité dynamique du fluide, en $kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$
$\boldsymbol{\rho_i}$	Masse volumique de la phase *i*, en $kg \cdot m^{-3}$
$\boldsymbol{\sigma}$	Tension superficielle, en $N \cdot m^{-1}$ Exposant de fluidification par cisaillement utilisé par UTCHEM (SHRTN)
$\boldsymbol{\sigma_{ij}}$	Tension interfaciale entre la phase *i* et la phase *j*, en $N \cdot m^{-1}$
$\boldsymbol{\phi}$	Porosité, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\phi_u}$	Porosité utile, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\phi_r}$	Porosité résiduelle, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\phi_c}$	Porosité cinématique, *adimensionnel*
$\boldsymbol{\Delta}$	Différence
$\Delta \boldsymbol{r_j}$ $\Delta \boldsymbol{c_i}$ $\Delta \boldsymbol{v_k}$	Dimensions de la cellule i, j, k, en *m*
$\boldsymbol{\nabla}$	Gradient
$\boldsymbol{\Pi}$	Pression de disjonction, en *Pa*
$\boldsymbol{\Pi_A}$	Pressions attractives, en *Pa*
$\boldsymbol{\Pi_{EL}}$	Pressions électrostatiques positives de répulsion, en *Pa*
$\boldsymbol{\Pi_R}$	Pressions répulsives, en *Pa*
$\boldsymbol{\Pi_{ST}}$	Pressions de répulsion stérique entre atomes (liasons d'hydrogène), en *Pa*
$\boldsymbol{\Pi_{VW}}$	Pressions négatives d'attraction de Van der Waals, en *Pa*

Indices

f	Phase gaz en présence de mousse (« *foam* »)
fg	Phase gaz mobile (« *flowing gas* »)
g	Phase gaz
n	Conditions normales (***P*** = *1 atm*, ***T*** = *0°C*)
o	Phase huile
p	Polluant
S	Solide
T	Total
ta	Tensioactif
tg	Phase gaz piégée (« *trapped gas* »)
V	Vides
w	Phase aqueuse
*	Critique ou limite
0	Valeur initiale ou de référence

Liste des abréviations

APE	Alkyl Phénol Éthoxylate
APE$_1$	Alkyl Phénol Mono-Éthoxylate
APE$_2$	Alkyl Phénol Di-Éthoxylate
ASTM	« *American Society for Testing and Material* »
BASOL	Base de données sur les sites et sols pollués
C-1216 Surfhope	Laurate de saccharose (Mitshubishi Kagaku Foods Corp.)
COT	Carbone Organique Total
CSTAR	Concentration en tensioactif minimale pour la formation de mousse (UTCHEM)
DGPR	Direction Générale de la Prévention des Risques
DNAPL	« *Dense Non Aqueous Phase Liquid* »
DTS	Distribution de Temps de Séjour
EPXLO	Variation de la saturation de la phase aqueuse (UTCHEM)
EXn	Puits d'extraction numéro n
FDA	« *Food and Drug Administration* »
HCn	Puits de contrôle hydraulique numéro n (« *Hydraulic Control* »)
HLB	« *Hydrophilic-Lipophilic Balance* »
INn	Puits d'injection numéro n
ISO	« *International Standards Organization* »
JBR425	Rhamnolipide (Jeneil Biosurfactants Co.)
LNAPL	« *Light Non Aqueous Phase Liquid* »
MEDDE	Ministère de l'Écologie, du Développement Durable et de l'Énergie
MRF	« *Mobility Reduction Factor* »
MSR	« *Molar Solubilization Ratio* »
MWn	Puits d'observation numéro n (« *Monitoring Well* »)
NAPL	« *Non Aqueous Phase Liquid* »
NP	Nonylphénol

NPE	Nonylphénol Éthoxylate
NPE_1	Nonylphénol Mono-Éthoxylate
NPE_2	Nonylphénol Di-Éthoxylate
OE	Oxyde d'éthylène
OECD	« *Organization for Economic Cooperation and Development* »
PCE	Tetrachloroetène
PCP	Pentachlorophénol
PIT	« *Phase Inversion Temperature* »
PITT	« *Partition Interwell Tracer Test* »
RAP	Récupération Améliorée du Pétrole
RF	« *Resistance Factor* »
RFMAX	Valeur maximale du paramètre de réduction de mobilité du gaz (UTCHEM)
RTD	« *Residence Time Distribution* »
SAG	« *Surfactant Alternating Gas* »
SB	« *Soil Boring* » (Prélèvement de sol)
SE	Sucroester
SHRTN	Exposant de l'effet « *shear-thinning* » du gaz $\boldsymbol{\sigma}$ (UTCHEM)
SSP	Sites et Sols Pollués
S1RWC	Saturation résiduelle en phase aqueuse (UTCHEM)
TCA	1,1,1 - Trichloroéthane
TCE	Trichloréthylène
USGS	« *United States Geological Survey* »
VELGR	Vitesse de référence de la phase gaz pour l'effet « *shear-thinning* » (UTCHEM)
VER	Volume Élementaire Représentatif

Chapitre 1

Introduction. Contexte général de l'étude

Les sites et sols pollués (SSP) se sont multipliés de part et d'autre du monde depuis une soixantaine d'années. Ils se caractérisent par une forte teneur en contaminants sur des surfaces réduites, en raison d'anciennes activités industrielles ou de service. Qu'elles soient accidentelles ou intentionnelles, ces pollutions sont une grande menace pour la biosphère et l'environnement. Elles ne font l'objet d'une prise de conscience que depuis peu de temps, au regard de plus de deux siècles d'activité industrielle. Il s'agit donc d'un problème très fréquent au sein des pays industrialisés.

L'Agence européenne de l'environnement estime à environ *250.000* le nombre de sites contaminés nécessitant des mesures de réhabilitation. En France, le ministère de l'écologie, du développement durable et de l'énergie a répertorié les sites et sols pollués ou potentiellement pollués qui nécessitent d'une action des pouvoirs publics à titre préventif ou curatif. Cette base de données, appelée BASOL, comporte *4142* sites pollués (recensés début 2012) (http://basol.developpement-durable.gouv.fr/). Leur répartition reflète en grande partie le passé économique des régions françaises (Figure 1.1).

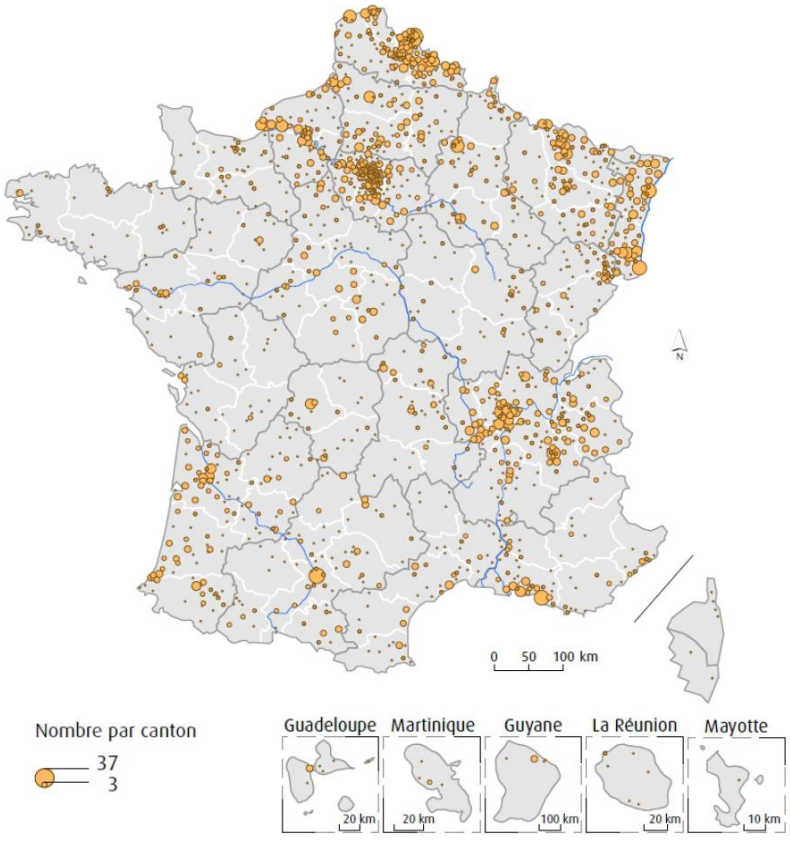


Figure 1.1. Sites pollués sur lesquels l'État a entrepris des actions de remédiation au 16 janvier 2012. Source : MEDDE, DGPR (BASOL au 16 janvier 2012).

Parmi les SSP, près de *65 %* sont pollués par une catégorie d'hydrocarbure (chloré, aromatique polycyclique ou autre), et près de *25 %* par des métaux et métalloïdes, en particulier le plomb, le chrome et le cuivre. Les SSP ont souvent plusieurs impacts environnementaux, tels que la teneur anormale de polluants dans des eaux superficielles ou souterraines, et dans des végétaux et animaux destinés à la consommation humaine. La pollution des nappes d'eau souterraines est l'effet le plus souvent constaté : *35 %* des SSP répertoriés présentent une contamination de ce type, dont près de *65 %* dues à des hydrocarbures (Figure 1.2). Ainsi, la surveillance de la qualité des eaux souterraines est cruciale pour les SSP, ce type de pollution étant très persistante dans le temps et l'espace et très difficile à traiter. C'est dans ce contexte que nos travaux de recherche se situent.

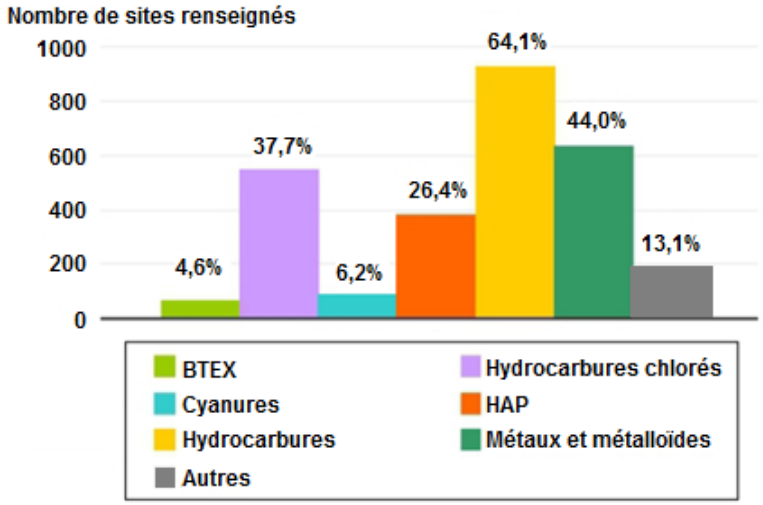


Figure 1.2. Répartition des polluants identifiés dans les nappes des sites pollués évalués, début 2012. Source : MEDDE, DGPR (BASOL au 16 janvier 2012).

Les hydrocarbures appartiennent au groupe de liquides non miscibles dans l'eau (ou très peu miscibles) appelés NAPLs (« *Non Aqueous Phase Liquids* »). On distingue deux types de NAPLs en fonction de leur masse volumique : les LNAPLs (« *Light Non Aqueous Phase Liquids* ») sont plus légers que l'eau et les DNAPLs (« *Dense Non Aqueous Phase Liquids* ») sont plus lourds que l'eau. Ils peuvent contenir un seul composé ou un mélange de composés plus ou moins miscibles dans l'eau mais miscibles entre eux.

Lors d'un déversement sur ou sous la surface du sol, les NAPLs s'infiltrent en profondeur sous l'action des forces de gravité. Le polluant s'infiltre dans la zone non saturée jusqu'à la surface libre de l'aquifère, tout en laissant une phase liquide immiscible sous forme résiduelle tout au long de son passage. Même si ce liquide est immobile, il représente en lui-même une source de pollution car les composants volatiles peuvent se retrouver dans la phase gazeuse de la zone non saturée et migrer vers la surface par diffusion, lors des changements de température ou de pression atmosphérique, etc. Également le passage d'eau dans la zone non saturée (les eaux de pluie par exemple) solubilise certains composants du NAPL résiduel et les entraîne jusqu'à la nappe.

Quand le NAPL atteint la surface libre de l'aquifère, le comportement est différent selon sa densité. S'il s'agit d'un LNAPL, le liquide s'accumule dans la frange capillaire ou

surface libre et forme une lentille qui est libre de s'écouler. Le contact de la lentille avec l'écoulement d'eau souterraine (favorisé par l'étalement) dissout certains composés du LNAPL et forme un panache qui s'infiltre en profondeur et qui est transporté loin de la zone source. Dans le cas des DNAPLs, la phase liquide s'étale dans la frange capillaire et continue sa descente à travers la zone saturée. La Figure 1.3 montre un modèle conceptuel de la migration d'un DNAPL à partir d'un réservoir enfoui. La migration du DNAPL dans la zone saturée est contrôlée par l'hétérogénéité du milieu, et continue jusqu'à ce que tout le volume soit étalé sous forme de liquide résiduel ou jusqu'à ce qu'il retrouve une couche à faible perméabilité. Dans ce cas, il y a une accumulation de phase libre au-dessus de ces strates à faible perméabilité et si la pression capillaire d'entrée le permet, le DNAPL pénètre ces couches.

La pollution de l'eau souterraine par solubilisation des composés du DNAPL est en général plus importante que celle des LNAPL, car les panaches produits à partir des zones sources de DNAPL sont plus développés et peuvent couvrir toute la hauteur de l'aquifère.

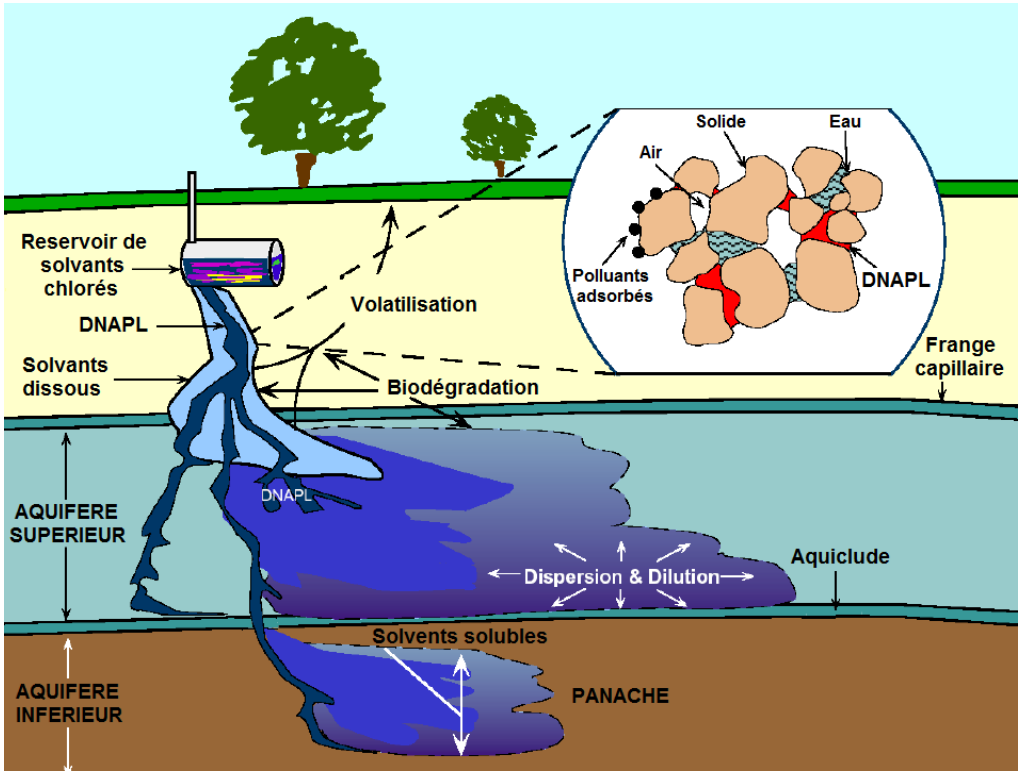


Figure 1.3. Modèle conceptuel de migration des DNAPLs (adapté de EPA, 1999).

La dépollution de ces sites devient un enjeu majeur, la plupart des hydrocarbures étant toxiques et cancérigènes. Parmi les techniques de remédiation disponibles (Tableau 1.1), celles appliquées *in situ* sont les plus intéressantes parce que le traitement de la nappe se réalise sans mouvement de sols, ce qui réduit significativement le coût et permet la dépollution de sites qui ne sont pas directement accessibles (par exemple s'il y a des bâtiments au dessus de la nappe). Parmi eux, l'utilisation du « *pump and treat* », qui consiste à injecter de l'eau pour déplacer le NAPL, a été très répandue. Les résultats

obtenus avec cette technique ne sont pas très satisfaisants, parce que même si on arrive à enlever tout le NAPL en phase libre, la phase résiduelle piégée par capillarité persiste à être une source de pollution des eaux. C'est pour cela qu'une attention croissante a été accordée au développement de technologies permettant de déplacer cette phase résiduelle. C'est le cas des solutions de tensioactifs, qui permettent de réduire les forces capillaires qui piègent l'huile à l'intérieur des pores.

Tableau 1.1. Classement des techniques de dépollution en fonction du lieu de traitement et la nature du processus. Les traitements hors site impliquent l'excavation puis le transport vers une plate-forme spécialisée ; les traitements sur site comprennent l'excavation puis le traitement sur place ; et dans les traitements *in situ* il n'y a pas de mouvement des sols.

	IN SITU	**SUR SITE**	**HORS SITE**
BIOLOGIQUE	*Bioventing* *Biosparging* Barrière biologique Atténuation Naturelle Surveillée	Andain Biotertre *Landfarming*	« Biocentres » Andain Biotertre
PHYSIQUE	*Pump & Treat* Ecrémage Confinement *Sparging* *Venting*	*Stripping* Stabilisation Confinement Désorption thermique Lavage à l'eau	Mise en décharge Stabilisation Désorption thermique
CHIMIQUE	Oxydation Barrière réactive	Oxydation	Lavage par solvant

Les méthodes impliquant l'injection de liquides (« *soil flushing* ») se sont avérées inefficaces dans des aquifères hétérogènes (Atteia *et al*., 2013). En effet, les liquides s'écoulent préférentiellement dans les strates à forte perméabilité, et cela continue même après la complète dépollution de ces zones. Par conséquent seule une petite partie des liquides injectés traverse les couches à faible perméabilité, qui restent polluées. Le temps et le coût du traitement de milieux hétérogènes s'avèrent beaucoup plus importants que dans le cas d'un aquifère homogène.

Pour améliorer l'efficacité de balayage (« *sweep efficiency* ») dans des formations hétérogènes, le concept de contrôle de mobilité est utilisé. Cela consiste à injecter des fluides qui sont moins mobiles que les fluides déjà présents, comme des polymères, des émulsions ou des mousses générées *in situ*. Ainsi, les mousses peuvent être utilisées comme complément à d'autres techniques, comme par exemple l'utilisation de solutions de tensioactifs. Après injection d'un volume de solution de tensioactif, qui s'écoule à travers les strates à forte perméabilité, de l'air est injecté. On génère alors une mousse *in situ* dans ces zones, en augmentant la résistance à l'écoulement du liquide là où elle est présente. De cette façon, quand un volume de solution de tensioactif est injecté à nouveau, une portion plus grande s'écoulera à travers les zones à faible perméabilité, ce

qui conduit à une remédiation plus rapide. Cette technique a été testée sur le terrain par Hirasaki *et al*. en 1997, obtenant des résultats assez prometteurs.

Cependant l'utilisation de mousses a été moins populaire que d'autres techniques parce que leur mobilité est plus difficile à prédire que dans le cas des polymères, par exemple.

L'objectif de ce travail est d'étudier les écoulements de mousse en milieu poreux, en identifiant les paramètres influents de façon à pouvoir prédire leur comportement dans des formations hétérogènes. Il comporte une sélection de tensioactifs respectueux de l'environnement, une étude en colonnes de sable homogènes à l'échelle du laboratoire, des expériences sur pilote 2-D hétérogène et de la simulation numérique.

Chapitre 2

Généralités

1. Milieu poreux

Un milieu poreux est un matériau dont la phase solide ne remplit pas tout l'espace disponible, impliquant la présence de pores ou fissures qui peuvent être occupés par des fluides.

Le premier classement de milieux poreux qui peut être fait concerne la nature de la matrice solide :

- Milieux poreux **consolidés**, où la matrice solide est formée de grains cimentés (comme les calcaires ou les grès).
- Milieux poreux **non consolidés**, où les grains ne sont pas soudés entre eux (comme le sable).

1.1. Échelles du milieu poreux

Le milieu poreux, ainsi que la description des phénomènes ayant lieu, peut être observé à plusieurs échelles (Figure 2.1).

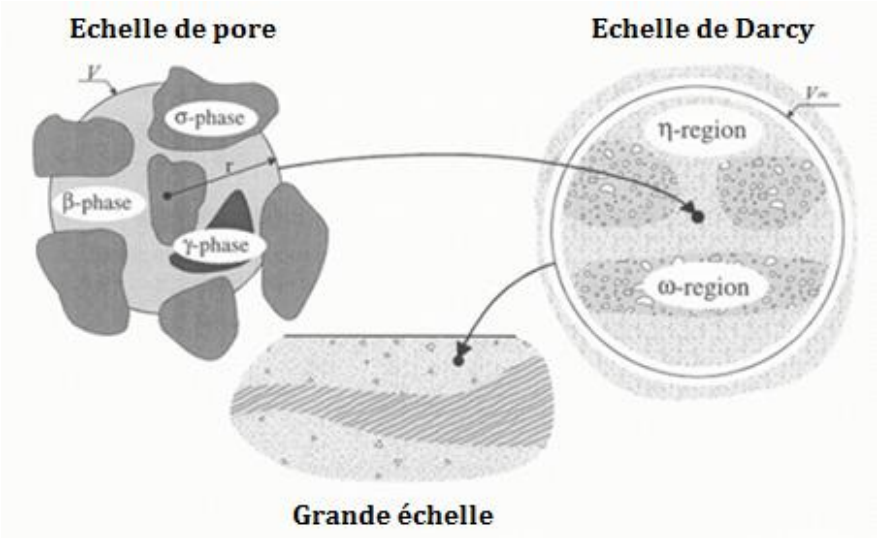


Figure 2.1. Différentes échelles d'observation du milieu poreux (Yra, 2006).

Échelle du pore, dite microscopique

A cette échelle, les grandeurs caractéristiques sont celles du diamètre moyen du pore pour les milieux consolidés et celles du diamètre de grain dans un milieu non consolidé. On définit à ce niveau des propriétés locales qui décrivent une quantité physique en un point et dans un élément de volume infiniment petit. Ces propriétés varient quand on se déplace d'un pore à l'autre. Les écoulements à cette échelle sont décrits par l'équation de Navier-Stokes.

Échelle locale, dite macroscopique ou de Darcy

Cette échelle décrit les phénomènes pour des éléments de volume suffisamment grands par rapport au volume moyen des pores ou des grains. Le volume total $\boldsymbol{V_T}$ d'un milieu poreux est constitué de la somme du volume des solides $\boldsymbol{V_S}$ et du volume des vides $\boldsymbol{V_V}$ présents dans le volume total du matériau (2.1) :

$$\boldsymbol{V_T = V_V + V_S} \qquad \textbf{(2.1)}$$

La porosité $\boldsymbol{\phi}$ est définie comme étant le rapport du volume des pores $\boldsymbol{V_V}$ sur le volume total $\boldsymbol{V_T}$ (2.2). Elle est souvent exprimée en pourcentage.

$$\boldsymbol{\phi = \frac{V_V}{V_T}} \qquad \textbf{(2.2)}$$

La porosité d'un milieu poreux dépend énormément de la distribution de taille de grains (ou de taille de pores). Pour un milieu poreux formé par des sphères de même diamètre disposées de façon aléatoire, la porosité est égale à *0,40*. Mais quand les grains n'ont pas la même forme ni la même taille, la porosité obtenue est souvent plus faible.

On parle aussi de porosité utile $\boldsymbol{\phi_u}$, qui concerne le volume vide occupé par les pores reliés entre eux et l'extérieur, et de la porosité résiduelle $\boldsymbol{\phi_r}$, qui ne tient compte que des pores isolés (pores en cul de sac). La porosité totale est égale à la somme de ces deux porosités, mais dans nos études on s'intéresse seulement à la porosité utile.

L'échelle de Darcy est basée sur l'existence d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER) permettant la définition de quantités macroscopiques. La taille du VER doit être suffisamment grande pour contenir un grand nombre de pores, de façon à ce que l'on puisse définir une propriété moyenne globale. De cette façon les hétérogénéités présentes à l'échelle microscopique ne sont plus apparentes à l'échelle macroscopique. Pour illustrer ce concept, on prend l'exemple de la porosité d'un matériau (Figure 2.2).

Cette propriété peut être mesurée en fonction du rayon $\boldsymbol{l}$ d'une sphère centrée en un point quelconque. Pour des rayons plus petits que $\boldsymbol{L}$ (de l'ordre de grandeur de quelques pores), la porosité est sensible aux fluctuations microscopiques du milieu. Pour des rayons plus grands que $\boldsymbol{L}$, la porosité prend une valeur constante (les fluctuations étant négligeables) et jusqu'à l'échelle $\boldsymbol{L^*}$, où les hétérogénéités macroscopiques apparaissent.

Les écoulements à cette échelle sont décrits par la loi de Darcy pour les écoulements monophasiques et par la loi de Darcy généralisée pour les écoulements polyphasiques.

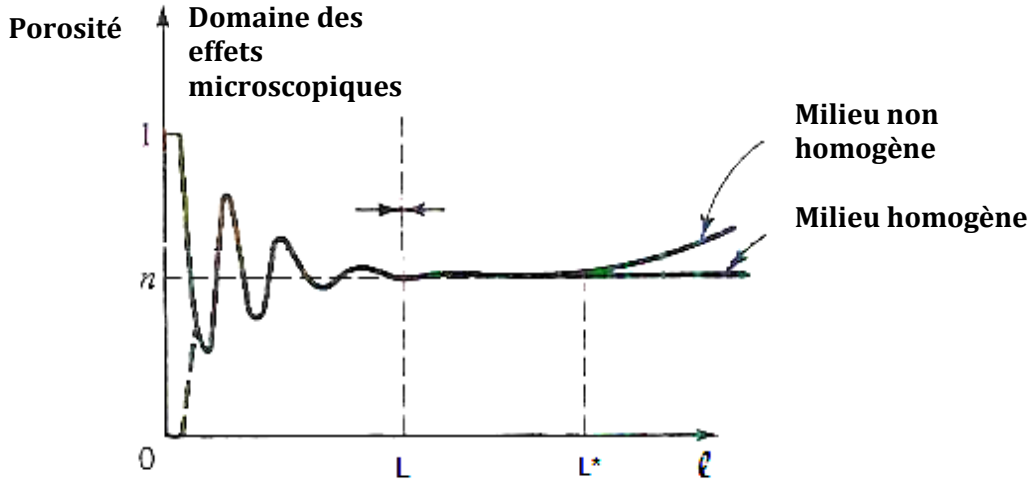


Figure 2.2. Variation de la porosité et définition du VER (adapté de Bear, 1979).

Échelle globale ou grande échelle

Cette échelle prend en compte les variations spatiales des propriétés macroscopiques du milieu et considère les mécanismes décrits pour des distances métriques ou kilométriques.

Il existe différentes méthodes de passage d'une échelle à l'autre (homogénéisation, prise de moyenne volumique, etc.) qui permettent d'obtenir rigoureusement les modèles physiques d'intérêt. Dans notre étude, les échelles d'observation sont l'échelle de Darcy et la grande échelle.

1.2. Écoulements en milieu poreux

1.2.1. Écoulements monophasiques

a. Loi de Darcy

La Figure 2.3 présente le montage expérimental utilisé par Henry Darcy en 1856 pour évaluer la capacité d'écoulement de l'eau à travers des filtres de sable.

Les expériences réalisées à l'aide de ce dispositif montrent que le débit d'eau $\boldsymbol{Q}$ est proportionnel à la section d'écoulement $\boldsymbol{A}$ et à la différence de charge hydraulique $\boldsymbol{h_1 - h_2}$ et inversement proportionnel à la longueur de la colonne $\boldsymbol{L}$. Ainsi, on obtient l'équation (2.3), appelée « *Loi de Darcy* » :

$$\boldsymbol{Q = K \frac{A\,(h_1 - h_2)}{L}} \qquad \textbf{(2.3)}$$

où $\boldsymbol{K}$ est un coefficient de proportionnalité appelé conductivité hydraulique.

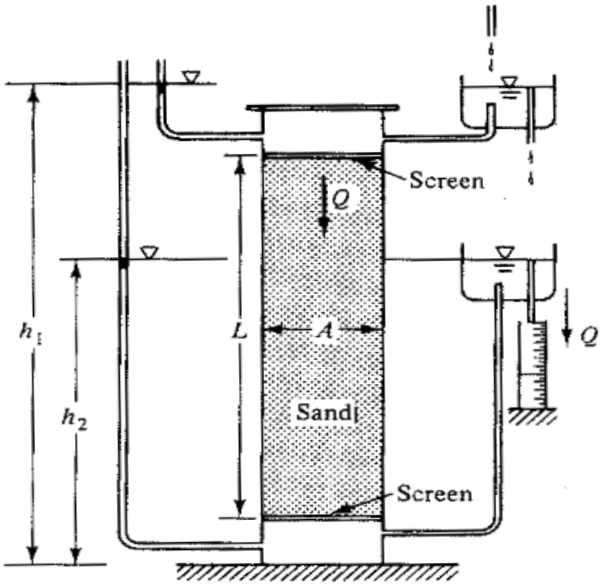


Figure 2.3. Montage expérimental utilisé par Henry Darcy en 1856 (Bear, 1979).

La loi de Darcy peut être exprimée de différentes façons. Si on remplace le débit $\boldsymbol{Q}$ de façon à ce qu'il soit indépendant de la section d'écoulement $\boldsymbol{A}$, on obtient $\boldsymbol{u}$, c'est-à-dire, le débit par unité de surface (2.4) :

$$\boldsymbol{u = \frac{Q}{A}} \qquad \textbf{(2.4)}$$

Le flux $\boldsymbol{u}$ est appelé « débit spécifique » ou **« vitesse de Darcy »**. Il s'agit d'une vitesse d'écoulement moyennée par l'aire totale, qui n'est pas une aire fluide en sa totalité.

Si on substitue la perte de charge $\boldsymbol{h_1 - h_2}$ par le gradient hydraulique $\boldsymbol{i}$ sur la longueur $\boldsymbol{L}$ de la colonne, on obtient une autre expression de la loi de Darcy. Le gradient est négatif si on utilise comme convention que la direction d'écoulement $\boldsymbol{l}$ est positive (2.5).

$$\boldsymbol{i = \frac{h_2 - h_1}{L} = \frac{dh}{dl} = grad\ h} \qquad \textbf{(2.5)}$$

Si on applique les expressions 2.4 et 2.5 à la loi de Darcy (2.3) on obtient une expression en fonction du gradient $\boldsymbol{i}$, où le signe négatif indique que le flux est positif dans la direction de l'écoulement (2.6) :

$$\boldsymbol{u = -Ki} \qquad \textbf{(2.6)}$$

La loi de Darcy définit le flux à travers une section d'écoulement. Cependant, cette section n'est pas constituée uniquement de pores saturés en eau mais également de solide. L'aire disponible pour l'écoulement est égale à la porosité $\boldsymbol{\phi}$ fois le volume total $\boldsymbol{V_T}$ si l'ensemble des pores contient de l'eau mobile. Par contre, lorsque seulement une fraction des pores participe à l'écoulement, on la nomme porosité cinématique $\boldsymbol{\phi_c}$. Les particules de fluide doivent se déplacer plus rapidement que ne l'indique la valeur du

flux et la valeur de la vitesse réelle moyenne $\boldsymbol{v}$ ou vitesse interstitielle est obtenue par la relation suivante (2.7) :

$$\boldsymbol{v} = \frac{\boldsymbol{u}}{\boldsymbol{\phi_c}} \qquad \textbf{(2.7)}$$

b. La conductivité hydraulique K et la perméabilité k

Si nous considérons l'expression de la loi de Darcy généralisée (2.8), on observe que $\boldsymbol{K}$ est un coefficient qui exprime la pente de la relation linéaire entre le flux et le gradient hydraulique. On peut établir une équivalence entre la loi de Darcy et l'équation de Poiseuille pour un ensemble de tubes capillaires parallèles (2.9) :

Loi de Darcy

$$\boldsymbol{u} = -\ \boldsymbol{K}\ \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{h}}{\mathrm{d}\boldsymbol{x}} \qquad \textbf{(2.8)}$$

Équation de Poiseuille

$$\boldsymbol{u} = -\ \frac{\boldsymbol{\phi\, \rho\, g\, a^{2}}}{\boldsymbol{8\, \mu\, F_T}}\ \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{h}}{\mathrm{d}\boldsymbol{x}} \qquad \textbf{(2.9)}$$

où $\boldsymbol{\phi}$ est la porosité, $\boldsymbol{\rho}$ est la masse volumique du fluide, $\boldsymbol{g}$ est l'accélération de la pesanteur**,** $\boldsymbol{a}$ est le rayon des tubes capillaires (équivalent au rayon des pores), $\boldsymbol{\mu}$ est la viscosité du fluide et $\boldsymbol{F_T}$ est un facteur de tortuosité du milieu poreux. On constate que la conductivité hydraulique $\boldsymbol{K}$ dépend donc des propriétés du milieu poreux et des propriétés du fluide. On peut regrouper les paramètres comme suit (2.10) :

$$\boldsymbol{K} = (\boldsymbol{N d^2})\ \frac{\boldsymbol{\rho g}}{\boldsymbol{\mu}} \qquad \textbf{(2.10)}$$

où $\boldsymbol{N}$ est un facteur de forme qui regroupe la porosité et la tortuosité et $\boldsymbol{d}$ représente la dimension moyenne des grains.

Cependant, il est plus pratique de définir une autre propriété ne dépendant que des propriétés du milieu poreux pour caractériser sa capacité à permettre l'écoulement des fluides. Cette propriété est la perméabilité $\boldsymbol{k}$, aussi appelée perméabilité intrinsèque ou coefficient de perméabilité intrinsèque et définie par (2.11) :

$$\boldsymbol{k} = \boldsymbol{N d^2} \qquad \textbf{(2.11)}$$

La conductivité hydraulique $\boldsymbol{K}$ peut être exprimée de la façon suivante (2.12) :

$$\boldsymbol{K} = \boldsymbol{k}\ \frac{\boldsymbol{\rho g}}{\boldsymbol{\mu}} \qquad \textbf{(2.12)}$$

On obtient une expression de la loi de Darcy qui intègre le concept de perméabilité, en termes de charge $\boldsymbol{h}$ ou de potentiel, qui inclut la pression $\boldsymbol{P}$ et la hauteur $\boldsymbol{z}$ (2.13) :

$$\boldsymbol{u} = -\boldsymbol{k}\ \frac{\boldsymbol{\rho g}}{\boldsymbol{\mu}}\frac{\mathbf{d}\boldsymbol{h}}{\mathbf{d}\boldsymbol{l}} = -\frac{\boldsymbol{k}}{\boldsymbol{\mu}}\left(\frac{\mathbf{d}\boldsymbol{P}}{\mathbf{d}\boldsymbol{l}} + \boldsymbol{\rho g}\ \frac{\mathbf{d}\boldsymbol{z}}{\mathbf{d}\boldsymbol{l}}\right) \qquad \textbf{(2.13)}$$

c. Phénomènes de mélange (Bear, 1979)

Les phénomènes de mélange jouent un rôle fondamental dans la qualité des eaux souterraines. En effet, la présence de substances miscibles pouvant se déplacer avec l'eau représente une menace pour les usagers. L'origine de la pollution des aquifères peut être attribuée dans la plupart des cas aux actions anthropiques, mais parfois l'origine est purement environnementale. Par exemple l'eau est capable de solubiliser une partie de la matrice solide à travers laquelle elle s'écoule (comme dans le cas des carbonates). L'invasion d'eaux marines dans des aquifères est aussi une autre source d'altération de la qualité des eaux souterraines.

Ainsi, une attention spéciale doit être consacrée à la protection des aquifères, car les faibles vitesses d'écoulement (et la complexité des phénomènes de piégeage dans le cas de fluides immiscibles, que l'on détaillera dans la partie suivante) rendent les processus de dépollution très compliqués.

Dans cette partie on va présenter les mécanismes qui gouvernent le transport de substances miscibles au sein d'un milieu poreux. Pour cela, on considère le soluté comme une portion de particules marquées (c'est-à-dire, un traceur, qui se distingue du fluide original par une propriété physique, telle que la conductivité électrique, la couleur, etc.) qui se déplacent avec le fluide non marqué sans en modifier les propriétés physiques. Le front de déplacement, qui à l'instant $\boldsymbol{t} = \boldsymbol{0}$ est abrupt, varie au fur et à mesure que l'on avance dans le milieu poreux, et les particules marquées occupent des positions en dehors de la position espérée par rapport à la vitesse d'écoulement moyenne (transport convectif). Ainsi, une zone de transition se développe, et ce sont les mécanismes de *dispersion mécanique* et de *diffusion moléculaire* qui interviennent.

Dispersion mécanique

Pour expliquer ce phénomène, il faut considérer le milieu poreux à l'échelle microscopique, dans un pore. On suppose que la vitesse du fluide est nulle au contact avec des parois et maximale dans le centre, on a un profil de vitesses parabolique (Figure 2.4, gauche). La valeur de la vitesse maximale dépend au même temps de la taille du pore.

Cette distribution de vitesses provoque l'étalement des particules marquées (traceur) et s'accentue à chaque fois qu'elles traversent un pore. Ce phénomène de mélange dû aux différences de vitesse à l'échelle du pore s'appelle dispersion mécanique (parfois diffusion convective), et il s'agit d'un mécanisme de mélange qui a lieu tant dans des régimes d'écoulement laminaires comme turbulents (dans ce cas, la turbulence provoque encore un autre type de mélange).

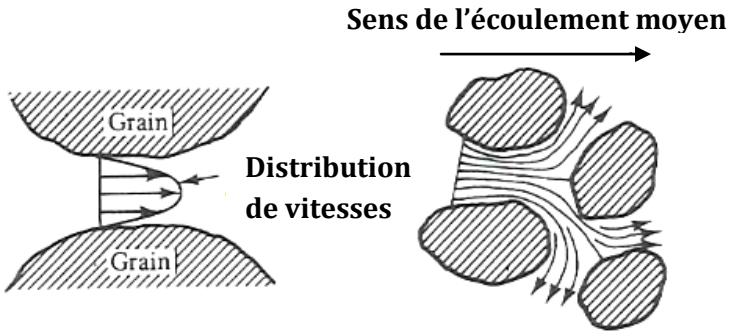


Figure 2.4. Étalement des solutés dû à la dispersion mécanique (adapté de Bear, 1979).

Diffusion moléculaire

Ce mécanisme de mélange a lieu simultanément avec la dispersion mécanique. La diffusion se produit à cause des différences de concentration de soluté dans la phase liquide au niveau microscopique. Les particules se déplacent des zones de plus forte concentration vers les zones de plus faible concentration. Par exemple, la dispersion mécanique étale le soluté dans chaque tube de courant, et la diffusion moléculaire tend à égaliser la concentration dans chacun, et en même temps, entre les différents tubes de courant adjacents. Le rapport entre les effets convectifs et diffusifs peut être évalué à l'aide du nombre de Péclet. Il s'agit d'un nombre adimensionnel qui relie la vitesse de convection à la vitesse de diffusion, et est défini comme suit (2.14) :

$$\boldsymbol{Pe = \frac{L\,u}{D}} \qquad \textbf{(2.14)}$$

où $\boldsymbol{L}$ est une longueur caractéristique du milieu (la taille des pores ou la taille des grains), $\boldsymbol{u}$ est la vitesse moyenne d'écoulement et $\boldsymbol{D}$ est le coefficient de diffusion moléculaire.

Ainsi, on peut distinguer trois régimes en fonction de la valeur de ce paramètre (Fried et Combarnous, 1971) :

- Nombres de Péclet très faibles : la diffusion moléculaire est prédominante.
- Nombres de Péclet compris entre *0,3* et *5* : il y existe une superposition de la diffusion moléculaire et la dispersion mécanique.
- La dispersion mécanique prédomine sur la diffusion moléculaire lorsque le nombre de Péclet augmente, et pour des valeurs très grandes, nous sommes dans le domaine de la dispersion mécanique.

Dispersion hydrodynamique

Ce terme est utilisé pour quantifier la contribution de la dispersion mécanique et la diffusion moléculaire au niveau macroscopique. Ces deux phénomènes sont en réalité inséparables, même si la diffusion moléculaire a lieu aussi en absence de mouvement. Ainsi, sa contribution sur la dispersion hydrodynamique totale sera plus forte pour des vitesses d'écoulement plus faibles.

1.2.2. Écoulements polyphasiques

Dans le cas des écoulements polyphasiques, le milieu poreux est saturé par plusieurs fluides non miscibles. A l'échelle locale la proportion de chacun est quantifiée par une propriété appelée saturation. La saturation d'un fluide ***i*** au sein d'un milieu poreux, S_i, peut être définie comme le rapport entre le volume de la phase ***i*** présente V_i et le volume de pores V_V (2.15) :

$$S_i = \frac{V_i}{V_V} \qquad (2.15)$$

Par la suite on définira des notions à prendre en compte pour décrire les écoulements polyphasiques.

a. Tension interfaciale

La tension interfaciale σ est l'énergie requise pour créer une unité de surface à l'interface entre deux fluides immiscibles, elle est due au déséquilibre des forces d'attraction entre les molécules différentes au contact des deux fluides (Figure 2.5).

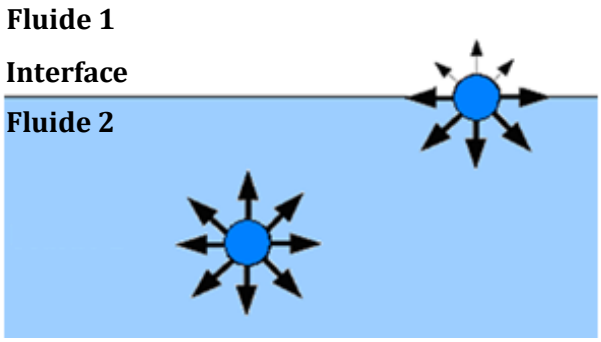


Figure 2.5. Tension interfaciale. Distribution des forces auxquelles une molécule du Fluide 2 est soumise au sein de ce fluide et à l'interface avec un Fluide 1.

b. Mouillabilité. Angle de contact

La mouillabilité est la tendance relative d'un fluide à s'étaler ou à adhérer à une surface solide en présence d'un autre fluide immiscible. Dans un système huile-eau-solide, on parle de mouillabilité à l'eau, à l'huile ou mouillabilité intermédiaire. Ces concepts expriment l'attraction relative de l'eau ou de l'huile pour les surfaces solides. Quand l'attraction de l'eau et de l'huile pour les surfaces minérales est la même, on parle de mouillabilité intermédiaire ou neutre.

Plusieurs facteurs déterminent le type de mouillabilité entre l'huile et l'eau : le type de surfaces solides (minéralogie, charge électrique, géométrie, rugosité), la composition des fluides et les conditions de température et pression. Dans les aquifères l'eau est le fluide mouillant dans la plupart des cas. Des scénarios plus complexes peuvent se présenter dans les réservoirs pétroliers : l'eau est originellement le fluide mouillant

mais l'huile peut devenir le fluide mouillant suite au dépôt de certains composants des hydrocarbures sur les parois des pores ou bien à la présence de molécules polaires.

L'intérêt pour la mouillabilité tient à son influence marquée sur la distribution des fluides immiscibles dans les milieux poreux et à l'impact de cette distribution sur le déplacement de ces fluides. L'angle de contact a une grande importance parce qu'il détermine les propriétés de mouillage de la matrice solide. La Figure 2.6 représente l'angle de contact $\boldsymbol{\beta}$ entre deux fluides immiscibles (air et eau) et un solide.

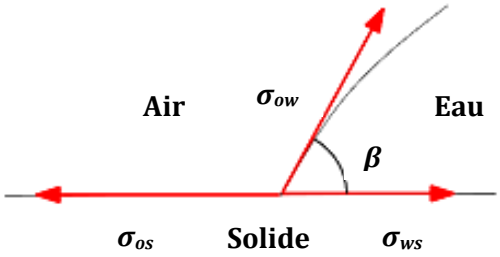


Figure 2.6. Angle de contact β entre deux fluides non miscibles et un solide.

L'angle de contact peut être calculé à l'aide de l'équation de Young (2.16) :

$$\cos\boldsymbol{\beta} = \frac{\boldsymbol{\sigma_{os} - \sigma_{ws}}}{\boldsymbol{\sigma_{ow}}} \qquad \textbf{(2.16)}$$

où $\boldsymbol{\sigma_{os}}$ est la tension interfaciale entre la phase huile et le solide, $\boldsymbol{\sigma_{ws}}$ est la tension interfaciale entre la phase aqueuse et le solide et $\boldsymbol{\sigma_{ow}}$ est la tension interfaciale entre la phase aqueuse (mouillante) et la phase huile (non mouillante).

c. Capillarité

Quand deux fluides immiscibles sont en contact, il existe une discontinuité de pression à travers l'interface qui les sépare. Cela est une conséquence de la tension interfaciale qui existe entre les deux phases en contact. La pression capillaire $\boldsymbol{P_c}$ est définie comme la différence de pression générée à travers l'interface entre deux fluides immiscibles et sa valeur dépend de sa courbure. Dans un milieu poreux, la pression capillaire est définie comme la différence de pression entre les deux phases fluides immiscibles lorsqu'elles sont distribuées sous un équilibre statique dans le milieu (2.17) :

$$\boldsymbol{P_c = P_1 - P_2} \qquad \textbf{(2.17)}$$

La Figure 2.7 montre un tube capillaire où le fluide 1 est le fluide non mouillant et le fluide 2 est le fluide mouillant.

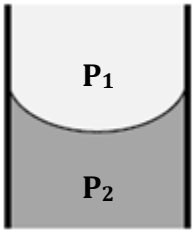


Figure 2.7. Tube capillaire contenant deux fluides non miscibles.

L'équation de Laplace (2.18) relie la pression capillaire P_c à la tension interfaciale σ qui existe entre les deux fluides et les rayons de courbure principaux de l'interface des deux fluides immiscibles, r_1 et r_2.

$$P_c = \sigma \left(\frac{1}{r_1} \pm \frac{1}{r_2} \right) \quad \textbf{(2.18)}$$

Si on utilise le concept de courbure moyenne R, décrit par (2.19) :

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r_1} \pm \frac{1}{r_2} \right) \quad \textbf{(2.19)}$$

Appliqué à l'équation de Laplace (2.18), on obtient l'équation de Young-Laplace (2.20) :

$$P_c = \left(\frac{2\sigma}{R} \right) \quad \textbf{(2.20)}$$

La pression capillaire P_c peut aussi être calculée à l'aide de la hauteur de remontée du fluide mouillant dans le tube capillaire z (Figure 2.8), et de la différence de masse volumique entre les fluides immiscibles $\Delta\rho$, où g est l'accélération de la pesanteur (2.21) :

$$P_c = \Delta\rho \; g \; z \quad \textbf{(2.21)}$$

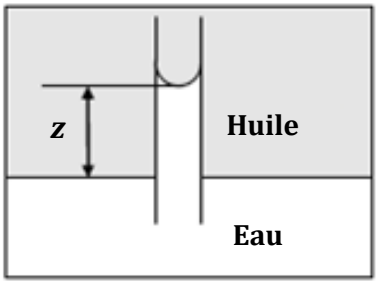


Figure 2.8. Hauteur de remontée *z* du fluide mouillant dans le tube capillaire.

La pression capillaire d'un échantillon de milieu poreux est mesurée en appliquant une pression au fluide non mouillant pour qu'il déplace le fluide qui sature l'échantillon. Ce phénomène s'appelle **drainage**. On mesure la quantité de fluide mouillant déplacé en fonction de la pression capillaire appliquée. Cette pression est augmentée jusqu'à-ce que la saturation du fluide mouillant demeure constante (saturation irréductible S_{wi}), et on obtient la courbe de drainage primaire.

La pression capillaire est ensuite diminuée progressivement et le fluide mouillant pénètre à nouveau l'échantillon et déplace le fluide non mouillant. Ce processus s'appelle **imbibition**, et la courbe associée ne se superpose pas à celle de drainage (hystérésis). On atteint une saturation résiduelle S_{or} de fluide non mouillant lorsque la pression capillaire redevient nulle (Figure 2.9).

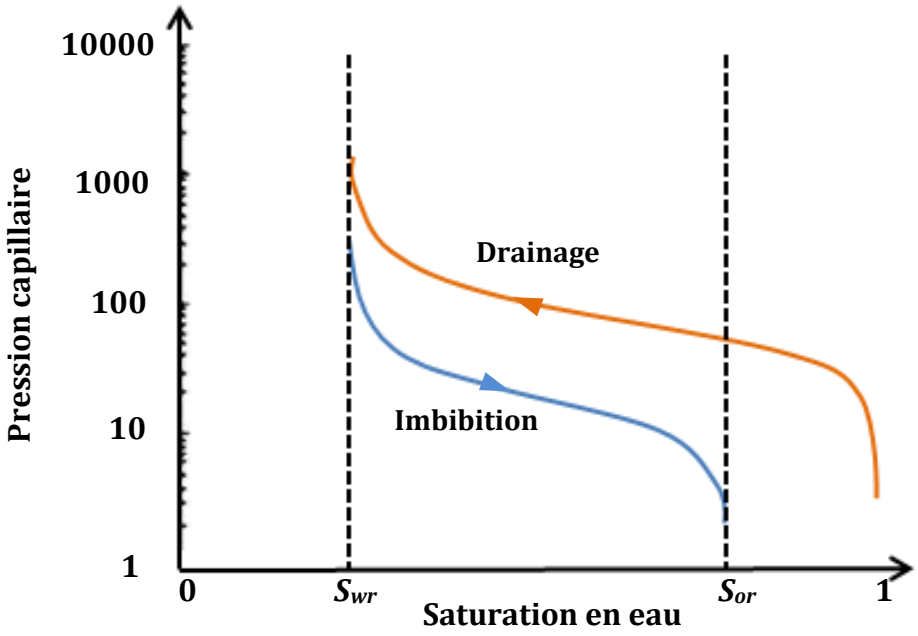


Figure 2.9. Courbes d'imbibition et de drainage (adapté de Lefebvre, 2010).

d. Loi de Darcy généralisée

Lorsque deux fluides ou plus s'écoulent simultanément dans un milieu poreux, cet écoulement peut être décrit par la loi de Darcy généralisée. Les flux d'eau u_w et d'huile u_o en une dimension (suivant x) sont alors donnés respectivement par les expressions (2.22) et (2.23) :

$$u_w = -\frac{k_w}{\mu_w}\left(\frac{dP_w}{dx} + \rho_w g \sin\theta\right) \qquad (2.22)$$

$$u_o = -\frac{k_o}{\mu_o}\left(\frac{dP_o}{dx} + \rho_o g \sin\theta\right) \qquad (2.23)$$

où $\boldsymbol{P}$ est la pression du fluide, $\boldsymbol{\mu}$ est la viscosité du fluide, $\boldsymbol{k}$ est la perméabilité intrinsèque absolue, $\boldsymbol{k_r}$ est la perméabilité relative, $\boldsymbol{\rho}$ est la masse volumique, $\boldsymbol{g}$ est l'accélération de la pesanteur et $\boldsymbol{\theta}$ est l'angle par rapport à l'horizontale. Les indices *w* et *o* indiquent l'eau et l'huile respectivement.

La perméabilité du milieu pour l'écoulement de ces fluides est réduite. On appelle alors perméabilité effective $\boldsymbol{k_e}$ la capacité du milieu à transmettre un fluide en même temps qu'un autre fluide. Par exemple, dans le cas de l'écoulement simultané de l'eau et de l'huile, on a une perméabilité effective pour chacun des fluides, $\boldsymbol{k_w}$ pour l'eau et $\boldsymbol{k_o}$ pour l'huile. Pour un milieu homogène et isotrope on a (2.24), (2.25):

$$\boldsymbol{k_w = k\, k_{rw}(S_w)} \qquad \textbf{(2.24)}$$

$$\boldsymbol{k_o = k\, k_{ro}(S_o)} \qquad \textbf{(2.25)}$$

où $\boldsymbol{k}$ est la perméabilité intrinsèque absolue et $\boldsymbol{k_{rw}}$ et $\boldsymbol{k_{ro}}$ sont les perméabilités relatives aux phases eau et huile respectivement. Ces paramètres dépendent de la saturation de la phase correspondante.

e. Les modèles de capillarité et de perméabilité relative (Lefebvre, 2010)

Les propriétés capillaires contrôlent la saturation des fluides immiscibles en présence, qui à leur tour déterminent la perméabilité relative de ces fluides. Ainsi, pour représenter les écoulements multiphasiques il faut déterminer les perméabilités relatives des fluides présents.

Les courbes de pression capillaire $\boldsymbol{P_c}$ représentent la relation entre la différence de pression entre les deux phases et la saturation en eau $\boldsymbol{S_w}$. Elles peuvent être mesurées au laboratoire, mais leur détermination est souvent longue et difficile. Il est également possible de déterminer ces propriétés sur le terrain lors d'essais d'infiltration en mesurant la saturation dans des forages par des sondes et la pression capillaire par des tensiomètres.

Les modèles de pression capillaire fournissent des expressions analytiques qui représentent les courbes capillaires (c'est-à-dire, la relation entre la saturation et la pression capillaire). Il s'agit d'équations empiriques dont la forme permet de représenter les courbes en "S" typiques. Ces modèles offrent l'avantage de représenter le comportement capillaire par une fonction et certains paramètres plutôt que de nécessiter l'usage de tables de valeurs de saturation et de pression. Ces fonctions sont particulièrement utiles pour décrire les propriétés capillaires lors de la programmation de modèles d'écoulement multiphase.

Les fonctions des modèles de capillarité reliant la pression capillaire et la saturation [$\boldsymbol{P_c}$ = f($\boldsymbol{S_w}$)] sont intégrées dans les modèles de perméabilité relative qui comprennent tous une intégrale des fonctions capillaires selon la saturation [$\boldsymbol{k_r}$ = f ($\int \boldsymbol{P_c}(\boldsymbol{S_w})$)]. La solution résultante donne une relation permettant de déterminer la perméabilité relative en fonction de la saturation [$\boldsymbol{k_r}$ = f($\boldsymbol{S_w}$)].

Modèle de capillarité de Brooks et Corey et Modèle de perméabilité relative de Burdine

Le modèle de capillarité de Brooks et Corey (1964) met en relation la saturation effective et la pression capillaire dans un diagramme log-log. Le degré de saturation effectif S_{we} représente l'intervalle de saturation en eau S_w où l'eau est mobile et est défini par (2.26) :

$$S_{we} = \frac{S_w - S_{wi}}{S_{wmax} - S_{wi}} \qquad (2.26)$$

où S_{wi} est la saturation résiduelle ou irréductible en eau et S_{wmax} est la saturation maximale en eau. Ce modèle n'est valide que pour des pressions capillaires supérieures à la pression d'entrée de l'air (ou pression de déplacement) P_d. Ainsi, les équations du modèle sont les suivantes (2.27), (2.28) et (2.29) :

$$S_{we} = 1 \qquad P_c < P_d \qquad (2.27)$$

$$S_{we} = \left(\frac{P_c}{P_d}\right)^{-\lambda} \qquad P_c \geq P_d \qquad (2.28)$$

$$P_c = P_d (S_{we})^{-\frac{1}{\lambda}} \qquad P_c \geq P_d \qquad (2.29)$$

où λ est appelé l'indice de distribution de la dimension des pores. Cet indice correspond à la pente de la droite obtenue lorsque les valeurs de la pression capillaire et la saturation sont représentés dans un graphique log-log. L'intersection de cette droite avec l'axe de S_{we} à une valeur de log $S_{we} = 1$ donne la pression de déplacement P_d.

Brooks et Corey ont utilisé le modèle de perméabilité de Burdine (1953) (2.30) :

$$k_{rw} = (S_{we})^2 \left(\frac{\int_0^{S_{we}} \frac{dS_{we}}{[P_c(S_{we})]^2}}{\int_0^1 \frac{dS_{we}}{[P_c(S_{we})]^2}} \right) \qquad (2.30)$$

Lorsque le modèle de capillarité de Brooks et Corey est intégré dans le modèle de perméabilité relative de Burdine, on obtient une expression en fonction de la saturation effective S_{we} pour la perméabilité relative de la phase mouillante k_{rw} (2.31) et pour la phase non mouillante k_{ro} (2.32) :

$$k_{rw} = (S_{we})^{(2+3\lambda)/\lambda} \qquad (2.31)$$

$$k_{ro} = (1 - S_{we})^2 (1 - (S_{we})^{\frac{2+\lambda}{\lambda}}) \qquad (2.32)$$

Modèle de capillarité de van Genuchten et modèle de perméabilité relative de Mualem

Un autre modèle de capillarité a été proposé par van Genuchten en 1980, présentant l'avantage de pouvoir être utilisé pour des valeurs de pression capillaire inférieures à la pression de déplacement P_d. L'expression analytique proposée établit la relation entre la saturation effective en eau S_{we} avec la pression capillaire P_c à l'aide de deux paramètres, α et m (2.33) :

$$S_{we} = [1 + (\alpha P_c)^n]^{-m} \qquad (2.33)$$

avec la relation entre m et n fixée par (2.34) :

$$m = 1 - \frac{1}{n} \qquad (2.34)$$

La Figure 2.10 montre l'effet du changement des paramètres α et n sur la forme de la courbe capillaire. On observe que m (ou n) contrôle la « courbure » tandis que α détermine « l'élévation » du plateau de la courbe.

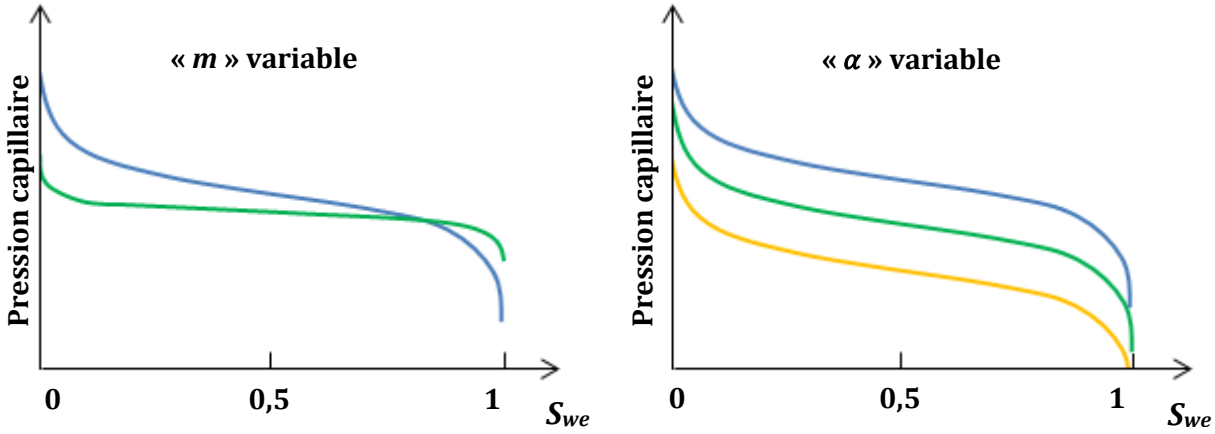


Figure 2.10. Effet des paramètres *m* et *n* du modèle de capillarité de Van Genuchten sur les courbes de pression capillaire en fonction de la saturation en phase mouillante (adapté de Lefebvre, 2010).

Le modèle de capillarité de van Genuchten peut être intégré dans le modèle de perméabilité relative de Mualem (1976) (2.35) :

$$k_{rw} = \sqrt{S_{we}} \left(\frac{\int_0^{S_{we}} \frac{dS_{we}}{P_c(S_{we})}}{\int_0^1 \frac{dS_{we}}{P_c(S_{we})}} \right)^2 \qquad (2.35)$$

Van Genuchten a obtenu la relation entre la saturation effective S_{we} et la perméabilité relative de la phase mouillante k_{rw} (2.36). Parker (1989) a obtenu de façon similaire la relation pour la phase non mouillante k_{ro} (2.37) :

$$k_{rw} = \sqrt{S_{we}}\ [1 - (1 - S_{we}^{1/m})^{m}]^{2} \quad (2.36)$$

$$k_{ro} = \sqrt{1 - S_{we}}\ [1 - S_{we}^{1/m}]^{2m} \quad (2.37)$$

f. La Fonction J de Leverett

Les courbes capillaires de presque tous les matériaux poreux ont des caractéristiques communes. Ce fait a conduit à des tentatives d'élaborer une équation générale décrivant toutes ces courbes. Leverett (1941) a abordé ce problème du point de vue de l'analyse dimensionnelle. Réalisant que la pression capillaire P_c devait dépendre de la porosité ϕ, de la tension interfaciale σ et de la perméabilité k, Leverett a défini la fonction J, une fonction de la saturation décrivant la pression capillaire (2.38) :

$$J(S_w) = \frac{P_c}{\sigma}\sqrt{\frac{k}{\phi}} \quad (2.38)$$

La fonction J (Figure 2.11) a pour objectif de représenter de manière unique les courbes de pression capillaire de différents milieux poreux. On observe cependant des différences notables selon le type de milieu poreux ainsi que selon le fluide considéré. Cette fonction reste très utile pour estimer la relation pression capillaire-saturation dans de nombreux cas.

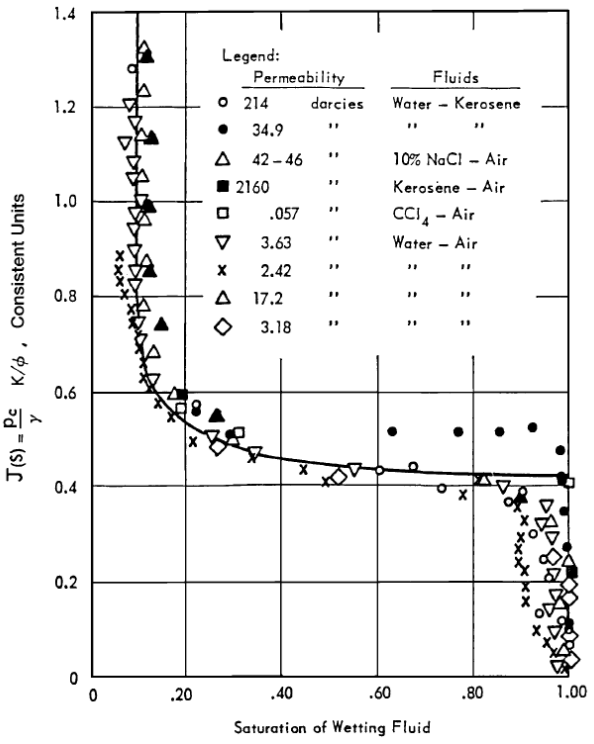


Figure 2.11. Fonction J de Leverett pour des sables non consolidés (Leverett, 1941).

g. Piégeage à différentes échelles

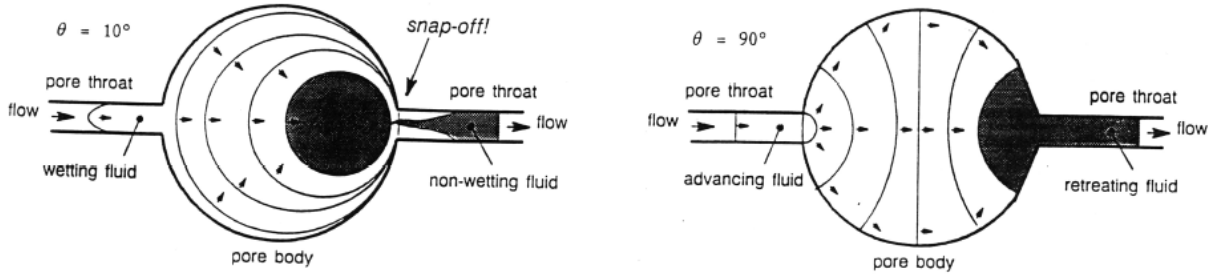
Le milieu poreux pouvant être observé à plusieurs échelles, on peut distinguer des phénomènes de piégeage propres à chaque échelle**.**

Échelle du pore, dite microscopique

Les deux phénomènes de piégeage les plus importants à l'échelle microscopique sont le « *snap-off* » et le « *by-passing* », que l'on va décrire ci-dessous :

- Phénomène d'instabilité capillaire ou « *snap-off* » (de Lalaing, 1997)

  Le phénomène de « *snap-off »* capillaire se produit au seuil de pore lorsqu'un fluide non mouillant (e.g. NAPL) est déplacé par un fluide mouillant (e.g. eau). L'eau étant considérée comme plus mouillante que le NAPL, l'angle de contact est inférieur à *90*°. L'eau s'écoule à proximité des parois solides et verra sa vitesse augmenter au seuil de pore, provoquant un épaississement du film jusqu'à sa rupture et création d'une goutte de fluide non mouillant. Le phénomène de « *snap-off* » est très dépendant de la mouillabilité tel que le représente la Figure 2.12. La géométrie des pores joue aussi un rôle fondamental, qui peut être quantifié au travers du rapport entre les dimensions du corps du pore et du seuil du pore, comme le montre la Figure 2.13.

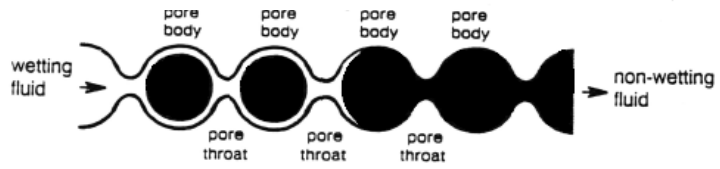


Wetting fluid displacing a non-wetting fluid from a circular, high aspect ratio pore under strongly wet conditions

Wetting fluid displacing a non-wetting fluid from a circular, high aspect ratio pore under low wetting conditions

Figure 2.12. Schéma du phénomène d'instabilité capillaire ou « *snap-off* » (Chatzis *et al*., 1983).

High aspect ratio pores (snap-off)



Low aspect ratio pores (no snap-off)

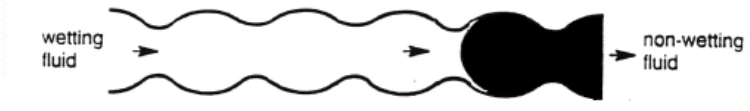


Figure 2.13. Influence de la forme des pores dans le phénomène « *snap-off* » (Chatzis *et al*., 1983).

- Phénomène de contournement ou « *by-passing* »

Pour expliquer le mécanisme de contournement on utilise le modèle du doublet, qui est constitué d'un tube qui se divise en deux pores de différents diamètres qui se rejoignent plus tard. On doit distinguer deux situations pour décrire le phénomène de « *by-passing* » :

Dans le cas où **les forces capillaires sont dominantes**, c'est le premier capillaire qui contrôle le flux de fluide mouillant lorsqu'il déplace le NAPL. L'eau se déplace plus rapidement dans le capillaire le plus étroit que dans le capillaire de plus grand diamètre. Lorsque l'eau atteint le nœud en aval (où les pores se rejoignent), deux phénomènes peuvent se produire (Figure 2.14) :

- « *No trapping* » : l'eau forme un ménisque stable avec le NAPL si la section transversale au niveau du nœud en aval est plus grande que l'entrée du plus grand des pores. L'eau peut alors pousser le NAPL vers la sortie du plus grand pore.
- « *Trapping* » : la section transversale au niveau du nœud en aval est plus étroite que l'entrée du plus grand pore. Ainsi, le ménisque stable ne se forme pas et le NAPL du pore le plus grand reste déconnecté du reste du NAPL, qui est maintenant piégé dans le pore.

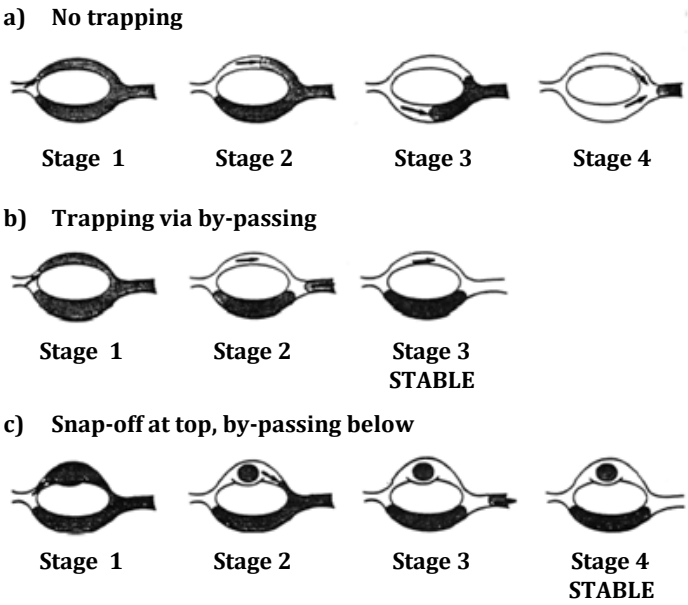


Figure 2.14. Phénomène de contournement ou « *by passing* » avec le modèle du pore doublet (Chatzis *et al*., 1983).

Dans le cas où **les forces visqueuses sont dominantes**, le flux de fluide mouillant se déplace plus rapidement dans le capillaire de plus grand diamètre (loi de Poiseuille) laissant une phase piégée dans le capillaire de petit diamètre.

Dans certains cas, en fonction de la géométrie des pores, les phénomènes de « *snap-off* » et de « *by passing* » peuvent se superposer comme le représente la Figure 2.14.c.

Le piégeage à l'échelle du pore est donc dépendant du rapport entre les effets capillaires et les effets visqueux. On définit donc un nombre adimensionnel, le nombre capillaire N_{ca}, comme le rapport entre les effets visqueux et les effets capillaires (2.39).

$$N_{ca} = \frac{\mu v}{\sigma} \qquad (2.39)$$

où μ est la viscosité du fluide déplaçant, v est la vitesse d'écoulement et σ est la tension interfaciale. Des relations entre les saturations résiduelles et le nombre capillaire ont été établies, comme le montre la Figure 2.15.

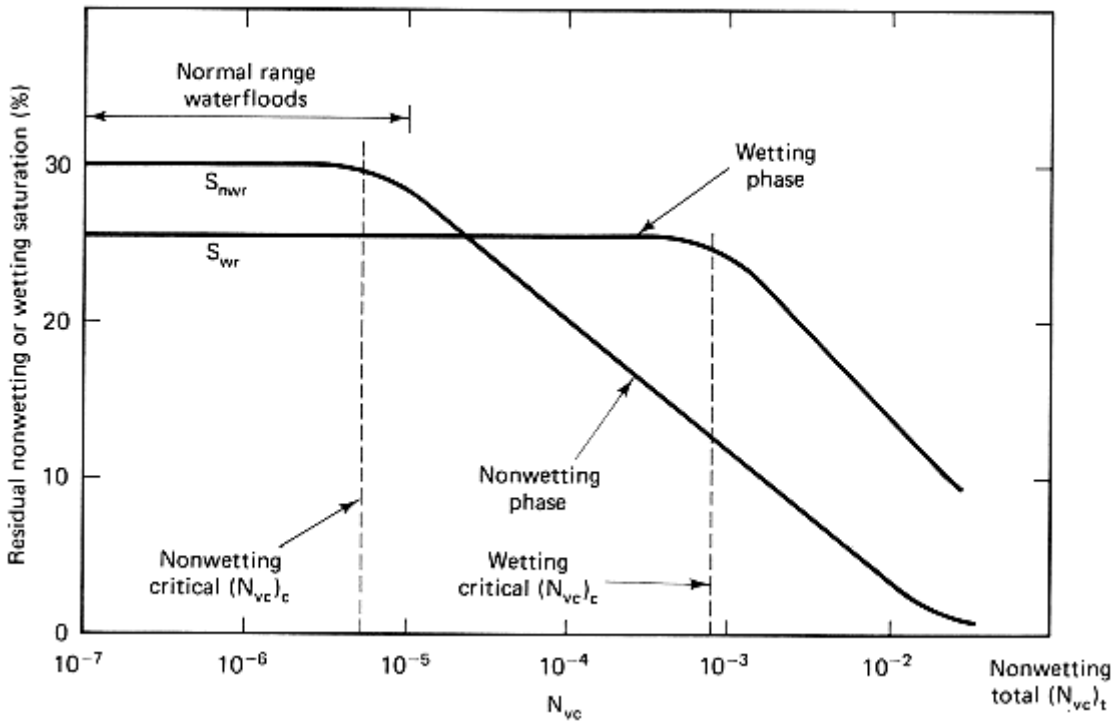


Figure 2.15. Courbes de saturation résiduelle en fonction du nombre capillaire N_{ca} (Lake, 1989).

La saturation résiduelle diminue quand le nombre capillaire augmente. Pour atteindre des bons niveaux de dépollution, des nombres capillaires plus grands que 10^{-3} sont nécessaires. Pour rendre le nombre capillaire plus grand, plusieurs stratégies peuvent être utilisées, la diminution de la tension interfaciale étant la plus intéressante. Ainsi, l'utilisation d'agents tensioactifs permet d'obtenir des nombres capillaires plus grands et des processus de dépollution plus efficaces.

Échelle locale, dite macroscopique ou de Darcy

Le piégeage à cette échelle peut se produire à la suite des effets de percolation (non balayage de certaines zones) ou bien à cause de variations de mouillabilité de certaines parties.

Échelle globale ou grande échelle

Le piégeage à cette échelle est dû à des hétérogénéités des différentes couches qui constituent les milieux poreux (strates avec différentes perméabilités, par exemple).

La dépollution des sols hétérogènes est gênée par la présence d'hétérogénéités de perméabilité. Ainsi, éliminer une lentille de NAPL piégée dans une zone à faible perméabilité est difficile, du fait que l'eau et les liquides pour la remédiation circulent préférentiellement à travers les zones à forte perméabilité, laissant les couches à faible perméabilité écartées du chemin suivi. Ainsi, l'utilisation de polymères et de mousse de tensioactif peut avoir un effet très positif dans la dépollution de milieux hétérogènes.

h. Dispersion active vs. dispersion passive

Lorsque les aquifères contiennent des NAPLs piégés, du fait que les eaux souterraines se déplacent à des faibles vitesses, les polluants se mélangent et se répandent lentement. Malgré la faible solubilité du NAPL, la saturation résiduelle peut être une source de contamination à des niveaux qui dépassent fortement les standards de qualité.

L'échange de masse entre le NAPL et l'eau en écoulement de l'aquifère se caractérise par la dissolution. C'est l'un des principaux mécanismes de pollution de l'aquifère. Le processus de dissolution conduit à la formation d'un panache de pollution par les traces dissoutes dont la propagation est régie par les mécanismes d'advection, de diffusion et de dispersion.

La dissolution des phases piégées de NAPL est désignée sous le nom de dispersion active par opposition à la dispersion passive de produits miscibles. La dispersion active diffère de la dispersion classique par la présence de source de pollution sous forme de polluants piégés dans l'aquifère (Figure 2.16).

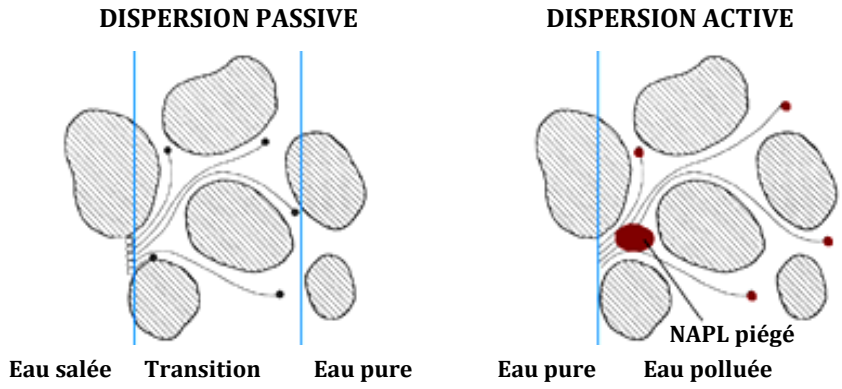


Figure 2.16. Dispersion active vs. dispersion passive.

2. Mousse

2.1. Mousse hors milieu poreux

Le terme générique de « mousse » sert à qualifier un état de la matière, métastable thermodynamiquement, dans lequel une phase gazeuse discontinue est dispersée dans une phase aqueuse dont la continuité est assurée par l'existence de films liquides stabilisés par des molécules tensioactives.

2.1.1. Tensioactifs (Larpent, 1995 ; Hernández, 2004)

Les tensioactifs (appelés en anglais « *surfactants* », abréviation de SURFace ACTive AgeNTS) sont des molécules qui comportent deux parties de polarités différentes :

- Une **queue lipophile** (apolaire) présentant une affinité pour l'huile. Elle est constituée le plus souvent par des chaines hydrocarbonées longues (C_{14} – C_{18}), linéaires, ramifiées et parfois associées à des anneaux aromatiques.
- Une **tête hydrophile** (polaire) pouvant être constituée par un ou plusieurs groupements polaires ioniques ou non ioniques.

C'est grâce à cette double affinité que l'on appelle ces molécules amphiphiles. La Figure 2.17 montre la structure typique d'une de ces molécules.

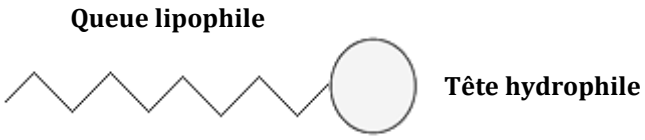


Figure 2.17. Schéma de la structure d'une molécule amphiphile.

a. Types de tensioactifs

Les tensioactifs peuvent être classés en quatre grands groupes, en fonction de la nature de la partie hydrophile puisque celle-ci gouverne leurs propriétés :

- **Tensioactifs anioniques.** Ils se dissocient en un anion amphiphile (un carboxylate, sulfate, sulfonate ou phosphate) et un cation, qui est en général un métal alcalin ou un ammonium quaternaire. Appartiennent à ce groupe les détergents synthétiques comme l'alkyl benzène sulfonate, les savons (sels d'acides gras), les agents moussants comme le laurylsulfate et les humectants comme les sulfosuccinates. Ce sont les tensioactifs les plus utilisés industriellement.

- **Tensioactifs cationiques.** Ils se dissocient en un cation organique amphiphile et un anion de type halogénure. La plupart de ces tensioactifs sont des composés azotés, comme les sels d'amines ou des ammoniums quaternaires.
- **Tensioactifs non ioniques.** Ils ne se dissocient pas dans des solutions aqueuses, l'hydrophilie est apportée par des groupements fonctionnels non chargés (alcool, éther, ester, amide) contenant des hétéroatomes tels que l'azote ou l'oxygène. Ces fonctions ont une faible contribution à l'hydrophilie, c'est pour cela que ce type de tensioactifs est souvent polyfonctionnel : polyéthers (tensioactifs polyéthoxylés) ou polyols (tensioactifs dérivés de sucres).
- **Tensioactifs zwitterioniques ou amphotères**. Ils comportent deux groupes ioniques, l'un cationique et l'autre anionique, qui se neutralisent au pH isoélectrique. Les plus répandus sont les bétaïnes et les sulfobétaïnes.
- **Autres types.** Il existe une grande variété de tensioactifs qui ne correspondent pas aux descriptions précédentes, comme les polymériques, les fluorés, et cætera.

b. Comportement et propriétés. Concentration Micellaire Critique

Comme les molécules des tensioactifs comportent une partie hydrophile et une partie lipophile, elles ont tendance à se placer aux interfaces, de façon à ce que la partie hydrophile s'oriente vers l'eau et la partie lipophile vers la phase huile. Ce phénomène, appelé adsorption, apparait aux interfaces liquide-liquide, liquide-solide et liquide-gaz, et provoque une diminution de la tension interfaciale entre les deux phases considérées. Selon la loi de Gibbs, la tension interfaciale diminue quand la concentration de tensioactif à l'interface augmente, et quand cette interface est saturée la tension interfaciale est minimale et constante (Figure 2.18). A partir de cette concentration, appelée Concentration Micellaire Critique (CMC), les molécules en excès s'autoassocient en solution sous forme d'agrégats appelés micelles.

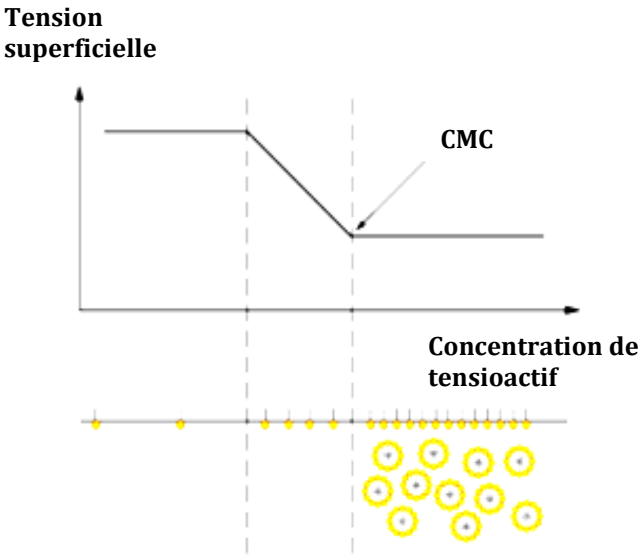


Figure 2.18. Évolution de la tension superficielle en fonction de la concentration de tensioactif.

Ces structures peuvent être des micelles directes, si les chaînes hydrophobes constituent le cœur et les têtes polaires sont au contact avec l'eau, ou des micelles inverses, si ce sont les têtes polaires qui occupent le cœur de la micelle et les chaînes l'extérieur (Figure 2.19). Leur forme (sphérique, cylindrique, bicouche, etc.) dépend de la nature du tensioactif et de sa concentration. Un paramètre important est la température de Krafft (ou température micellaire critique), au-dessous de laquelle les micelles ne se forment pas.

C'est grâce aux micelles que les tensioactifs présentent le phénomène de solubilisation : dans une micelle directe, un composé hydrophobe peut être solubilisé à l'intérieur du cœur hydrophobe. Cette capacité de solubilisation dépend de la taille des micelles.

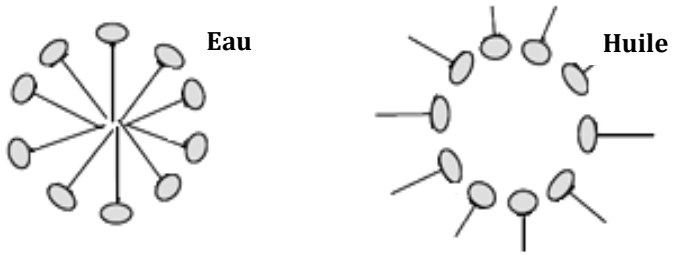


Figure 2.19. Structures micellaires (Hernández, 2004).

c. Hydrophilic – Lipophilic Balance (HLB)

Le HLB permet de préciser la nature plutôt hydrophile ou plutôt lipophile d'un tensioactif. Ce paramètre, qui croît avec le caractère hydrophile du tensioactif et qui varie de *0* à *20* a été défini par Griffin (1949, 1954) pour les tensioactifs non ioniques (2.40) :

$$\boldsymbol{HLB = 20\,\frac{Mh}{M}} \qquad \textbf{(2.40)}$$

où ***M*** est la masse moléculaire de la molécule et ***Mh*** est la masse moléculaire de la partie hydrophile. Un HLB faible (< *9*) indique un caractère lipophile (soluble dans l'huile) et un HLB fort (> *11*) détermine un caractère hydrophile. En général, les émulsifiants W/O ont des HLB compris entre *3* et *8* et les émulsifiants O/W entre *8* et *18*. La valeur du HLB est souvent précisée par les fournisseurs. Il existe d'autres formules pour des tensioactifs non ioniques. Par exemple, pour les tensioactifs non ioniques polyéthoxylés, le HLB est donné par (2.41) :

$$\boldsymbol{HLB = \frac{E + P}{5}} \qquad \textbf{(2.41)}$$

où ***E*** est le pourcentage en masse des motifs éthoxy et ***P*** est le pourcentage en masse de polyol. Pour les esters d'acides gras, le HLB est donné par l'expression (2.42) :

$$HLB = 20\left(1 - \frac{S}{A}\right) \quad (2.42)$$

où S est l'indice de saponification de l'ester et A est l'indice d'acide de l'acide gras.

Le HLB est un indicateur des caractéristiques du tensioactif (voir Tableau 2.1), mais pas de son efficacité. Une autre limitation de ce paramètre est qu'il varie avec la température, tout comme la solubilité. Par exemple un tensioactif peut stabiliser des émulsions O/W à basse température mais des émulsions W/O à de plus hautes températures. La température de transition où les natures hydrophile et lipophile du tensioactif sont les mêmes est appelée PIT (« *Phase Inversion Temperature* ») ou HLB température.

Tableau 2.1. Relations entre HLB et propriétés fonctionnelles.

HLB	Propriétés
1,5 – 3	*Anti-moussant*
3 – 6	*Emulsifiant dans l'huile*
7 – 9	*Moussant*
8 – 13	*Emulsifiant huile dans eau*
13 – 15	*Détergent*
15 – 20	*Solubilisant*

d. Tensioactifs et dépollution des sols

On peut mettre à profit les propriétés des tensioactifs pour la dépollution des sols. Deux mécanismes sont mis en jeu pour extraire les polluants des aquifères (McCray *et al*., 2011) :

- **Solubilisation.** Les hydrocarbures sont piégés à l'intérieur des micelles. De cette façon on augmente fictivement la solubilité de l'huile dans l'eau. A de faibles concentrations de tensioactif (inférieures à la CMC) le contaminant est présent à sa valeur limite de solubilité dans l'eau. Pour des valeurs de la concentration supérieures à la CMC le piégeage de l'huile par formation d'une microémulsion augmente progressivement au fur et à mesure que la quantité de micelles augmente. La capacité d'un tensioactif à améliorer la solubilité d'un hydrocarbure dans l'eau peut être représentée par le rapport entre le nombre de moles d'hydrocarbure et le nombre de moles de tensioactif sous forme micellaire, ce qui est appelé ratio molaire de solubilisation MSR (« *Molar Solubilization Ratio* »). Si le tensioactif et l'huile sont exprimés en moles, on peut calculer le MSR comme la pente de la courbe de solubilité au dessus de la CMC. Par contre si la masse moléculaire exacte du tensioactif n'est pas connue, les concentrations de celui-ci ne pourront être exprimées qu'en masse. Quelque soient les données disponibles, la pente de la courbe de solubilité en masse est aussi une bonne indication de la capacité de solubilisation du tensioactif.

- **Mobilisation.** Ce mécanisme fait référence au déplacement de l'huile piégée sous forme de lentilles quand la concentration en tensioactif se situe au dessous de la CMC. Ce déplacement est dû à des réductions de la tension interfaciale huile-eau, qui éliminent les forces capillaires qui piègent l'huile au sein du milieu poreux, lui permettant ainsi de se déplacer avec l'eau et d'être enlevée.

Ainsi, on peut utiliser les tensioactifs de trois façons différentes pour la dépollution des sols : en solution, sous forme de mousse ou micromousse et combinés avec des polymères.

2.1.2. Structure et phénomènes impliqués dans la formation et stabilité des lamelles

a. Description de la mousse

Décrire les mousses d'un point de vue géométrique est une tâche compliquée, du fait que leur structure varie dans le temps et l'espace. On peut distinguer deux types de mousses : les mousses humides, contenant une fraction volumique de liquide élevée (normalement de *5* à *30 %*) et formées principalement par des bulles sphériques ; et les mousses sèches, contenant très peu de liquide (environ *2 %*) et formées par des bulles polyédriques.

La **qualité de la mousse** Q_{mousse} est un paramètre indiquant la fraction volumique de gaz que contient une mousse, c'est-à-dire (2.43) :

$$Q_{mousse} = \frac{Volume\ de\ gaz}{Volume\ total\ de\ mousse} \qquad (2.43)$$

Les bulles de gaz sont séparées par des films liquides. Dans le cas d'une mousse sèche, ces films sont des lamelles à faces parallèles se rejoignant à un angle de *120*° pour former les bords de Plateau (du nom du physicien belge Joseph Plateau qui a décrit la structure des mousses à la fin du XIX^{e} siècle) (Figure 2.20). Les bords de Plateau forment des canaux de section triangulaire, qui s'unissent dans des nœuds permettant l'existence d'un réseau au sein duquel peut s'écouler le liquide.

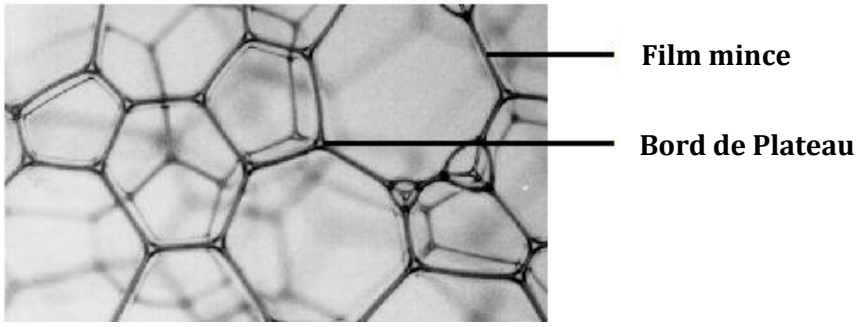


Figure 2.20. Structure d'une mousse sèche (adapté de : http://www.physics.ucla.edu/~dws/foam.html).

Après sa formation, la structure de la mousse évolue sous l'effet des forces de gravité, des forces capillaires et du déplacement relatif des fluides qui la composent, qui dépendent de plusieurs variables telles que la taille des bulles, la température, la pression, la nature des fluides, etc. On peut distinguer trois phénomènes :

Ségrégation gravitaire

Juste après sa formation, si les bulles ont des tailles différentes, sous l'effet de la poussée d'Archimède, ce sont les bulles les plus grandes qui auront tendance à se déplacer vers le haut. Ensuite, quand on n'observe plus de mouvements macroscopiques de bulles, on assiste au drainage du liquide vers le bas, à travers le réseau de canaux qui unissent les bords de Plateau. De ce fait, la mousse devient de plus en plus sèche dans la partie supérieure, alors qu'elle devient de plus en plus humide dans la partie inférieure grâce au liquide provenant de la partie haute. Ainsi, dans la partie supérieure la mousse est formée par des bulles polyédriques et dans la partie inférieure par des bulles sphériques, comme le montre la Figure 2.21.

Succion capillaire

Ce phénomène est dû à la concavité de la surface dans les bords de Plateau. D'après la loi de Laplace (2.3), cela résulte en un déficit de pression par rapport à celle au sein du liquide dans les films. Le liquide migre donc vers les bords de Plateau.

Diffusion gazeuse

Le gaz étant présent de part et d'autre du film liquide on observe un phénomène de diffusion moléculaire du gaz vers l'eau et de l'eau vers le gaz qui provoque un amincissement du film d'eau jusqu'à sa rupture. La pression dans les petites bulles étant supérieure à celle dans les grandes bulles conduit à une disparition des petites bulles au profit des grosses (phénomène de « c*oarsening* »).

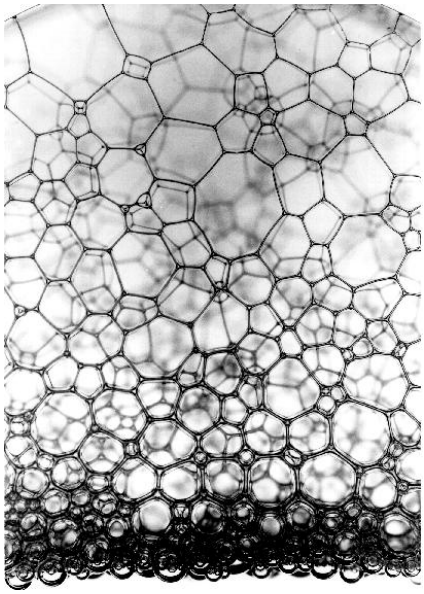


Figure 2.21. Ségrégation gravitaire : la structure de la mousse varie avec la hauteur (source : http://www.physics.ucla.edu/~dws/foam.html).

b. Pression de disjonction

La mousse étant une dispersion de gaz dans une phase liquide continue, la phase gaz est organisée sous forme de bulles, qui sont en contact à travers des films de liquide appelés lamelles. L'énergie par unité de surface nécessaire pour rapprocher les deux surfaces d'un film jusqu'à ce qu'ils soient séparés par une distance h est appelée **pression de disjonction Π**, exercée par les molécules contenues dans le film. Selon la théorie DLVO classique (du nom de ses auteurs, Derjaguin, Landau, Verwey et Ovserbeek), quand le film devient plus mince, les deux surfaces de la lamelle interagissent à travers des pressions électrostatiques positives de répulsion (Π_{EL}) et des pressions négatives d'attraction de Van der Waals (Π_{VW}). Il y a aussi une contribution à faible portée des répulsions stériques entre atomes de type liaisons d'hydrogène (Π_{ST}). Ainsi, la pression de disjonction peut être exprimée de la façon suivante (2.44) :

$$\Pi = \Pi_{EL} + \Pi_{VW} + \Pi_{ST} \qquad (2.44)$$

Des valeurs fortement positives de pression de disjonction impliquent des forces de répulsion entre les deux surfaces des lamelles, ce qui favorise la stabilité des films. Par contre, des forces négatives d'attraction donnent des films instables.

Les films de mousse sont toujours en contact avec le ménisque du liquide utilisé pour les générer. La pression dans ce ménisque (pression capillaire P_c) est différente de celle d'une grande interphase gaz/liquide à cause de la courbure, et est définie par la Loi de Young-Laplace (2.20). Dans un état d'équilibre (ou quasi-statique), les trois composantes de la pression de disjonction agissent pour équilibrer la pression capillaire, c'est-à-dire, $P_c = \Pi$.

La pression de disjonction peut être considérée comme une fonction de l'épaisseur des films h (en première approximation), comme le montre la Figure 2.22.

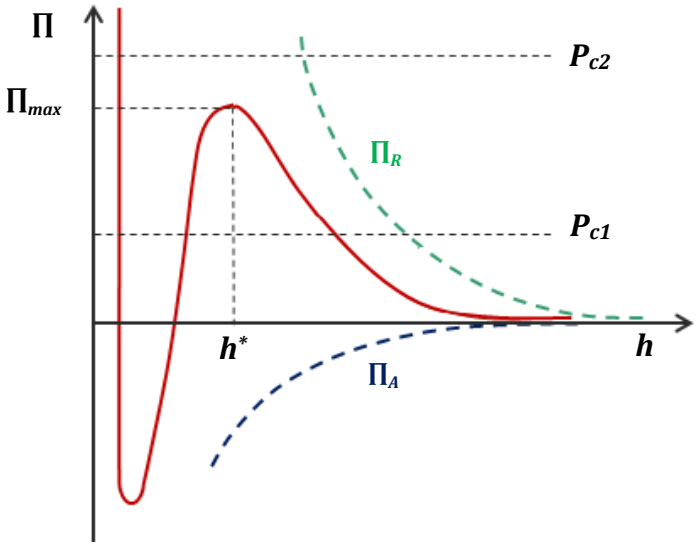


Figure 2.22. Représentation schématique d'une isotherme de pression de disjonction Π (ligne solide), résultat de la contribution des forces attractives (van der Waals Π_{VW}) et répulsives Π_R (répulsions électrostatiques Π_{EL} et stériques Π_{ST})(lignes pointillés)(Chambers et Radke, 1991).

Pour des épaisseurs de lamelle très grandes, cette pression est nulle car les molécules de tensioactif n'interagissent pas entre elles. Quand l'épaisseur diminue, la contribution électrostatique devient importante et Π augmente jusqu'à Π_{max}, valeur maximale de la pression de disjonction. Les films correspondants à cette région sont dénommés « *Common Black Film* ». Si l'épaisseur diminue encore, les interactions de type Van der Waals deviennent importantes, la pente de la courbe change de signe et on arrive à un minimum. Pour des épaisseurs h encore plus faibles, les interactions de type stérique sont la principale contribution et la pente de la courbe change encore de signe. Les films de cette région de la courbe sont nommés « *Newton Black Film* ». Par contre il a été démontré par une approche thermodynamique que seulement la partie de la courbe dont la pente est négative est stable (Vrij, 1966). Ainsi, pour des valeurs de pression capillaire imposée par le milieu inférieures à Π_{max}, il y a deux possibilités pour l'épaisseur du film, un dans la zone « *Newton Black Film* », très instable, et autre dans la région « *Common Black Film* », qui est stable.

C'est cette pression de disjonction qui empêche le drainage du liquide vers les bords de Plateau (succion capillaire) en équilibre avec la pression capillaire imposée par le milieu. Pour une pression capillaire donnée, le film adapte son épaisseur afin d'ajuster la pression de disjonction. Les pressions capillaires supérieures à Π_{max} déstabilisent les lamelles.

La pression de Van der Waals de l'équation (2.7) est négative pour des films symétriques (air/eau/air). Néanmoins, pour des films asymétriques (par exemple huile/eau/air) elle peut aussi être positive. C'est-à-dire, cette force peut être attractive ou répulsive. On a deux cas possibles (par convention les forces répulsives sont positives et les attractives sont négatives, il faut utiliser le module des forces attractives) :

- $\Pi_{EL} + \Pi_{ST} > |\Pi_{VW}| + |P_c|$ les surfaces du film sont écartées et la mousse est stable.

- $\Pi_{EL} + \Pi_{ST} < |\Pi_{VW}| + |P_c|$ les surfaces du film sont très proches (ou en contact) et la mousse se déstabilise ou collapse.

c. Effet Gibbs - Marangoni et importance de la CMC (Salager et Choplin, 2008)

Pour que la mousse se forme, il faut incorporer un gaz sous forme dispersée dans la solution de tensioactif. La formation de bulles génère une augmentation de la surface de l'interface gaz-liquide qui permet l'accumulation des molécules de tensioactif sur cette interface. La vitesse d'accumulation dépend de la concentration du tensioactif dans le liquide et de son transport vers l'interface. Pour un tensioactif de faible masse molaire cette accumulation est très rapide et on peut dire qu'en une fraction de seconde elle est proche de sa valeur d'équilibre. Pour d'autres systèmes, l'accumulation peut durer plusieurs minutes (ou plus) et tout se passe comme s'il n'y avait pas de tensioactif dans le liquide au moment où les bulles s'accumulent les unes sur les autres. De ce fait, les films ne résistent pas à l'étirement produit par les contraintes mécaniques imposées, ils se rompent et la mousse ne se forme pas.

Les films liquides ou lamelles sont élastiques, et ceci est dû à l'effet Gibbs-Marangoni. Il s'agit de deux effets complémentaires. L'effet Gibbs est lié au changement de la tension

superficielle avec l'accumulation de tensioactif à l'interface. Quand deux bulles se rapprochent, la surface s'étire et la quantité de molécules de tensioactif par unité de surface diminue, ce qui produit une augmentation de la tension superficielle dans la zone étirée. Comme l'équilibre n'est pas atteint instantanément, il existe un gradient de tension superficielle entre la zone étirée du film et la zone adjacente, ce qui produit un déplacement des molécules de tensioactif vers la zone étirée sous l'effet Marangoni. En conséquence, l'amincissement de la lamelle s'arrête et on empêche le drainage des films, en garantissant la survie de la mousse. On appelle ce phénomène élasticité des films. La Figure 2.23 montre les différentes étapes de l'effet Gibbs-Marangoni.

L'efficacité de l'effet Gibbs-Marangoni nécessite d'une variation suffisante de la tension superficielle entre la zone étirée et la zone adjacente. Selon la courbe de la tension interfaciale en fonction de la concentration de tensioactif au sein du liquide (Figure 2.24, à gauche), on constate qu'à très basse concentration, la variation de la tension en fonction de l'adsorption est très faible, insuffisante pour produire un gradient capable de ramener du liquide dans la zone étirée. Par contre, si la concentration est supérieure à la CMC, la tension est constante et le gradient nul.

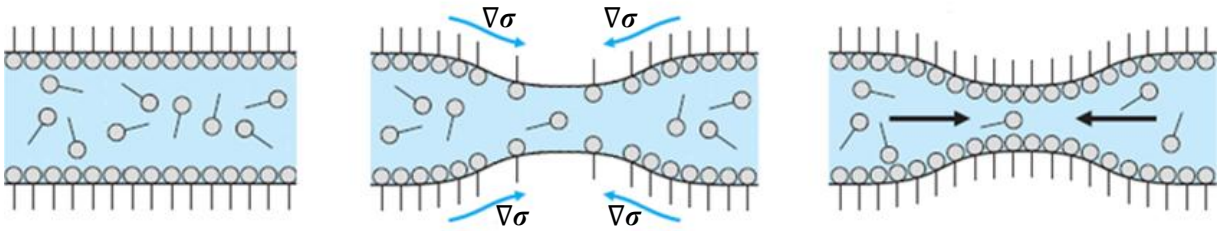


Figure 2.23. Effet Gibbs - Marangoni. À gauche : film de liquide avec des molécules de tensioactif adsorbées à l'interface. Au milieu : le film est étiré : la concentration de molécules dans cette zone diminue et la tension superficielle augmente, en produisant un gradient de cette tension entre la zone étirée et la zone adjacente du film. À droite : les molécules de tensioactif se déplacent vers la zone étirée, empêchant la rupture du film (adapté de Salager et Choplin, 2008).

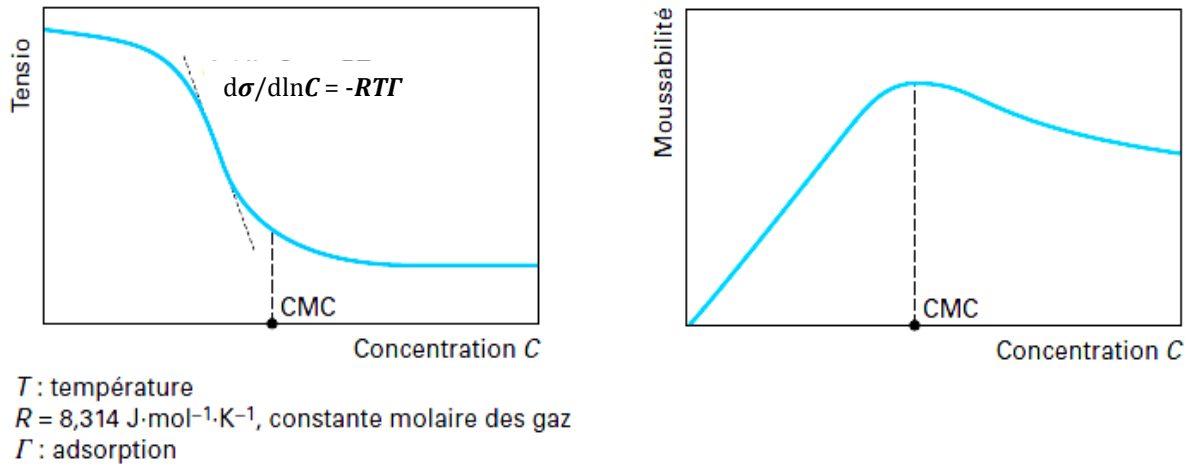


Figure 2.24. À gauche : variation de la tension superficielle en fonction de la concentration de tensioactif. À droite : variation de la moussabilité en fonction de la concentration de tensioactif. (Salager et Choplin, 2008).

Théoriquement, la moussabilité est maximale lorsque le gradient de tension est maximal, ce qui se produit un peu en dessous de la CMC (Figure 2.24). Néanmoins, les micelles présentes dans les films à très faible distance de l'interface agissent comme un réservoir de tensioactif qui alimente l'adsorption dans la zone étirée par un déplacement plus court et donc plus rapide que le mouvement superficiel. On peut donc dire que l'efficacité de l'effet Gibbs-Marangoni tend à diminuer pour des concentrations supérieures à la CMC. Mais cette diminution est très lente et l'effet doit être considéré comme plutôt théorique que pratique.

On constate dans la pratique que la moussabilité est souvent maximale à une concentration un peu supérieure à la CMC et qu'elle reste pratiquement constante sur un ordre de grandeur de concentration. Il n'est pas nécessaire d'augmenter la concentration en tensioactif très au-delà de la CMC pour assurer une bonne moussabilité. De ce fait, on utilise plutôt une concentration de l'ordre de *5* à *10* fois la CMC. Cet excès de tensioactif sous forme de micelles ne réduit pratiquement pas la moussabilité et constitue une réserve de tensioactifs dans le voisinage de l'interface, capable de libérer des molécules susceptibles de s'adsorber rapidement et donc d'abaisser la tension dynamique dans des délais très brefs.

2.1.3. Stabilité de la mousse en présence d'huile (Farajzadeh et al., 2012)

La présence de traces d'huile ou de particules hydrophobes a un effet négatif sur la stabilité de la mousse. Comme la mousse est un système fermé, l'huile entre en contact avec la surface la plus externe. Il y a de nombreuses théories expliquant la façon dont l'huile influence la stabilité des lamelles. La Figure 2.25 montre la structure typique de la mousse au sein du milieu poreux en présence d'huile.

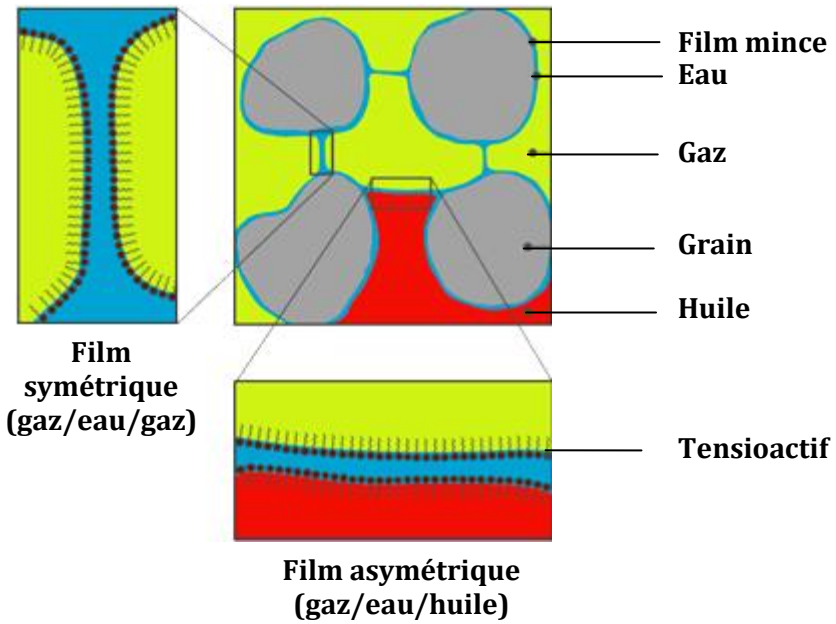


Figure 2.25. Structure de la mousse en milieu poreux en présence d'huile (Farajzadeh *et al.*, 2012).

a. Appauvrissement en tensioactif

Quand deux interfaces d'un film s'approchent suffisamment et atteignent l'épaisseur critique, la valeur de la composante de Van der Waals de la pression de disjonction devient très importante et la lamelle collapse. L'huile peut changer la tension de surface des lamelles et augmenter la probabilité de formation de lieux dans les films avec une épaisseur plus faible que l'épaisseur critique. Cela peut être expliqué par une réduction locale de la concentration de tensioactif dans la lamelle, qui se répartie dans la phase oléique ou se déplace vers l'interface eau/huile.

Néanmoins, en général on utilise des solutions de tensioactifs dont la concentration est bien supérieure de la CMC, ce qui veut dire que la quantité de molécules disponible est assez grande pour pouvoir compenser le déplacement de quelques molécules vers les interphases autres que gaz/eau.

b. Entrée et étalement de l'huile dans les films

Pour déstabiliser la mousse, l'huile doit pénétrer la surface eau/gaz. Cela peut être évalué à l'aide du *coefficient d'entrée* $\boldsymbol{E_{o/w}}$ (« *entering coefficient* ») avec l'expression proposée par Harkins et Feldman (1922) (2.45) :

$$\boldsymbol{E_{o/w} = \sigma_{wg} + \sigma_{ow} - \sigma_{og}} \qquad \textbf{(2.45)}$$

où $\boldsymbol{\sigma}$ est la tension d'interphase et les indices o, w et g représentent l'huile, l'eau et le gaz respectivement. Si le coefficient $\boldsymbol{E_{o/w}}$ est négatif, la goutte d'huile reste dans la phase aqueuse, qui peut être aussi en contact avec la phase gazeuse. Par contre si le coefficient $\boldsymbol{E_{o/w}}$ est positif, l'huile traverse la surface eau/gaz et s'étale.

Normalement quand une goutte d'huile pénètre une interphase eau/gaz, elle s'étale sur la surface. Ainsi, le film symétrique gaz/eau/gaz est remplacé par un film asymétrique huile/eau/gaz qui peut devenir instable. Le *coefficient d'étalement* $\boldsymbol{S_{o/w}}$ (« *spreading coefficient* ») pour une goutte d'huile sur une surface gaz/eau est exprimé de la façon suivante (2.46) :

$$\boldsymbol{S_{o/w} = \sigma_{wg} - \sigma_{ow} - \sigma_{og}} \qquad \textbf{(2.46)}$$

Si le coefficient $\boldsymbol{S_{o/w}}$ est négatif, l'étalement de l'huile sur la surface n'a pas lieu. Dans ce cas, les gouttes d'huile restent piégées entre les deux surfaces du film.

Les coefficients $\boldsymbol{E_{o/w}}$ et $\boldsymbol{S_{o/w}}$ sont deux paramètres qui nous permettent de prédire l'action déstabilisante de l'huile pour les lamelles de mousse. Néanmoins, leur application est limitée parce que ces coefficients ne prennent pas en compte la morphologie du milieu poreux ni l'influence des interactions entre les surfaces des films. Ainsi, quand on applique ces critères, on peut obtenir des résultats contradictoires. Pour tenir compte de l'effet du milieu poreux, un coefficient d'entrée généralisé a été défini (voir Bergeron *et al*., 1993).

c. *Pontage (« Bridging »)*

Ce mécanisme fut proposé d'abord pour les particules hydrophobes et puis adapté pour les gouttes d'huile. Quand une goutte d'huile reste sur la surface de la lamelle sous forme de lentille, au fur et à mesure que le film diminue son épaisseur, l'huile pénètre la lamelle et forme un pont entre les deux surfaces du film. Le *coefficient de pontage* $\boldsymbol{B}$ (« *bridging coefficient* ») est un critère pour exprimer la stabilité des films en présence de ce phénomène et on le définit de la façon suivante (2.47) :

$$\boldsymbol{B = \sigma_{wg}^2 + \sigma_{ow}^2 - \sigma_{og}^2} \qquad \textbf{(2.47)}$$

Quand $\boldsymbol{B \geq 0}$ le film est instable. Pour des valeurs négatives de $\boldsymbol{B}$, les lamelles sont stables. Le Tableau 2.2 présente un résumé de la stabilité des lamelles en présence d'huile en fonction du coefficient d'entrée $\boldsymbol{E}$, du coefficient d'étalement $\boldsymbol{S}$ et du coefficient de pontage $\boldsymbol{B}$.

Tableau 2.2. Prédiction de la stabilité des films de mousse en présence d'huile en fonction des coefficients *E*, *S* et *B*.

<table>
<tr><td>S \ E</td><td>−</td><td colspan="2">+</td></tr>
<tr><td rowspan="3">−</td><td rowspan="3">Films stables</td><td colspan="2">B</td></tr>
<tr><td>−</td><td>+</td></tr>
<tr><td>Films stables</td><td>Films instables</td></tr>
<tr><td>+</td><td>Films stables</td><td colspan="2">Films instables</td></tr>
</table>

d. *Lamella Number* N_L

Un autre mécanisme de stabilité des lamelles a été proposé par Schramm et Novosad (1990, 1992). Ce modèle prend en compte les petites gouttes d'huile qui se forment et se déplacent à travers la structure de la mousse. Le nombre adimensionnel « *Lamella Number* $\boldsymbol{N_L}$ » (2.50) prédit la stabilité de la mousse et est exprimé comme le rapport entre la pression capillaire dans les bords de Plateau $\boldsymbol{\Delta P_c}$ (2.48) et la différence de pression à travers la surface huile/eau $\boldsymbol{\Delta P_R}$ (2.49).

$$\boldsymbol{\Delta P_c = \frac{2\sigma_{wg}}{r_{Plateau}}} \qquad \textbf{(2.48)}$$

$$\boldsymbol{\Delta P_R = \frac{2\sigma_{ow}}{r_{goutte}}} \qquad \textbf{(2.49)}$$

$$\boldsymbol{N_L = \frac{\Delta P_c}{\Delta P_R} = \frac{r_{goutte}}{r_{Plateau}} \frac{\sigma_{wg}}{\sigma_{ow}}} \qquad \textbf{(2.50)}$$

où $r_{Plateau}$ est le rayon du bord de Plateau et r_{goutte} est le rayon de la goutte d'huile. Les auteurs ont trouvé que le rapport de rayons est constant pour toutes les mousses étudiées ($r_{goutte}/r_{Plateau} = 0,15 \pm 0,01$). Ils ont défini un nouveau classement de mousse en fonction du « *Lamella Number* N_L » (Tableau 2.3) :

Tableau 2.3. Stabilité de la mousse en fonction du « *Lamella Number* N_L ».

Lamella number N_L	Stabilité de la mousse
$N_L < 1$	*Très stable*
$1 < N_L < 7$	*Moyennement stable*
$N_L > 7$	*Instable*

2.2. Mousse en milieu poreux

La mousse en milieu poreux est une dispersion de gaz dans une phase liquide telle que la phase liquide, contenant du tensioactif, est continue et au moins une partie de la phase gaz est discontinue, séparée par des films minces de liquide, appelés lamelles (Hirasaki, 1989). La phase solide du milieu poreux est recouverte par la phase liquide.

2.2.1. Adsorption de tensioactif

La compréhension et la maîtrise du phénomène d'adsorption sur la matrice solide affecte directement la viabilité économique de tout processus impliquant l'utilisation de tensioactifs. Pour quantifier le coût global du tensioactif, il faut tenir compte de l'investissement initial mais aussi du coût du remplacement du tensioactif qui a été adsorbé. Dans le domaine pétrolier, par exemple, c'est cette deuxième composante qui compte le plus et qui détermine si le processus de Récupération Améliorée du Pétrole (RAP) est viable du point de vue économique.

En plus de la perte d'une quantité non négligeable de molécules, l'adsorption de tensioactif peut changer la mouillabilité des surfaces. Cela peut être un avantage dans des réservoirs pétroliers dont la mouillabilité est mixte, car l'adsorption de tensioactifs dans des surfaces mouillables à l'huile les rend mouillables à l'eau, ce qui favorise la récupération de l'huile. Mais dans les aquifères, les surfaces sont en général mouillables à l'eau, et l'adsorption de tensioactifs les rend plus hydrophobes, ce qui favorise le piégeage des polluants et gêne le processus de remédiation.

Parmi les mécanismes d'adsorption des molécules tensioactives sur des surfaces solides, on compte :

- Les **liaisons hydrophobes**, qui peuvent se créer entre la queue hydrophobe du tensioactif et une surface hydrophobe ou entre les queues hydrophobes de deux tensioactifs dont l'un est adsorbé par la tête sur une surface hydrophile.

- Les **interactions électrostatiques**, qui se font entre les groupes ioniques des tensioactifs et les surfaces solides de charges opposées. Les solides montrent une capacité à avoir une charge électrique de surface, résultante des déséquilibres de charge en raison des imperfections dans la structure du cristal (remplacement isomorphe des ions au sein du réseau de cristal, liens rompus, dislocations, défauts de réseau cristallin, etc.). Ces imperfections laissent des ions avec des conditions de valence insatisfaites. La dissolution partielle de la surface solide par de l'eau laisse également des surfaces chargées. Pour de faibles concentrations de tensioactif, la charge de surface détermine principalement l'adsorption des molécules, mais quand la concentration augmente, d'autres facteurs, tels que la tendance du tensioactif à former des agrégats, deviennent cruciales.

- Les **interactions acido-basiques**, qui interviennent via les liaisons hydrogènes ou des réactions acides et basiques de Lewis entre les molécules de tensioactifs et la surface solide.

- La **polarisation des électrons π**, qui existe lorsque les molécules de tensioactif possédant un noyau aromatique riche en électrons sont à proximité d'une surface chargée positivement.

- Les **forces de dispersion chimique**, qui proviennent des forces de London-Van der Waals existantes entre les molécules du tensioactif et la surface solide (les queues hydrophobes s'alignent sur les surfaces hydrophiles tandis que les groupes hydrophiles s'orientent vers le liquide polaire).

a. Isothermes d'adsorption (Schramm, 2000)

La plupart des études d'adsorption utilise la méthode de déplétion du tensioactif, et présente les résultats sous forme de courbes isothermes qui expriment la quantité de tensioactif adsorbée par gramme de solide ou par aire de surface en fonction de la concentration de tensioactif en solution (à l'équilibre et à une température constante). Les courbes se construisent en échelle log-log car on observe des changements de pente abrupts. La Figure 2.26 montre une courbe typique d'adsorption où on observe quatre régions pour un tensioactif monomérique. Toutes les courbes d'adsorption ne présentent pas quatre régions bien distinctes, la forme exacte dépend du type de tensioactif, de la charge de la surface solide et de la présence d'autres composés, tels que des électrolytes, des alcools, etc.

Les phénomènes gouvernant chaque région de la courbe présentée dans la Figure 2.26 sont décrits ci-dessous.

Région I

Cette partie de la courbe peut être décrite en utilisant le modèle de la double couche. Les monomères sont adsorbés comme des ions individuels et il n'y a pas d'interactions entre les molécules adsorbées. Si le tensioactif est non ionique, l'adsorption est due aux liaisons hydrogènes. Si le tensioactif est ionique, il y a des interactions électrostatiques entre les têtes et les sites chargés des surfaces solides.

Région II

Le mécanisme d'adsorption qui gouverne cette région a été décrit par Gaudin et Fuerstenau en 1955. Les queues hydrophobes des tensioactifs s'associent et forment des agrégats, à travers des liaisons hydrophobes. La discontinuité entre la région I et la région II correspond à la Concentration d'Admicelles Critique CAC (aussi appelées hemimicelles).

Région III

La pente de la courbe d'adsorption diminue par rapport à la région II. Il y a plusieurs théories qui expliquent ce phénomène. Somasundaran, *et al*. (1964) défendent que ce changement est dû au remplissage de toute la surface disponible à la fin de la région II, et dans la région III ce sont les chaines hydrocarbonées qui s'associent en formant une double couche. Scamehorn *et al*. (1982) proposent que la formation de cette double couche commence dans la région II et continue dans la région III mais à un plus faible taux.

Région IV

Il s'agit d'un plateau d'adsorption, caractérisé par une très faible, ou nulle, augmentation de l'adsorption. Cette région commence à une concentration de tensioactif égale à la Concentration Micellaire Critique (CMC). Les micelles présentes en solution agissent comme un « puits » pour les molécules additionnelles.

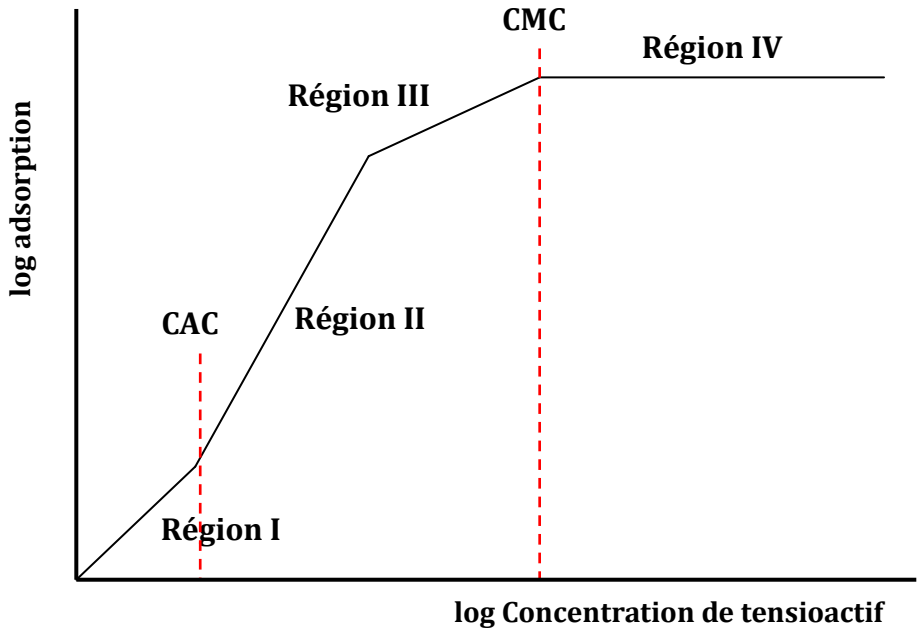


Figure 2.26. Isotherme d'adsorption typique de quatre régions pour un tensioactif (adapté de Schramm, 2000).

2.2.2. *Mécanismes de formation des lamelles*

a. *« Snap-off »*

Ce mécanisme de formation de lamelles a été étudié en 1970 par Roof, qui a observé le piégeage de gouttes d'huile dans des pores mouillables à l'eau. Nous nous intéressons ici au déplacement d'eau (phase mouillante) par du gaz (phase non mouillante). La Figure 2.27 montre les différentes étapes de ce phénomène. Quand le gaz traverse le seuil du pore (1), la courbure de l'interface augmente, et selon la loi de Laplace (2.18) la pression capillaire augmente jusqu'à la valeur P_{c1}. Dans la partie correspondante au corps du pore (2), la courbure diminue et la pression capillaire P_{c2} aussi. Comme la pression du gaz P_g est constante, si on applique l'équation (2.17) on trouve que la pression dans le liquide est plus forte dans la région du corps du pore (P_{w2}) que dans le seuil (P_{w1}) :

$$P_{c2} < P_{c1} \Longrightarrow P_g - P_{w2} < P_g - P_{w1} \Longrightarrow P_{w2} > P_{w1}$$

Cette différence de pression provoque un gradient qui fait que le liquide se déplace vers l'étranglement et quand le gradient est suffisant, une lamelle se forme.

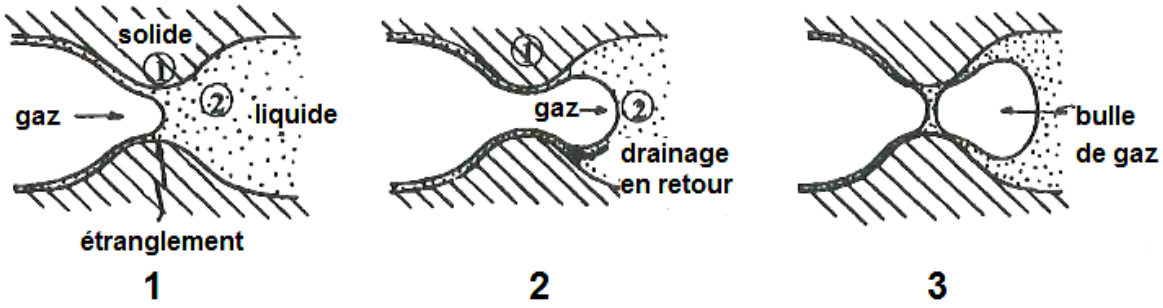


Figure 2.27. Étapes du mécanisme « *snap-off* » (Ransohoff et Radke, 1988).

b. *« Leave behind »*

Ce mécanisme a lieu pendant l'étape de drainage, quand le gaz se déplace avec la solution de tensioactif. La Figure 2.28 représente la configuration nécessaire pour que ce phénomène ait lieu. Pendant le déplacement, les deux ménisques se rencontrent et forment une lamelle en direction parallèle au sens de l'écoulement.

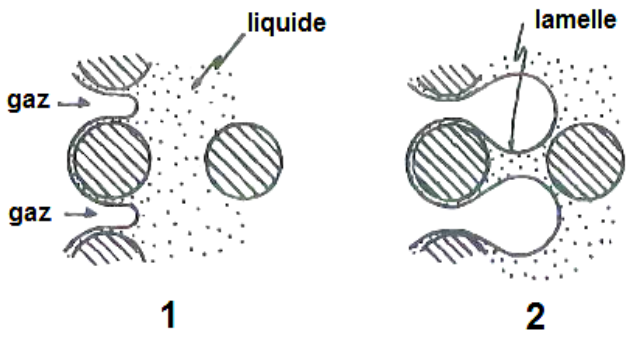


Figure 2.28. Étapes du mécanisme « *leave behind* » (Ransohoff et Radke, 1988).

c. « Lamella division »

Il s'agit d'un mécanisme lié au « *snap-off* », qui a lieu quand une bulle de gaz arrive à un embranchement. La lamelle se divise en deux et la mousse s'affine. La Figure 2.29 montre un schéma de ce mécanisme :

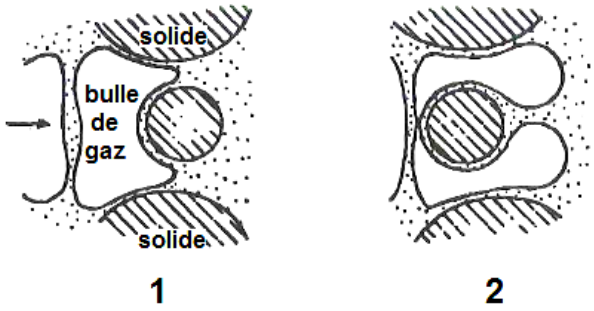


Figure 2.29. Étapes du mécanisme « *lamella division* » (Ransohoff et Radke, 1988).

d. « Bubble evolution »

Ce mécanisme de formation de bulles a lieu quand le gaz dissout dans le liquide est libéré, c'est-à-dire, quand la pression diminue ou la température augmente.

2.2.3. Stabilité de la mousse en milieu poreux

Au sein d'un milieu poreux, la taille des bulles est plus grande que la longueur caractéristique du système, c'est-à-dire, une bulle peut occuper plus d'un espace de pore. Les bords de Plateau relient les lamelles aux films minces qui mouillent la surface des grains. Ainsi, la phase liquide est continue dans tout le milieu poreux. La mousse est un système thermodynamiquement métastable. Elle évolue avec le temps parce que la surface des lamelles diminue afin de minimiser l'énergie libre du système. La longévité de la mousse en milieu poreux est déterminée par la stabilité des films, qui dépend de plusieurs paramètres tels que la concentration de tensioactif, de la concentration de sel, de la diffusion de gaz à travers les films, des forces de surface, de la pression capillaire, du drainage, et aussi des **propriétés pétrophysiques du milieu**. Dans ces systèmes il y a deux types de films : les lamelles qui séparent les bulles de gaz et celles qui se forment quand une bulle de gaz est en contact avec une paroi du pore. Ces dernières ne sont stables que si la surface est mouillable à l'eau ou si le tensioactif peut altérer la mouillabilité d'une surface lipophile en la rendant hydrophile.

Quand les bulles de gaz s'écoulent à travers le milieu poreux, les lamelles associées se déplacent des seuils du pore (dimension $\boldsymbol{R_t}$) aux corps du pore (dimension $\boldsymbol{R_b}$), comme le montre la Figure 2.30. Pendant ce processus l'épaisseur des lamelles varie pour s'adapter à la géométrie des pores. Le milieu poreux impose une pression capillaire $\boldsymbol{P_c}$ dans chaque bord de Plateau, qui doit être équilibrée par la pression de disjonction (qui est une fonction de l'épaisseur $\boldsymbol{h}$ des films, Figure 2.22). Ainsi, le liquide vide ou remplit les lamelles pour modifier leur épaisseur et arriver à un nouvel état d'équilibre. Mais ce processus n'est pas instantané, le taux de remplissage/vidange de liquide étant

proportionnel à h^3, à la résultante P_c - Π et inversement proportionnel à la viscosité du fluide μ (Reynolds, 1886). De cette façon l'épaisseur de la lamelle oscille autour de la valeur d'équilibre où P_c = Π, pouvant correspondre instantanément à une valeur au-dessous de h^*, où la lamelle collapse.

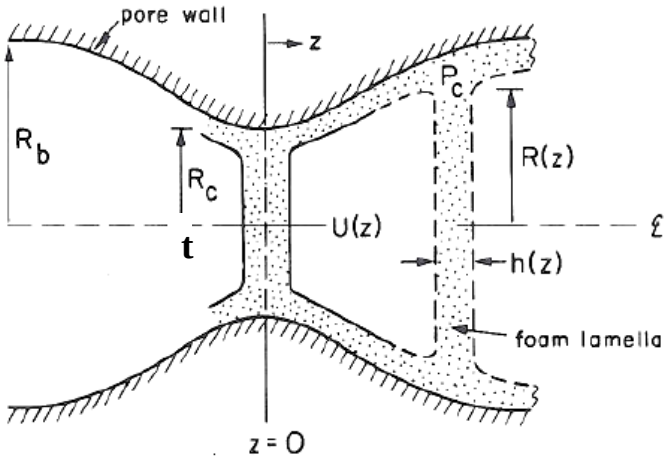


Figure 2.30. Schéma du déplacement d'une lamelle au sein d'un pore. Le milieu poreux impose une pression capillaire P_c dans chaque bord de Plateau (Chambers et Radke, 1991).

Des plus fortes variations d'épaisseur ont lieu quand la vitesse d'écoulement augmente et pour des plus fortes valeurs du rapport R_b/R_t. Ainsi, pour une vitesse du gaz et une géométrie données il y a une valeur de pression capillaire limite P_c^* inférieure à la valeur statique Π_{max} où les lamelles collapsent. Khatib *et al*. (1988) ont été les premiers à vérifier expérimentalement l'influence de ces paramètres dans la coalescence des lamelles en milieu poreux. Leurs expériences avec des colonnes de sable on montré que la valeur de la pression capillaire limite P_c^* dépend du type de tensioactif et diminue quand la vitesse d'écoulement du gaz augmente, comme le montre la Figure 2.31.

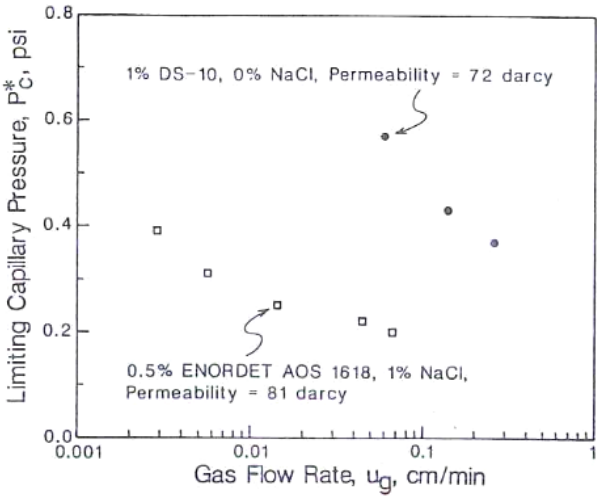


Figure 2.31. Effet du type de tensioactif et de la vitesse d'écoulement du gaz u_g dans la pression capillaire limite P_c^* (Khatib *et al.*, 1988).

En milieu poreux, la pression capillaire P_c est une fonction monotone de la saturation de liquide S_w. Durant un écoulement de mousse la pression capillaire ne peux pas dépasser la valeur maximale P_c^*, ce qui veut dire que la saturation du liquide doit être toujours supérieure ou égale à la valeur S_w^*, valeur qui dépend aussi de la perméabilité du milieu, comme le montre la Figure 2.32 (à gauche). Ainsi, si pendant un écoulement de mousse (en supposant que les bulles de gaz ont une taille constante) on augmente la proportion du gaz s'écoulant f_g, la valeur de la saturation de liquide diminue jusqu'à atteindre la valeur limite S_w^* (à P_c^*) (Figure 2.32, à droite). Si on continue à augmenter la proportion du gaz f_g, le taux de coalescence de lamelles augmente et les bulles grossissent, la texture de la mousse devenant plus grossière pour maintenir la valeur de pression capillaire égale à P_c^* (Khatib *et al.*, 1988).

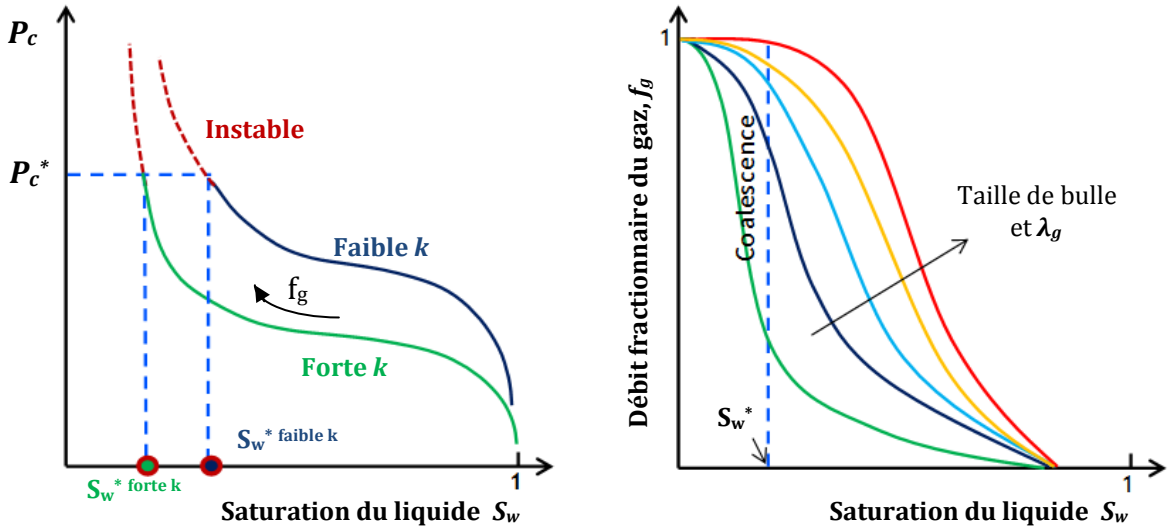


Figure 2.32. Courbe de pression capillaire P_c en fonction de la saturation de la phase mouillante S_w (à gauche) et courbes de débit fractionnaire pour des écoulements de mousse (à droite) (adapté de Khatib *et al.*, 1988).

Khatib *et al.* (1988) ont réalisé des expériences pour vérifier l'influence de la perméabilité sur la valeur de la pression capillaire limite P_c^*. Ils ont trouvé une dépendance logarithmique avec la perméabilité du milieu. La Figure 2.33 montre cette variation de la pression capillaire limite en fonction de la perméabilité. Dans la même figure les auteurs ont représenté la pression capillaire d'entrée (pression d'injection minimale qui doit être appliquée pour surmonter les forces capillaires et permettre ainsi l'entrée de la phase non mouillante dans le milieu poreux) en fonction de la perméabilité. Pour le système considéré, la valeur de la pression capillaire d'entrée est plus forte que la pression capillaire limite P_c^* pour les milieux de faible perméabilité où $k < 800\ mD$. Dans cette situation, les lamelles de liquide autour des bulles de gaz sont instables et la mousse collapse. On observe alors des écoulements de liquide et de gaz.

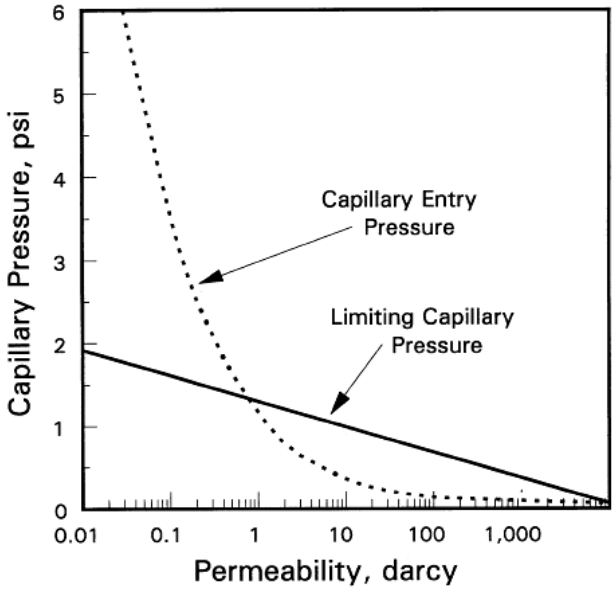


Figure 2.33. Variation de la pression capillaire d'entrée et la pression capillaire limite P_c^* en fonction de la perméabilité *k* du milieu (Khatib *et al.*, 1988).

Khatib explique que la mobilité du gaz dans des milieux de faible perméabilité en présence de tensioactif est plus faible qu'en l'absence de tensioactif, du fait que les solutions de tensioactif favorisent la présence d'une fraction de gaz piégé par des lamelles stationnaires. Ainsi, il prédit que la mobilité du gaz augmente linéairement avec la perméabilité jusqu'à ce que la valeur de la pression capillaire limite soit plus grande que la pression capillaire d'entrée. Ce phénomène peut être observé dans la première partie linéaire de la courbe (trait continu de la Figure 2.34).

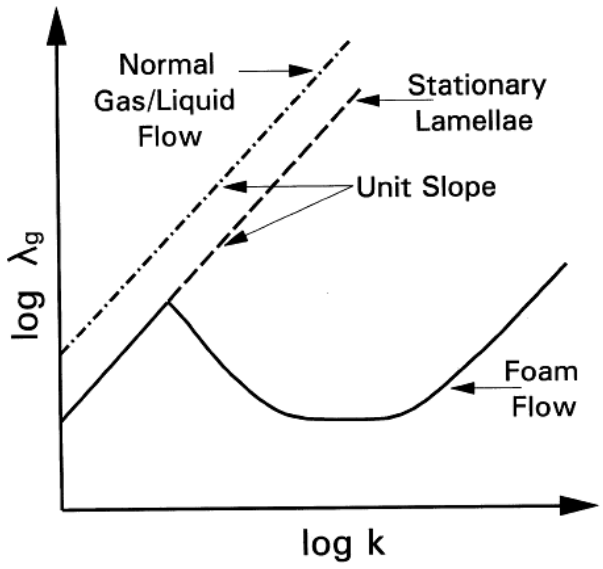


Figure 2.34. Variation de la mobilité du gaz λ_g en fonction de la perméabilité *k* du milieu poreux (Khatib *et al.*, 1988).

2.2.4. Régimes de mousse en milieu poreux à l'état stationnaire (Sheng, 2013)

La Figure 2.35 présente les trois situations possibles. La première situation (Figure 2.35.a) représente le cas où la mousse ne se forme pas. On a un écoulement séparé de liquide et de gaz. La non formation de lamelles peut être due à l'absence de tensioactif, à la présence d'un milieu fortement mouillable à l'huile, à une pression capillaire très forte ou à la déstabilisation des lamelles par la présence d'huile.

La deuxième situation (Figure 2.35.b) représente une mousse « faible » ou « *weak foam* ». Ce type de mousse, caractérisé par une texture très grossière, cause une augmentation de la viscosité de la mousse (ou de façon équivalente, une réduction de la mobilité du gaz) seulement de quelques ordres de grandeur.

La troisième situation (Figure 2.35.c) correspond à une mousse « forte » ou « *strong foam* », caractérisée par une texture très fine. Dans ce cas la réduction de la mobilité du gaz est de plusieurs ordres de grandeur, ce qui se traduit par une augmentation abrupte du gradient de pression.

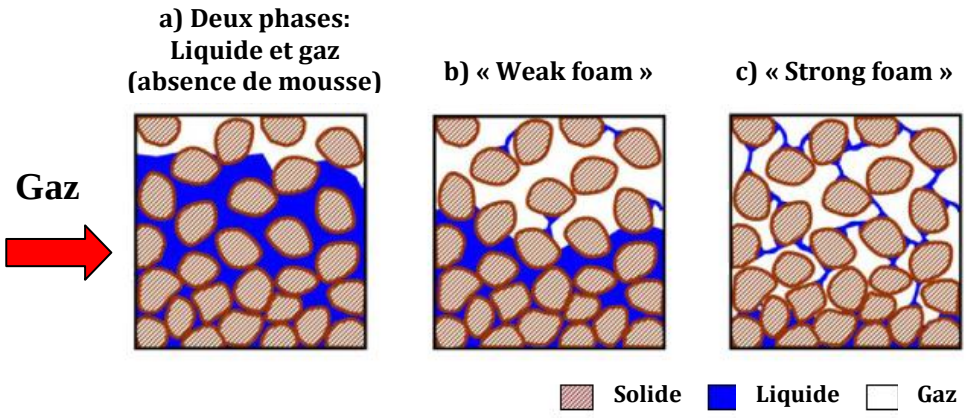


Figure 2.35. Schéma comparatif comparant l'écoulement gaz-liquide (en absence de mousse), « *weak foam* » et « *strong foam* » (adapté de Sheng, 2013).

La transition entre « *weak foam* » et « *strong foam* » (appelée couramment génération de mousse) se produit de façon abrupte dans des expériences sur colonne, accompagnée d'une forte augmentation du gradient de pression. La Figure 2.36.a présente des résultats en termes de pression obtenus pour des tests sur colonne (grès de Berea) en fonction du temps. La qualité de mousse imposée est constante et égale à *0,8*, et le débit total varie. On constate que la génération de « *strong foam* » a lieu pour des débits supérieurs à *1,30 cm³/min*, comme révélé par la brusque augmentation du gradient de pression. Sur la figure de droite sont présentés les résultats en termes de pression en fonction du débit imposé dans la colonne.

Plusieurs études (Gauglitz *et al.*, 2002 ; Kam et Rossen, 2003) montrent que cette discontinuité en terme de pression n'a lieu que quand le débit total est fixé. Quand on impose le gradient de pression, toute la courbe en forme de "S" (Figure 2.36.b) peut être obtenue, incluant l'état intermédiaire (partie marquée par un trait discontinu). Cette courbe, typique de la théorie de la catastrophe, montre la présence de solutions

multiples. Un tel comportement de la mousse, caractérisé par un changement soudain et imprévisible souvent associé à une singularité mathématique, est appelé « théorie catastrophique de la mousse » (Afsharpoor *et al*., 2010).

Une fois la « *strong foam* » formée, on distingue deux nouveaux régimes d'écoulement en fonction du comportement rhéologique de la mousse : le régime « *high quality* », caractérisé par un comportement quasi Newtonien ou légèrement « *shear-thickening* » et le régime « *low quality* », où le comportement est du type « *shear-thinning* ». Cela a d'abord été mis en évidence par Osterloh et Jante en 1992 (qui ont réalisé des tests sur colonnes de sable de perméabilité $\boldsymbol{k}$ = *6,2 Darcy* pour différents débits et proportions gaz/liquide) et plus tard confirmé par Álvarez *et al*. en 2001. Les résultats de ces expériences sont présentés sous forme de contours de pression en fonction de la vitesse du gaz dans l'axe vertical et la vitesse du liquide dans l'axe horizontal, comme le montre la Figure 2.37.

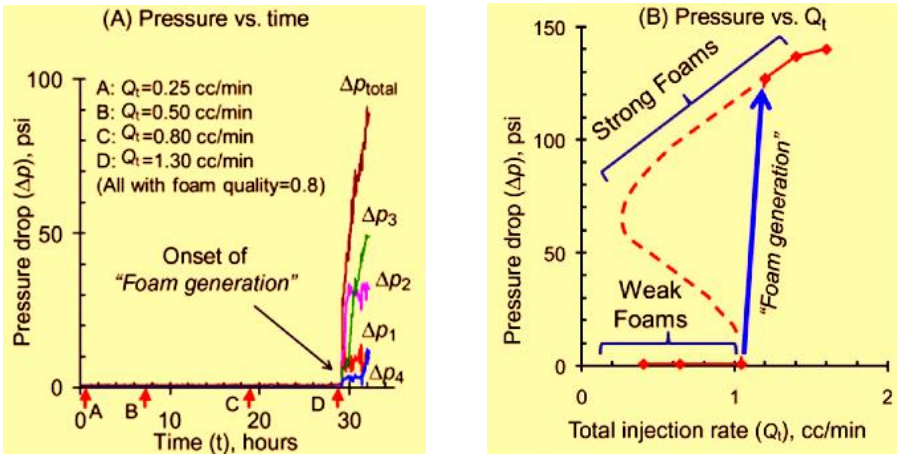


Figure 2.36. Réponse des expériences en laboratoire montrant la transition entre « *weak foam* » et « *strong foam* » (Sheng, 2013).

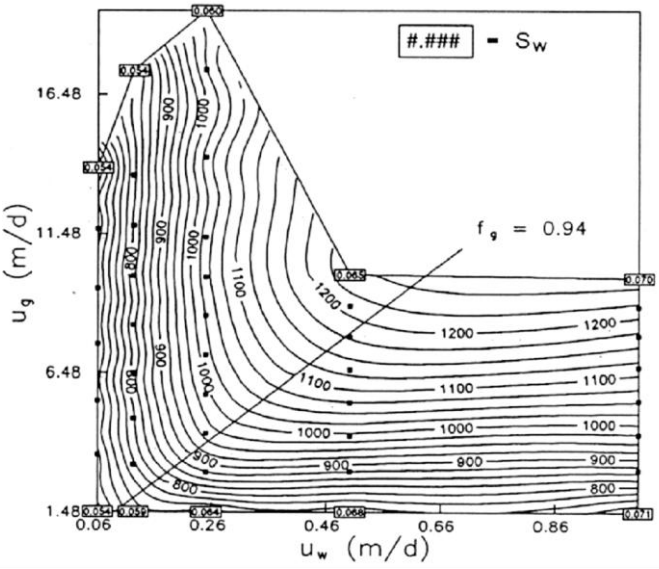


Figure 2.37. Résultats des expériences présentant les deux régimes d'écoulement, « *high quality* » et « *low quality* ». Les pressions sont exprimées en psi. (Osterloh et Jante, 1992).

Dans le régime « *high quality* », le débit fractionnaire de gaz (« *fractionnal flow ») f_g est supérieur à une certaine valeur f_g^*, (appelé « *limiting fractionnal flow »* et qui correspond au point où la pression capillaire limite P_c^* est atteinte) et la perte de charge est presque indépendante de la vitesse du gaz mais varie avec la vitesse du liquide à la puissance *1/3*. Le flux dans ce régime est gouverné par la pression capillaire limite P_c^*. La saturation du liquide est généralement constante et égale à S_w^*, ce qui reflète une pression capillaire constante et égale à P_c^*. La coalescence des lamelles due à la succion capillaire détermine le comportement de l'écoulement de mousse dans ce régime.

Dans le régime « *low quality* », le « *fractionnal flow »* f_g est plus faible que f_g^*. Le gradient de pression est indépendant de la vitesse du liquide et proportionnel à la vitesse du gaz à la puissance *0,31*. Il y a plusieurs théories pour expliquer ce comportement. Rossen et Wang (1999) ont appelé ce régime « *fixed bubble size regime* » (taille de bulle fixe) en contraste avec le « *high quality regime* », où la taille de bulles augmente pour des qualités de mousse croissantes à cause du collapse des lamelles à la pression capillaire limite. Dans le « *low quality regime* », la taille des bulles est estimée égale à la taille de pore, ce qui a été confirmé par Álvarez en 1998.

2.2.5. Modélisation des écoulements de mousse en milieu poreux (Zhang et al., 2009)

La mousse a de nombreuses applications dans le domaine de la récupération assistée du pétrole et de la remédiation de sols polluées. Ainsi, la simulation devient un outil très utile qui permet de prédire le comportement des écoulements de mousse sur le terrain et la mise au point de la stratégie d'injection à suivre.

Il y a trois approches principales pour modéliser les écoulements de mousse en milieu poreux, l'empirique, la semi-empirique et la mécanistique. Chaque approche présente des avantages et des inconvénients. Dans le cas de l'approche mécanistique, qui devrait être la plus complète en principe, l'obtention de paramètres fiables est une tâche difficile, alors que les modèles empiriques et semi-empiriques ont des limitations pour décrire la rhéologie et la mobilité des mousses. Il y a pourtant une discussion portant sur la meilleure façon de modéliser les écoulements de mousse en milieu poreux. Kovscek (1998) suggère qu'un bon modèle pour simuler à l'échelle du terrain doit avoir les caractéristiques suivantes :

- Réduction de la mobilité du gaz en présence de mousse ;
- Comportement non-Newtonien de la mousse ;
- Propriétés de la mousse dépendantes de la concentration de tensioactif ;
- Représentation précise du transport du tensioactif et des phénomènes d'adsorption.

a. Méthodes empiriques

Dans les méthodes empiriques la mobilité du gaz ou bien la viscosité est modifiée en présence de mousse. La mobilité du gaz $\boldsymbol{\lambda_f}$ est définie comme suit (2.51) :

$$\boldsymbol{\lambda_f = \frac{k\, k_{rf}}{\mu_f}} \qquad \textbf{(2.51)}$$

où $\boldsymbol{k}$ est la perméabilité intrinsèque du milieu, $\boldsymbol{k_{rf}}$ est la perméabilité relative de la mousse et $\boldsymbol{\mu_f}$ est sa viscosité effective.

Les expressions empiriques utilisées pour prédire la mobilité du gaz sont fonction de la concentration de tensioactif ou des débits des fluides, mais ne font pas référence à la texture de la mousse. Il y a deux approches, celle qui utilise le facteur de réduction de mobilité (« *Mobility Reduction Factor,* ***MRF*** ») et celle qui emploie le concept de viscosité effective.

Mobility Reduction Factor

Le Facteur de Réduction de la Mobilité (***MRF***) est défini, pour une même valeur de la saturation en eau (2.52, 2.53) :

$$\boldsymbol{MRF = \frac{\Delta P_{avec\ mousse}}{\Delta P_{sans\ mousse}}} \qquad \textbf{(2.52)}$$

$$\boldsymbol{MRF = \frac{\Delta P_{avec\ mousse} - \Delta P_{sans\ mousse}}{\Delta P_{sans\ mousse}}} \qquad \textbf{(2.53)}$$

où $\boldsymbol{\Delta P}$ est la perte de charge à travers le milieu poreux. Si le ***MRF*** vaut 1 (ou 0, selon la définition) la mousse est déstabilisée et on a un écoulement diphasique de gaz et liquide. Au contraire, des fortes valeurs de ***MRF*** indiquent la présence de « *strong foam* », avec une texture très fine.

Selon Kovscek (1998), ce paramètre est utilisé par UTCHEM, logiciel développé par l'Université du Texas à Austin (dont on en parlera plus en détails dans le Chapitre 5), où le ***MRF*** modifie la perméabilité relative du gaz comme suit (2.54) :

$$\boldsymbol{k_{rf}(S_g) = \frac{k_{rg}(S_g)}{1 + MRF}} \qquad \textbf{(2.54)}$$

où $\boldsymbol{k_{rg}}$ est la perméabilité relative du gaz et $\boldsymbol{S_g}$ la saturation du gaz.

Les simulateurs STARS (Kular *et al*., 1989), ECLIPSE 200 (Geoquest) UTCOMP (Rossen *et al*., 1994 ; Shi et Rossen, 1996) utilisent également le ***MRF***.

Viscosité effective

Avec cette approche, on modifie la viscosité effective du gaz pour réduire sa mobilité quand la mousse est présente. Par exemple, Marfoe *et al*. (1987) ont utilisé l'expression (2.55), où la viscosité de la phase gaz dépend de la concentration de tensioactif C_{ta}, la saturation de la phase aqueuse S_w (S_{wi} est la saturation résiduelle) et la vitesse de la phase gaz v_g :

$$\mu_f = \mu_g[1 + 0,01\, C_{ta}\, (S_w - S_{wi}) f(v_g)] \qquad (2.55)$$

Les constantes et paramètres sont déterminés avec des mesures expérimentales et des méthodes de calage de données (« *history matching »)*.

b. Méthodes semi-empiriques. « Fractional Flow Theory »

La « *fractional flow theory* » décrit les déplacements de fluides miscibles et immiscibles en milieu poreux avec des équations différentielles partielles résolues avec une technique mathématique appelée « la méthode des caractéristiques ». La méthode des débits fractionnaires est considérée comme semi-empirique en raison des hypothèses retenues : déplacement unidimensionnel, viscosité newtonienne, absence de digitation visqueuse, absence de gradients de pression capillaire, phases incompressibles, état d'équilibre local atteint instantanément, absence de dispersion et d'effet de la pesanteur. Malgré ces simplifications, cette méthode peut décrire de façon assez satisfaisante des déplacements complexes.

Les « *fractional flow curves* » (qui présentent la saturation de la phase mouillante dans l'axe horizontal et le débit fractionnaire de liquide ou « *water fractional flow* » dans l'axe vertical) ont été d'abord présentées par Buckley et Leverett en 1942. L'application de cette méthode pour les écoulements de mousse a été développée par Rossen et Zhou en 1995.

c. Méthodes mécanistiques

Les méthodes mécanistiques ont pour but de calculer les changements de texture de la mousse, en fonction des mécanismes dynamiques de génération et destruction des lamelles et de quantifier leur influence sur la réduction de mobilité du gaz et du gradient de pression. Il y a trois approches mécanistiques : le modèle de bilan de population de bulles, la théorie de la catastrophe et la théorie de la percolation.

Modèle de Bilan de Population de Bulles (« Bubble Population Balance Model »)

Cette méthode a pour objectif de calculer les variations de texture de la mousse résultant de la densité de bulles. Des mécanismes à l'échelle du pore sont utilisés pour décrire les phénomènes de génération et destruction de lamelles dans le modèle. La difficulté de cette méthode réside sans l'expression des taux de génération et de destruction de lamelles. En plus des équations de conservation des différentes phases l'introduction d'une nouvelle variable (densité de lamelles) nécessite d'écrire une

équation de bilan de population qui peut être exprimée par l'expression (2.56) (Patzek, 1988 ; Falls *et al*., 1988 ; Kovscek et Radke, 1994) :

$$\frac{\partial[\phi(S_{fg}n_f + S_{tg}n_t)]}{\partial t} = -\frac{\partial(u_f n_f)}{\partial x} + \phi S_g(r_g - r_c) + Q_b \qquad \textbf{(2.56)}$$

Le terme de gauche correspond au terme d'accumulation, le terme de droite quand à lui correspond au transport convectif, à l'évolution de la population par différence entre génération et coalescence et à un terme source/puits Q_b. n représente une densité de lamelles par unité de volume de milieu poreux, les indices f et t correspondent aux lamelles mobiles (« *flowing* ») et piégées (« *trapped* »). La saturation en gaz, S_g, est la somme du gaz mobile (S_{fg}) et du gaz piégé (S_{tg}). u_f est la vitesse de la mousse et ϕ est la porosité. r_g et r_c sont respectivement les taux de génération et de coalescence de lamelles, qui peuvent être exprimés de différentes façons. Pour la coalescence de lamelles, tous les modèles assument que le taux diverge vers l'infini quand la saturation de la phase liquide S_w approche la valeur critique S_w^* (saturation correspondante à la pression capillaire critique P_c^*). Kam et Rossen (2003) ont proposé les expressions suivantes (2.57, 2.58) :

$$r_g = C_g(\nabla P)^m \qquad \textbf{(2.57)}$$

$$r_c = C_c n_f \left(\frac{1}{S_w - S_w^*}\right)^n \qquad \textbf{(2.58)}$$

C_g, C_c, m et n sont des paramètres du modèle, ∇P est la moyenne temporelle du gradient de pression et n_f est le nombre de lamelles par unité de volume.

Il existe d'autres expressions pour les taux de génération et de destruction de lamelles. Kovscek (1993) a montré que la génération de bulles par « *snap-off* » pouvait être exprimée comme étant directement proportionnelle à la vitesse du gaz et du liquide élevées à une puissance inférieure à l'unité. Ettinger et Radke (1992) ont proposé une expression similaire pour le taux de destruction de lamelles, proportionnelle aussi au flux.

Un concept important dans ce modèle est la fraction de mousse piégée (c'est-à-dire, le gaz stationnaire). Des expériences de traçage de gaz montrent que la proportion varie entre *85* et *99 %*. La fraction de mousse piégée est une fonction qui dépend du gradient de pression, de la pression capillaire et de la géométrie des pores. Les limitations de cette méthode sont dues à la difficulté d'obtenir des paramètres fiables vue la complexité des phénomènes qui ont lieu à l'échelle du pore.

Les modèles d'équilibre local (« *Local Equilibrium* », LE) sont des simplifications du modèle de bilan de population de bulles. Ils considèrent que, à l'état stationnaire, la génération et la coalescence de lamelles sont égales, ce qui simplifie l'équation de bilan de population.

Théorie de la catastrophe

Cette théorie postule que des petits changements dans certains paramètres d'un système non linéaire peuvent provoquer la disparition ou l'apparition d'états d'équilibre, conduisant à des changements importants et brusques du comportement du système. Cette idée peut être appliquée au comportement de la mousse, car dans le régime « *high quality* » la valeur de la saturation de la phase liquide S_w est très proche de la valeur critique S_w^*. Kam (2008) présente la façon de créer un simulateur de mousse avec la théorie de la catastrophe et deux régimes de « *strong foam* ».

Théorie de la percolation

Dans cette théorie, le milieu poreux est représenté par un réseau de pores (« *sites* ») connectés par des tubes capillaires (« *bonds* ») qui représentent les gorges des pores. La topologie du système est définie par le nombre de connexions qu'un site a avec les sites voisins. Le modèle de percolation appliqué à la mousse développé par Rossen et Gauglitz (1990) est l'un des plus célèbres. Dans ce modèle, les nœuds manquants (« *missing nodes* ») représentent des pores occupés par de l'eau, et les liens manquants (« *missing bonds* ») les gorges des pores bloquées par les lamelles créées par « *snap-off* ». Ainsi, la mobilisation de lamelles peut raffiner la texture de la mousse.

Cette méthode, permettant de décrire des mécanismes de formation de lamelles à l'échelle du pore, nécessite de très longs temps de calcul pour obtenir des résultats très limités dans l'espace. C'est pour cela qu'elle n'est pas adaptée pour des applications à l'échelle du terrain et même pas à l'échelle du laboratoire. Elle est par contre utile pour des études de formation de mousse à l'échelle du pore.

3. Mousse et remédiation de sols pollués

3.1. Comportement de la mousse dans des milieux hétérogènes (Seright, 1995)

3.1.1. Blocage ou contrôle de mobilité

Les mousses peuvent être utilisés de deux façons différentes : comme agents de contrôle de mobilité ou comme agents bloquants. L'utilisation de mousses comme agents de contrôle de mobilité a été largement étudiée jusqu'à présent. En effet, l'efficacité du balayage des milieux hétérogènes est améliorée en maximisant la pénétration de la mousse dans les strates les moins perméables. Par contre il y a peu de travaux réalisés portant sur l'utilisation des mousses comme agents de blocage. Cette propriété peut être expliquée avec le concept de pression capillaire limite, qui peut nous aider à prédire le comportement de la mousse en milieux poreux.

La différence entre les deux stratégies est illustrée ci-dessous :

Un **agent de contrôle de mobilité** doit pénétrer le plus possible dans les zones les moins perméables, afin de balayer ces régions dont l'accès des fluides est difficile (Figure 2.38).

Figure 2.38. Comportement d'un agent de contrôle de mobilité dans un milieu hétérogène.

Un **agent de blocage** doit pénétrer le moins possible dans les régions à faible perméabilité. Autrement, l'agent bloquant présent dans les zones à faible perméabilité gêne l'entrée des fluides dans ces régions et le balayage des hydrocarbures (Figure 2.39).

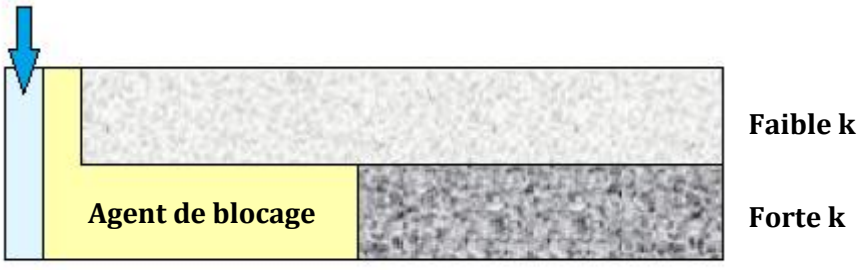


Figure 2.39. Comportement d'un agent de blocage dans un milieu hétérogène.

L'utilisation de mousses comme agents de blocage peut être expliquée du point de vue du concept de pression capillaire limite P_c^*. La mousse est un bon candidat pour cette application si la pression capillaire d'entrée (pression d'injection minimale qui doit être appliquée pour surmonter les forces capillaires et permettre ainsi l'entrée de la phase non mouillante dans le milieu poreux) est inférieure à la pression capillaire limite dans les zones à forte perméabilité mais elle doit être supérieure à la pression capillaire limite dans les zones les moins perméables. Dans ce cas, une mousse à faible mobilité est générée dans les zones très perméables, mais pas dans les zones peu perméables, où on ne génère pas de mousse. Ainsi, les fluides injectés à posteriori peuvent pénétrer et déplacer l'huile ou les polluants piégés dans ces zones peu perméables. En revanche, dans la mesure où la mousse persiste dans les zones à forte perméabilité, l'entrée de fluide sera restreinte. La persistance de la mousse peut être compromise si des liquides ou du gaz sont ensuite injectés : la mousse peut collapser. Pour éviter ce phénomène, Radke (Seright, 1995) propose de continuer l'injection de solution de tensioactif (avec ou sans gaz) afin de maintenir une concentration de tensioactif suffisante dans la mousse qui garantisse la stabilité des films liquides.

3.1.2. Effet de communication entre les couches

De nombreuses études ont été consacrées à la mobilité de la mousse en milieux homogènes et unidimensionnels. Néanmoins la réalité est bien différente : les réservoirs pétroliers et les aquifères sont le plus souvent hétérogènes et multidimensionnels. Certains auteurs (Casteel et Djabbarah, 1988) ont étudié le comportement de la mousse dans des systèmes stratifiés, mais une des premières études où l'influence de la communication entre les couches fut mise en évidence a été menée par Bertin *et al*. en 1999.

Les expériences ont été réalisées dans une colonne hétérogène (Figure 2.40) formée par un cœur de grès de Fontainebleau ($\boldsymbol{k} \simeq$ *0,1 Darcy*) et une couche extérieure de sable Ottawa ($\boldsymbol{k} \simeq$ *6,7 Darcy*). L'injection de gaz (N_2) se fait une fois la colonne saturée en solution de tensioactif (Alpha Olefin Sulfonate, concentration *0,1 %* en masse).

Quand la communication entre les deux zones est permise, le front de mousse se propage à la même vitesse dans les deux régions. Par contre, quand la communication est interdite (en plaçant une chemise de Téflon sur le grès) les deux couches sont indépendantes et le front de mousse avance plus vite dans le grès. Ces résultats peuvent être expliqués à l'aide du concept de pression capillaire et le rôle qu'elle joue sur la texture de la mousse.

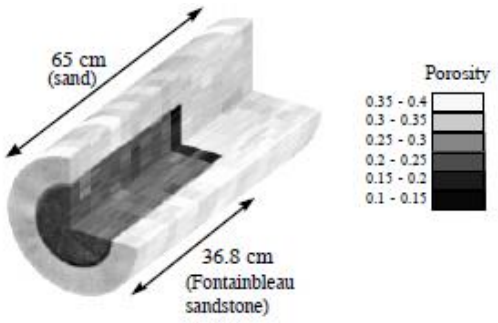


Figure 2.40. Schéma de la colonne hétérogène utilisée (Bertin *et al*., 1999).

En effet, les mousses avec une texture très fine (c'est-à-dire, avec des tailles de bulles petites) présentent une plus forte résistance à la mobilité du gaz que les mousses de texture grossière. La texture d'une mousse est gouvernée par les phénomènes de création et de destruction des lamelles. Pour une saturation de la phase liquide donnée (S_w), la pression capillaire P_c augmente quand la perméabilité du milieu diminue. Quand la valeur de la pression capillaire P_c approche la valeur critique P_c^* les lamelles deviennent instables et le taux de coalescence augmente. C'est le cas pour le grès de Fontainebleau dans cette étude. Ainsi, quand la communication entre le grès et le sable est interdite, chaque milieu détermine la texture de la mousse et les mobilités du gaz sont indépendantes, la plus mobile se situant dans le grès. Mais dans le cas où les couches communiquent, le gaz peut s'écouler dans les deux milieux avec la même mobilité.

3.2. Application sur site de la technique mousse/solution de tensioactif (Hirasaki *et al.*, 1997 ; 2000)

L'accumulation de DNAPLs dans des aquifères est une source de pollution très persistante qui ne peut pas être nettoyée avec les techniques classiques de type « *pump and treat* ». Même s'il était possible de produire tout le DNAPL libre, la partie résiduelle resterait dans l'aquifère. Un processus de dépollution complet implique l'extraction de tout l'hydrocarbure présent, ce qui inclut la phase résiduelle et l'huile piégée dans les zones qui ne peuvent pas être balayées à cause des hétérogénéités. Il a été montré que les tensioactifs peuvent être utilisés de façon très efficace pour récupérer l'huile résiduelle qui reste après l'injection d'eau, mais le principal problème reste l'hétérogénéité de la matrice solide. Tous les aquifères présentent une certaine hétérogénéité dans la distribution de la perméabilité, du fait de la présence de strates causée par les variations au cours du temps des conditions du dépôt de sédiments. Même si la matrice solide était parfaitement homogène en termes de perméabilité, des écoulements non uniformes ont lieu si le polluant est distribué de façon non uniforme. Pour améliorer l'efficacité de balayage, le concept de « contrôle de la mobilité » est utilisé en ajoutant des polymères, en générant des émulsions très visqueuses ou des mousses *in situ*.

La première démonstration sur le terrain du processus mousse/solution de tensioactif pour la dépollution d'aquifères fluviaux hétérogènes a été réalisée au printemps de 1997 sur le site Hill Air Force Base (Utah) par Hirasaki et collaborateurs. Comme il s'agissait du premier test et que l'on souhaitait que ce soit une réussite, certaines conditions ont été réunies pour la sélection du site :

- Un site avec une quantité significative de DNAPL ;
- Un fort contraste de perméabilités entre les différentes couches ;
- Un système hydrogéologique propice à la production, la maintenance et la propagation de la mousse tout en gardant une faible migration dans la zone non saturée.

3.2.1. Description du site de l'étude

Il s'agit d'un aquifère de sable alluvial qui forme un canal limité sur les côtés et en dessous par des épais dépôts argileux constituant une barrière capillaire pour la migration de polluants. Les dimensions du site pour la démonstration sont *6,1 m* x *3,7 m*. La partie la plus profonde du sable dans la zone du test est d'environ *13,7 m* (*45 ft*) sous la surface et *5,5 m* (*18 ft*) en dessous de la nappe phréatique. La conductivité hydraulique varie entre 10^{-4} *m/s* (*10 Darcy*) et plus de 10^{-3} *m/s* (*100 Darcy*).

Pour l'injection des fluides, des puits verticaux ont été installés. La Figure 2.41 montre leur disposition. Il y a deux rangées de puits, une pour l'injection (IN) et une autre pour l'extraction (EX), séparées une distance de *12,2 m* (*40 ft*). La séparation des puits dans une même rangée est égale à *6 m* (*20 ft*). Il y a deux puits de control (MW) et deux puits appelés de « contrôle hydraulique » (HC), utilisés pour injecter de l'eau et créer une barrière hydraulique afin de limiter la sortie de fluides de la zone d'étude. Le volume de pore ***VP*** de l'aquifère a été estimé à *8180 gallons* à l'aide des tests de traçage.

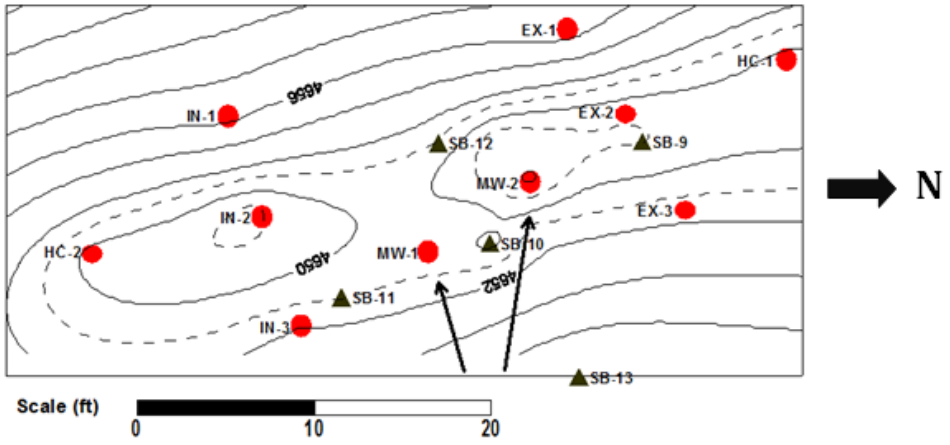


Figure 2.41. Position des puits et élévation de la surface de l'aquiclude dans le site d'étude à Hill Air Force Base OU-2 (Hirasaki *et al.*, 1997).

3.2.2. Description de la pollution

Le polluant provenait des opérations de dégraissage effectuées à la base et contenait environ *70 %* de TCE (trichloréthylène) et des petites portions de PCE (tétrachloroetène) et de TCA (1,1,1- trichloroéthane). Pour caractériser la pollution, des échantillons de sol (marqués par SB dans la Figure 2.41) ont été prélevés et analysés à l'université de Rice. Les résultats sont présentés dans la Figure 2.42, où la ligne pointillée représente la perméabilité et la ligne continue la concentration de NAPL. On observe que trois des carottes ont des « zones piège » avec des perméabilités plus fortes que *100 Darcy*, où le polluant n'était pas présent. Le DNAPL est piégé surtout dans les zones sableuses dont la perméabilité est comprise entre *20* et *60 Darcy*. La concentration maximale de polluant trouvée était d'environ *22 %* (% de volume de DNAPL dans le volume de pore de l'échantillon). Avec cette distribution du polluant, si on n'utilise pas une technique de contrôle de mobilité, il est prévu que la solution de tensioactif injectée s'écoule à travers les « zones piège » (***k*** > *100 Darcy*) et plusieurs volumes de pore seront nécessaires pour déplacer l'huile des zones à faible perméabilité.

La quantité totale de DNAPL présente dans la zone d'étude a été estimée avec des tests de traçage (« *Partition Interwell Tracer Test* » ou PITT) à environ *0,079 m³* (*21 ± 7 gallons*), ce qui correspond à *668 mg* de polluant par kg de sol (ou à une saturation de *0,3 %*). La zone d'étude ne contenait pas de lentilles de NAPL mais des chemins préférentiels. La Figure 2.43 montre une coupe transversale de la zone d'étude, où on peut voir la position des puits et leur profondeur ainsi que la distribution initiale du DNAPL.

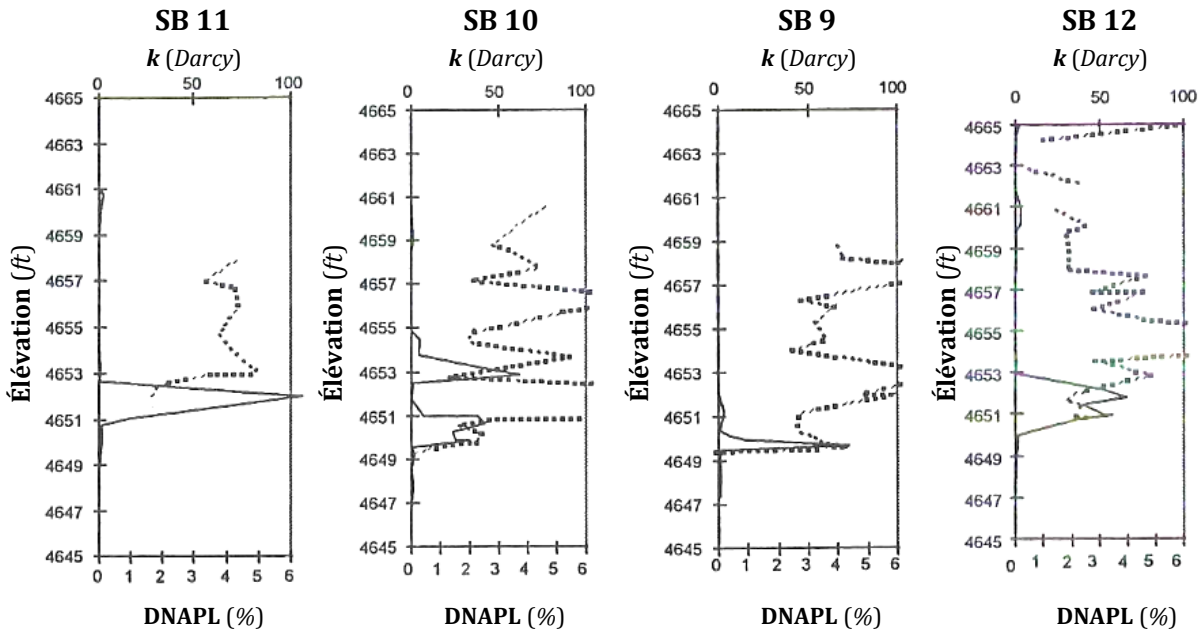


Figure 2.42. Résultats des prélèvements de sol. La perméabilité est représentée par une ligne pointillée et la concentration de NAPL par un trait continu (adapté de Hirasaki *et al.*, 1997).

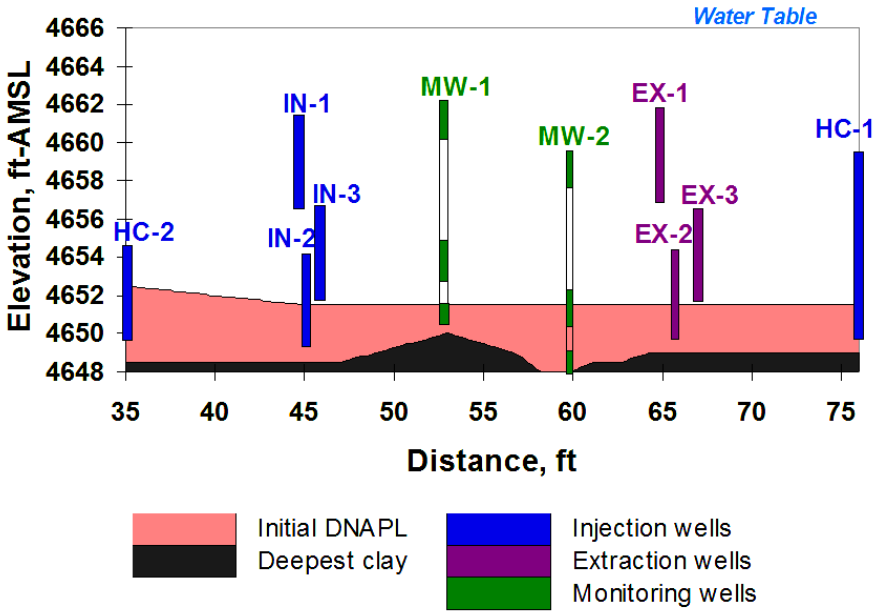


Figure 2.43. Coupe transversale montrant la position de la pollution et des puits (Hirasaki *et al.*, 1997).

3.2.3. Sélection du tensioactif

Le tensioactif utilisé pour cette démonstration a été suggéré par les chercheurs de l'université de Texas (Austin) : sodium dihexilsulfosuccinate (commercialisé par CYTEC Inc. sous le nom Aerosol MA-80I). Il produit des émulsions de type Winsor III avec une grande variété de solvants chlorés, avec des tensions superficielles ultra-faibles entre le polluant et la solution de tensioactif. Il s'agit d'un tensioactif anionique, l'adsorption sur la matrice solide sera plus faible que dans le cas des tensioactifs cationiques ou non ioniques, du fait que le sol est normalement chargé négativement. De plus, la FDA inclut ce tensioactif dans le grade alimentaire, ce qui est un indicateur de sa faible toxicité.

3.2.4. Processus de dépollution

La stratégie suivie est la suivante :

- Injection de *6,7* ***VP*** (Volumes de Pore) d'eau (parfois avec des traceurs).
- Injection de *3,2* ***VP*** de solution de tensioactif (concentration en masse égale à *3,5 %*) pendant *3,2 jours*. La Figure 2.44 montre l'historique de pression et des débits de gaz pour le premier jour d'injection de mousse. Pendant la plupart de ce temps, de l'air était injecté pour des périodes de *2 heures* (en alternant les trois puits d'injection IN1, IN2, IN3, noté dans la partie supérieure du graphique). La pression d'injection maximale était égale à *20 psig* (pendant la plupart du temps la pression était comprise entre *8* et *11 psig*) et le débit maximal égal à *4 scfm*.
- Injection de *21,8* **VP** d'eau avec des traceurs.

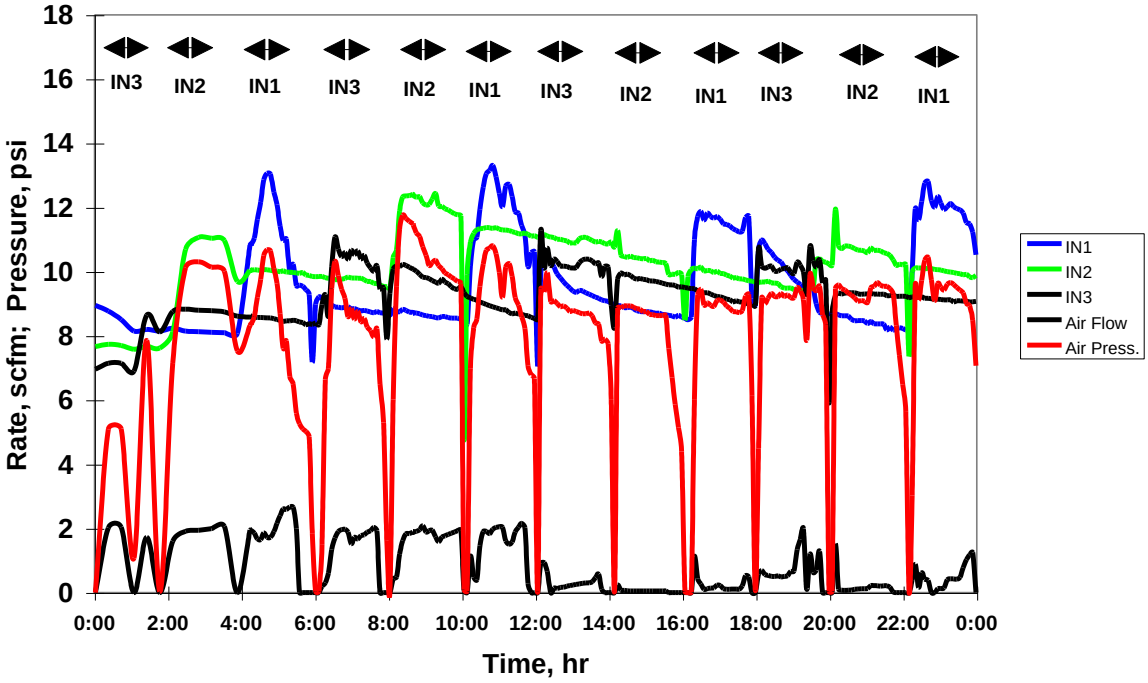


Figure 2.44. Historique de pression et des débits d'injection de gaz durant le premier jour d'injection de mousse. Du gaz est injecté par périodes de deux heures en alternant les trois puits (noté dans la partie supérieure du graphique par des flèches) (Hirasaki *et al.*, 1997).

3.2.5. Résultats et interprétation

Un bon indicateur de la formation de mousse est l'augmentation de la pression d'injection, qui est observée pendant l'injection d'air. Cela suggère que la mousse est présente aux alentours du puits d'injection. L'arrivée du front de mousse au puits d'observation MW2 confirmait l'avancée de la mousse à travers la formation (Figure 2.45). En plus, on observe que la mousse est stable (forte) dans les profondeurs où le polluant a été enlevé (B et C) et faible ou déstabilisée dans les zones polluées (A, qui correspond à la partie la plus profonde de l'aquifère), ou le flux de liquide est dévié et des microémulsions se forment. Cela montre que la mousse « bloque » les zones propres de l'aquifère et favorise l'accès du liquide aux zones encore polluées.

L'effluent produit pendant la démonstration a été analysé par chromatographie en phase gazeuse afin de quantifier le taux de récupération de DNAPL et la concentration de tensioactif. Cette analyse estime que *47,6 gallons* de DNAPL ont été récupérés. Si on enlève à cette quantité la production de DNAPL que l'on aurait obtenue sans l'utilisation de mousse et estimée à *11,1 gallons*, on a une production nette de *36,5 gallons*. Cette quantité est supérieure de celle que l'on avait dans la zone d'étude avant le processus de remédiation (*21 ± 7 gallons*), mais cette augmentation est certainement due au déplacement de polluant d'autres zones de l'aquifère vers la zone de l'étude. Enfin, l'analyse PITT post-remédiation donne une quantité de DNAPL comprise entre *1,6* et *2,6 gallons* présente dans l'aquifère. Cela correspond à une saturation l'environ *0,03 %* et une concentration de *77 mg* de polluant par kilogramme de sol.

L'analyse de la concentration de tensioactif dans l'effluent confirme une récupération de *99,4 %* en masse, ce qui veut dire que la perte de tensioactif (adsorption, écoulements vers des zones en dehors la zone d'étude, etc.) est presque nulle.

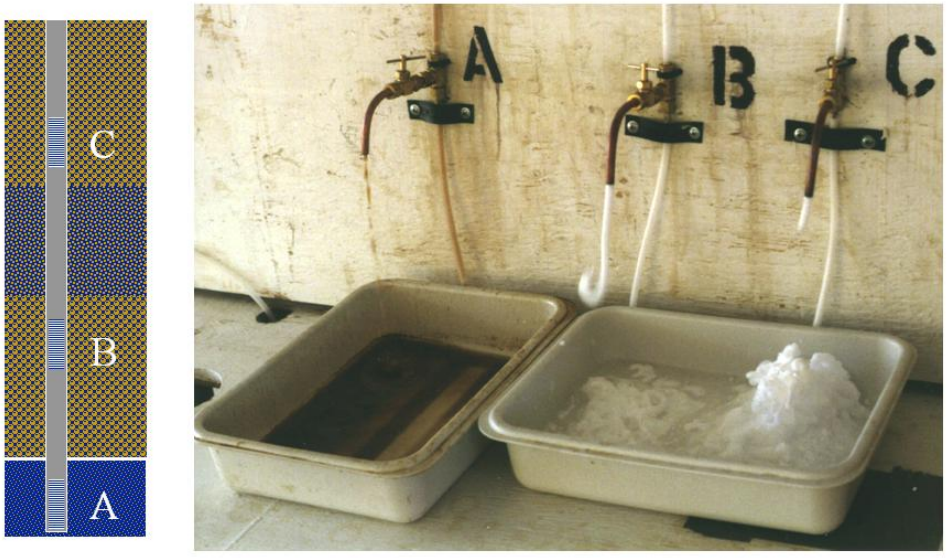


Figure 2.45. Effluent obtenu du puits d'observation MW2 (à droite). A, B et C indiquent la position où le liquide a été prélevé, selon montre le schéma à gauche (Hirasaki *et al.*, 1997).

Chapitre 3

Étude expérimentale

1. Moussabilité. Choix du tensioactif

La sélection du tensioactif est une étape cruciale dans le design du processus de remédiation. Le choix dépend fortement des polluants présents dans l'aquifère, mais de façon générale, il y a certaines caractéristiques ou propriétés recherchées :

- Une bonne moussabilité. Lorsque la génération de mousse *in situ* est combinée au lavage de sols (comme on l'a vu dans le Chapitre 2), la fonction du tensioactif est double : générer de la mousse stable dans les zones à forte perméabilité et dépolluer les couches à faible perméabilité. La déstabilisation de la mousse par le NAPL peut être positive : ceci implique que la mousse ne se formerait pas dans les zones encore polluées. L'entrée de liquides pour la remédiation ne serait alors pas gênée.

- Le tensioactif doit être capable de solubiliser l'huile et diminuer la tension interfaciale eau-huile afin de libérer le NAPL des pores et de le déplacer.

- La formation de phases complexes, tels que des gels et des cristaux liquides n'est pas souhaitée. Ces phases sont difficiles à récupérer et peuvent bloquer les pores (« *pore clogging* ») en provoquant une perte de conductivité hydraulique.

- Une faible toxicité et une capacité à se biodégrader dans un espace de temps raisonnable sont des propriétés très importantes, surtout pour des applications liées à l'environnement.

En effet, l'utilisation de tensioactifs chimiques peut avoir des conséquences négatives pour l'environnement, la plupart étant toxiques et faiblement biodégradables. Ainsi, l'industrie des tensioactifs est en quête de nouvelles molécules avec des propriétés fonctionnelles très spécifiques répondant aux exigences strictes en matière de qualité environnementale (Piccicuto *et al.*, 2001).

Dans ce contexte on se propose de trouver d'autres types de molécules qui sont respectueuses de l'environnement. Certains chercheurs ont proposé l'utilisation de tensioactifs alimentaires, affirmant qu'ils sont plus susceptibles d'obtenir l'acceptation du grand public et des responsables de la réglementation pour les projets d'assainissement des eaux souterraines (Shiau *et al.*, 2000). Des tensioactifs organiques (ou biotensioactifs) et certains émulsifiants issus de l'industrie agroalimentaire constituent une alternative intéressante, souvent avec un faible impact environnemental et des propriétés physico-chimiques comparables de celles de leurs homologues classiques.

1.1. Les candidats

1.1.1. Tensioactifs classiques. Le Triton® X-100

Pour notre étude un alkyl phénol éthoxylate (APE), le Triton® X-100 ($C_{14}H_{22}O(C_2H_4O)_n$) a été choisi comme tensioactif classique de référence (Figure 3.1). Il s'agit d'un tensioactif non ionique avec une chaine hydrophile d'oxyde de polyéthylène (en moyenne il a *9,5* unités d'oxyde d'éthylène OE) et un groupe hydrophobe hydrocarboné aromatique (un groupe 4-(1,1,3,3-tetraméthylbutyl)-phényl). Il s'agit d'un liquide incolore visqueux. La CMC est égale à *150 mg/L*. Il est fourni par Sigma Aldrich (laboratory grade) et utilisé tel qu'on le reçoit. Mulligan et Eftekhari (2003) se sont servis de ce tensioactif pour générer de la mousse in situ et dépolluer de colonnes de sable contenant du pentachlorophénol (PCP).

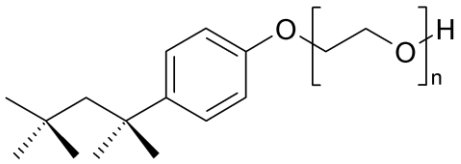


Figure 3.1. Structure chimique du Triton® X-100.

Le coût et les bonnes performances ont favorisé l'ample utilisation des APEs, même si leurs effets sur l'environnement ont été mis en question. Bien que leur présence dans les produits nettoyants ménagers ait diminué, ils sont toujours très utilisés pour le nettoyage industriel et des applications agricoles et dans les industries du plastique, du textile et du papier. Il y a de nombreuses études sur la sûreté environnementale des APEs, la plupart étant dédiées au nonylphénol éthoxylate (NPE), qui contient une chaine alkyl très ramifiée.

La Figure 3.2 montre les étapes concernant la biodégradation primaire des APEs, c'est-à-dire, la biotransformation qui produit des pertes de propriétés tensioactives. La chaine de ***n*** unités d'oxyde d'éthylène est raccourcie d'une unité à chaque fois, et quand ***n*** est égal à *3*, la transformation en alkylphénol monoéthoxylate (APE_1) et alkylphénol diéthoxylate (APE_2) a lieu. Le problème de la biodégradation des APEs est que souvent les produits intermédiaires sont plus toxiques que les molécules initiales. En règle générale, la toxicité augmente quand le nombre d'unités d'oxyde d'éthylène diminue. C'est le cas du NPE, où le nonylphénol monoéthoxylate (NPE_1), nonylphénol diéthoxylate (NPE_2) et le nonylphénol (NP) sont plus toxiques que le NPE. En plus, le NPE_1 et le NPE_2 ont tendance à s'accumuler dans l'environnement car la chaine alkyl ramifiée se dégrade très lentement. Le Tableau 3.1 montre la gamme de toxicité pour les APEs en fonction de la *Concentration Efficace Médiane* (CE_{50}), qui est une mesure de la concentration d'une substance qui induit une réponse à mi-chemin entre la ligne de base et l'effet maximum après un certain temps d'exposition à celle-ci.

En général la biodégradation ultime (ou minéralisation) des APEs n'est pas notée de façon systématique dans les études, et quand elle est observée, elle est plus lente par rapport à celle des autres agents tensioactifs.

C'est pour cette raison que nous utilisons le Triton® X-100 uniquement comme modèle pour nos expériences, notre but étant de trouver des tensioactifs respectueux de l'environnement avec des bonnes propriétés adaptés à notre application.

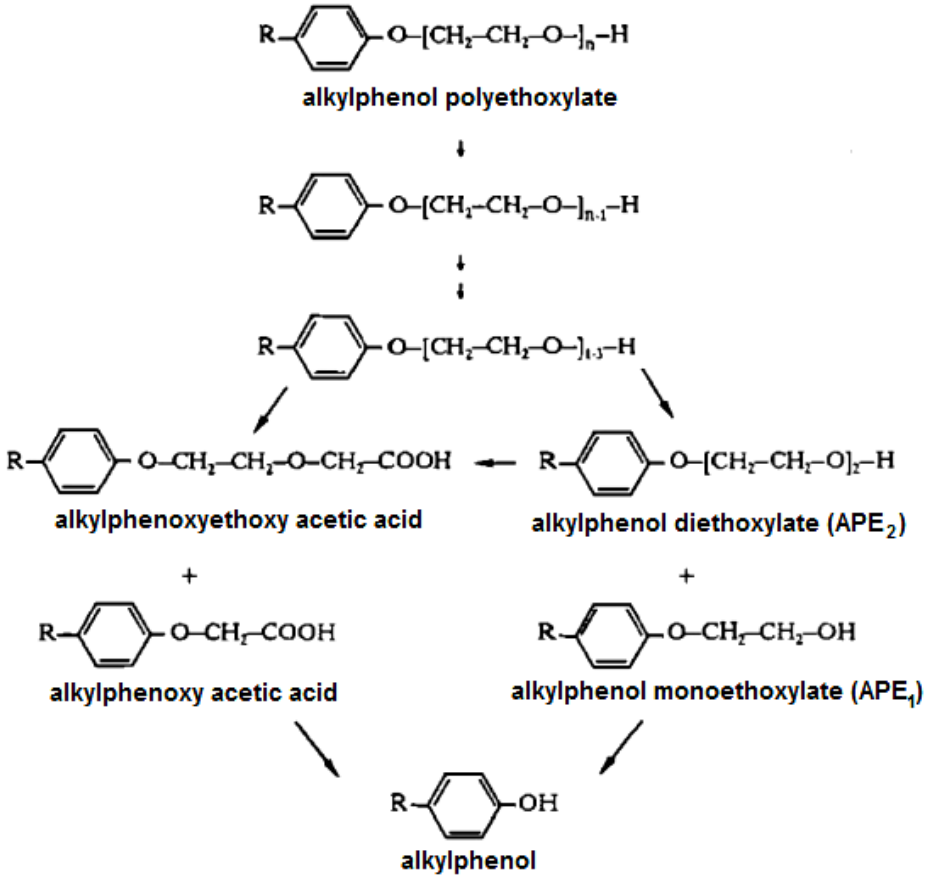


Figure 3.2. Étapes du processus de biodégradation primaire des APEs (Talmage, 1994).

Tableau 3.1. Gamme de toxicité pour les APEs. Les indices font référence à la longueur de la chaine d'oxyde d'éthylène (Talmage, 1994).

Groupe taxonomique	Toxicité aigüe, CE_{50} (*mg/L*)
Bactéries	*20 – 800* (NPE_{4-30})
Algues	*5 – 1000* (C_8-C_9 APE_{9-30}) *0,027 – 1,5* (NP)
Invertébrés aquatiques	*2,9 – 100* (NPE_{9-12}) *0,043 – 3* (NP, NPE_1, NPE_2)
Poissons	*1,3 – 62* (C_8-C_9 APE_{4-10}) *0,14-0,48* (NP)

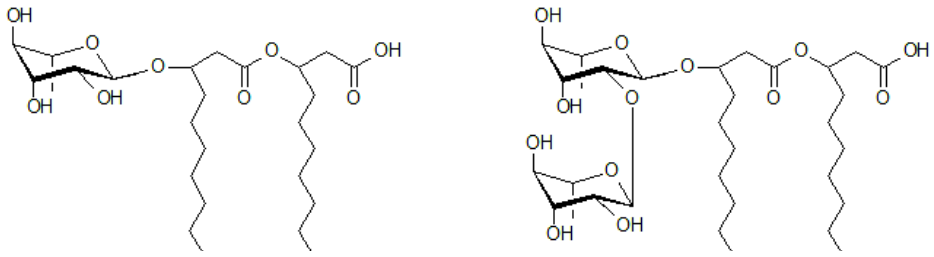
1.1.2. Biotensioactifs. Les rhamnolipides

Les biotensioactifs sont des molécules produites par certains microorganismes, tels que des bactéries, des levures ou des champignons. Leurs caractéristiques dépendent du type de microorganisme producteur mais aussi de la souche testée et du substrat nutritif disponible pour la croissance cellulaire. Parmi les biotensioactifs identifiés, on trouve des glycolipides, des lipopeptides, des phospholipides, des acides gras et des lipopolysaccharides.

De la même façon que leurs homologues de synthèse chimique, ils peuvent avoir des propriétés émulsifiantes, moussantes, mouillantes, dispersantes, etc., et aussi des propriétés beaucoup plus spécifiques, comme par exemple antibiotiques. Certaines de ces propriétés peuvent, d'ailleurs, être conservées dans des conditions extrêmes d'utilisation, tels que pH acide, hautes températures, etc. (Mulligan, 2005).

Les rhamnolipides sont un groupe de biotensioactifs non ioniques très étudié. Il s'agit de molécules où une unité de sucre rhamnose est combinée avec des bêta-hydroxy-acides gras. L'extrémité carboxyle de la fin des acides gras est connectée à la rhamnose. Les rhamnolipides sont composés seulement par trois éléments chimiques : carbone, hydrogène et oxygène. Ils sont produits par les *Pseudomonas aeruginosa*, microorganismes qui peuvent faire la synthèse à partir de plusieurs substrats, tels que les alcanes C11 et C12, le glycérol, l'huile d'olive, le fructose et le glucose entre autres. Jusqu'à nos jours, sept homologues ont été identifiés, leur production étant déterminée par le pH, la température et le type de substrat.

Pour notre étude on utilise le rhamnolipide JBR425, fourni par Jeneil Biosurfactant Co. Il s'agit d'une solution aqueuse ambrée de mono et di-rhamnolipides (Figure 3.3), à une concentration en masse supérieure à *25 %* selon les spécifications (notre échantillon contient *29,8 %* en masse). Il est produit à partir du milieu de fermentation stérilisé et centrifugé auquel on a enlevé toutes les protéines. Les proportions de mono et di-rhamnolipides présentes peuvent varier d'un échantillon à d'autre.



Mono-rhamnolipide **Di-rhamnolipide**

Figure 3.3. Structure chimique des mono et di-rhamnolipides.

Pour étudier l'impact environnemental du JBR425 plusieurs tests ont été réalisés selon les standards de l'OECD (source : JBR425 Product Data Sheet, Jeneil Biosurfactant Co.). Le biotensioactif a un taux de biodégradation de *68,4 %* en *10 jours* (test OECD 301D). Le test OECD 209, concernant l'impact sur les boues activées des centres de traitement d'eaux résiduelles, montre que l'CE_{50} est supérieure de *1000 mg/L*. Le test concernant la toxicité aquatique pour Daphnia Magna donne une CE_{50} = *36,1 mg/L*, valeur

extrêmement faible par rapport à celle d'autres tensioactifs commerciaux. La toxicité orale, calculée selon les directrices d'US EPA, donne une valeur pour DL_{50} (Dose Létale Médiane) supérieure de *5000 mg/kg*.

1.1.3. Les esters de sucres. Le laurate de saccharose

Ces molécules amphiphiles, constituées d'un groupe osidique hydrophile et une chaine grasse hydrophobe, n'existent pas dans la nature et sont synthétisées à partir de matières premières renouvelables (les sucres correspondants sont issus de la photosynthèse). Le Tableau 3.2 montre une liste des avantages de l'utilisation des esters de sucre comme molécules tensioactives.

Tableau 3.2. Avantages des esters de sucre utilisés comme molécules tensioactives (Ducret *et al.*, 1995 ; 1996).

- Matières premières peu coûteuses et renouvelables
- Biodégradabilité complète tant en aérobiose qu'en anaérobiose
- Molécules ne présentant ni toxicité (lors de la digestion, les sucroesters sont convertis en sucres et en acides gras, donc en molécules métabolisables), ni caractère irritant
- Absence de goût et d'odeur
- Molécules non-ioniques
- Large gamme de structures disponibles

Néanmoins, leur production entraîne la génération d'une quantité non négligeable de sous-produits. Ces derniers doivent être éliminés, ce qui implique des coûts de purification relativement importants. Néanmoins, de nouvelles voies de synthèse font l'objet de recherches afin de résoudre ce problème (Piccicuto *et al.*, 2001).

Les esters de saccharose ont été les premiers commercialisés, au Japon en 1958. Ensuite ils ont été approuvés par la FDA (« *Food and Drug Administration* », USA) en 1983. Parmi les sucroesters commercialement disponibles, on trouve également les esters de sorbitan, mieux connus sous les noms commerciaux Tween® et Span®.

Les esters de saccharose et d'acides gras ayant au moins *12* atomes de carbone possèdent des propriétés tensioactives. Le comportement amphiphile de ces tensioactifs à base de saccharose est dû à la présence de groupes hydroxyles libres (hydrophiles) et de la chaîne alkyle (hydrophobe). Le saccharose (Figure 3.4) est un des composés organiques les plus abondamment produits dans le monde. Il est disponible à un niveau très élevé de pureté et à très faible coût. Le saccharose est un produit synthétisé par presque toutes les plantes vertes et est assimilé par la plupart des organismes. Par rapport au pétrole, son principal compétiteur, le saccharose a l'avantage d'être une ressource renouvelable avec un faible impact sur l'environnement.

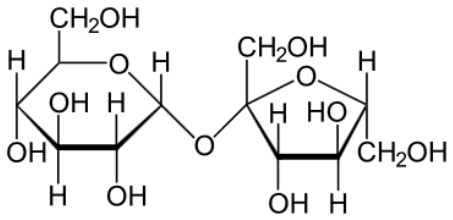


Figure 3.4. Molécule de saccharose.

Pour notre étude nous avons utilisé le sucrose laurate (ou laurate de saccharose) C-1216 Surfhope® SE COSME (cosmetic grade) fourni par Mitsubishi Kagaku Foods Coorp. (Figure 3.5). Il s'agit d'un tensioactif non ionique, sous forme de granulat blanc contenant mono et polyesters (proportion aux alentours de *80* : *20* respectivement, selon les spécifications du fabricant).

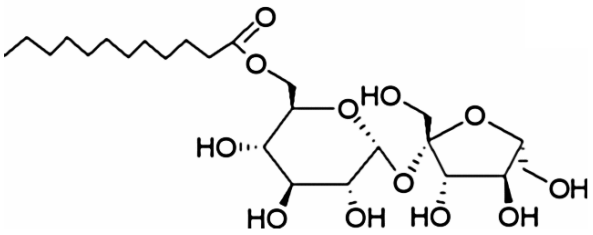


Figure 3.5. Molécule de laurate de saccharose (source : www.sigmaaldrich.com).

Les esters de sucre sont reconnus comme étant rapidement biodégradables. Il existe une relation entre la biodégradabilité et la structure chimique, ce qui facilite une conception ciblée des agents tensioactifs pour une application spécifique. Baker *et al*. (2000) ont déterminé les biodégradabilités aérobies ultimes avec la méthode ISO 7827, intitulée « Qualité de l'eau – Évaluation en Milieu Aqueux de la Biodégradabilité Aérobie des Composés Organiques, Méthode de Carbone Organique Dissous » pour différents sucroesters (variations de la taille du groupe hydrophile et/ou de la longueur et du nombre de chaines alkyle). Par exemple, la biodégradation du laurate de saccharose est complète dans les *12 heures*, tandis que celle du *α*-sulfonil sucrose laurate est plus lente, atteignant environ *85 %* de biodégradation en *25 jours*.

1.2. Mesure de la Concentration Micellaire Critique (CMC)

La formation de micelles produit des changements abrupts de certaines propriétés de la solution pour des gammes de concentration très faibles. La mesure de propriétés physiques telles que la tension superficielle, la conductivité électrique (pour des tensioactifs ioniques) et la dispersion de la lumière en fonction de la concentration de tensioactif produit des courbes qui présentent des discontinuités relativement fortes à faible concentration (Figure 3.6). La propriété physique que l'on va mesurer est la variation de tension superficielle, à l'aide d'un goniomètre.

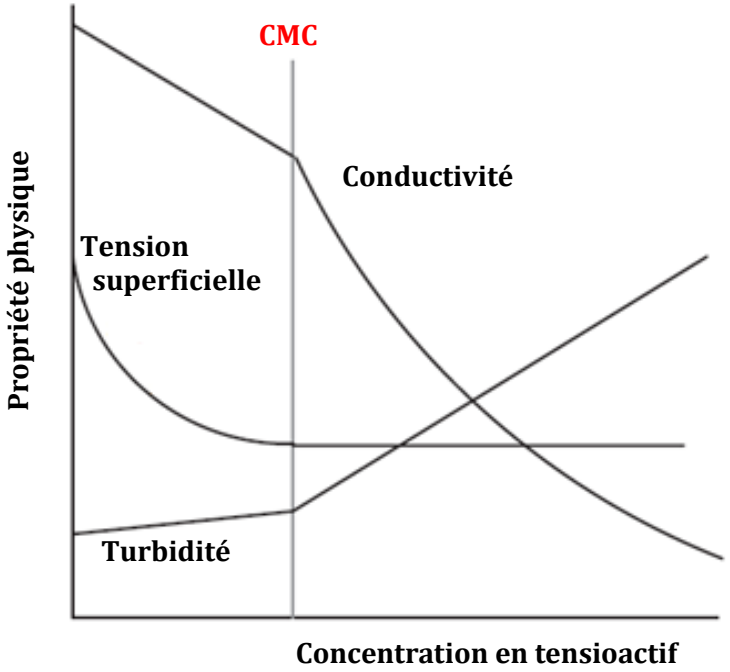


Figure 3.6. Manifestation de la formation de micelles (adapté de Myers, 2006).

1.2.1. Méthode analytique. Le goniomètre

Quand une goutte de liquide se forme à l'extrémité d'une aiguille, elle prend une forme qui a été décrite en premier lieu par le mathématicien français Pierre-Simon de Laplace et l'anglais Thomas Young vers 1802. Cette forme correspond à l'équilibre entre les deux forces présentes : la pesanteur et la tension superficielle. La force de gravité allonge la goutte (selon la masse volumique) tandis que la tension superficielle opposée à cette déformation maintient la goutte sphérique à proximité de l'aiguille. Ainsi, l'équation de Young-Laplace (2.20) peut être utilisée pour décrire l'équilibre des forces en chaque point autour de la frontière entre la goutte et l'aiguille.

La masse volumique et la pesanteur peuvent être mesurées expérimentalement, et une mesure minutieuse à partir d'une photographie nous permet de connaître les coordonnées x et y de la frontière de la goutte. Il est donc possible d'utiliser ces informations pour obtenir la tension superficielle inconnue d'une goutte avec l'équation de Young-Laplace. Cependant, il n'y a pas de solution analytique pour cette équation : la tension superficielle ne peut être obtenue que par approximations successives.

La Figure 3.7 montre le schéma du goniomètre Tracker-Teclis utilisé pour réaliser les mesures.

On forme une goutte de liquide à l'extrémité d'une aiguille, qui restera suspendue lors de l'expérience (Figure 3.8.b). Une source de lumière éclaire l'aiguille et la goutte, et une vidéo caméra munie d'un téléobjectif capture l'image. La frontière de la goutte avec l'aiguille est ensuite numérisée pour produire une série de valeurs x et y qui seront analysées (Figure 3.8.c).

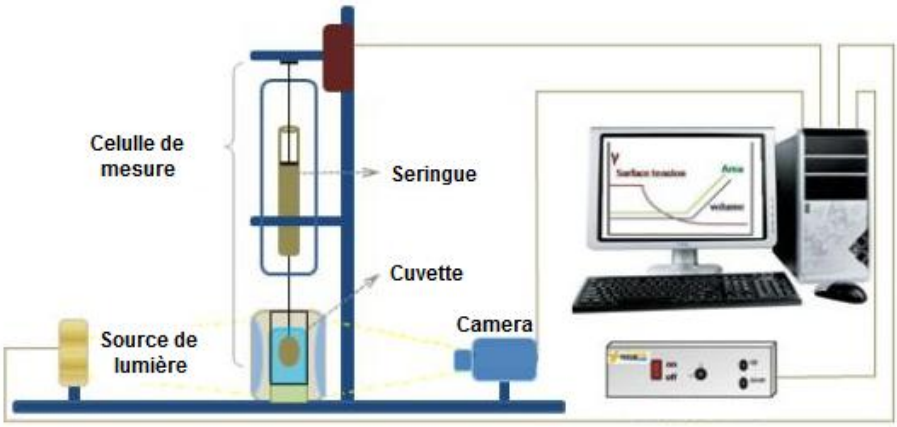


Figure 3.7. Schéma du goniomètre Tracker-Teclis (source : http://www.teclis-instruments.com/index.php/en/gallery/products/tensiometer)

Avant la mesure, on ajuste la seringue afin que l'aiguille reste la plus verticale possible. Ainsi, on rend l'image symétrique, de sorte que seulement un côté doit être analysé. La frontière de l'aiguille est définie numériquement pour que seules les données utilisables soient acquises. Pendant la mesure, le logiciel génère une valeur initiale pour la tension de surface et pour le rayon de la goutte et produit un ensemble de coordonnées théoriques sur la base de l'équation de Young-Laplace. Les valeurs expérimentales et théoriques pour chaque coordonnée sont comparées pour produire une erreur globale d'ajustement. Les valeurs sont ensuite légèrement modifiées et le processus répété. Après plusieurs itérations, une erreur minimale entre les valeurs expérimentales et théoriques est obtenue, la tension superficielle correspond à cette valeur.

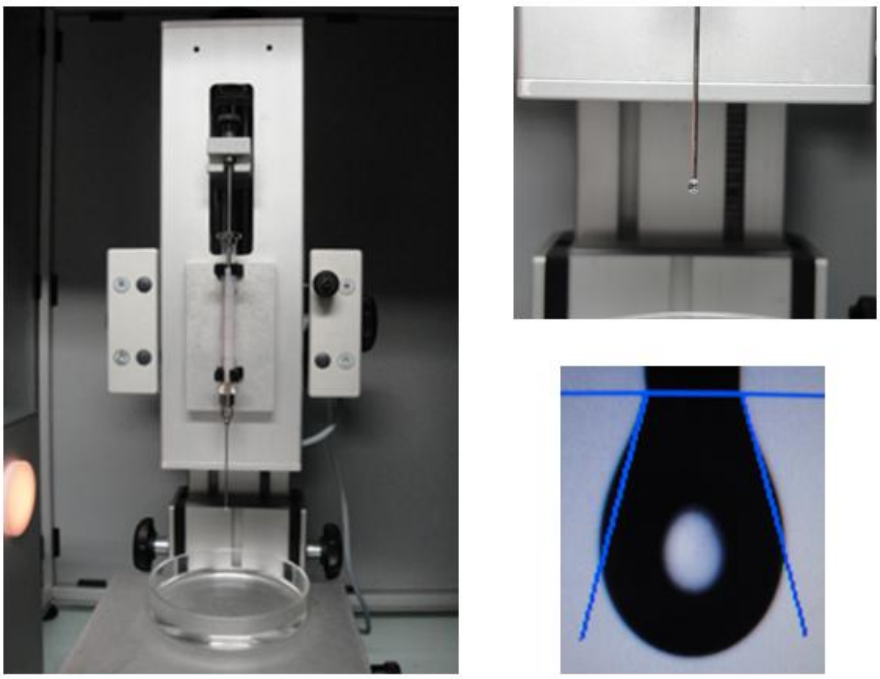


Figure 3.8. Goniomètre Tracker-Teclis. À gauche (a) : vue générale. En haut à droite (b) : détail d'une goutte. En bas à droite (c) : détail de la numérisation de la frontière de la goutte.

La mesure de la CMC avec cette méthode présente certaines limitations, dues à :

- L'évaporation. Le volume de la goutte diminue en raison de l'évaporation. Ainsi, la concentration de tensioactif dans la goutte augmente avec le temps et la tension superficielle tend à diminuer.
- L'adsorption du tensioactif. Il faut attendre un certain temps pour que les molécules de tensioactif se déplacent vers la surface de la goutte, la tension superficielle n'étant constante qu'à partir de ce moment.

Pour limiter les effets de l'évaporation lors de nos expériences on a placé un réservoir d'eau à côté de la seringue, afin de saturer l'air en eau. Et pour être sûr d'avoir atteint la migration des molécules de tensioactif vers l'interface, on a considéré la valeur de tension de surface obtenue à $\boldsymbol{t}$ = *500 secondes*, moment où le signal était assez stable et variait peu avec le temps. Les essais ont été répétés trois fois et c'est la moyenne de ces valeurs a été prise comme tension superficielle.

La précision de la mesure est donc difficile à évaluer. Soulignons par ailleurs que la mesure de la CMC elle-même n'est pas l'objectif majeur de l'étude, car nos expériences sont centrées sur la mousse en milieu poreux. Une valeur approximative sera donc suffisante pour le dimensionnement des expériences sur colonne.

1.3. Méthodes pour mesurer la stabilité de la mousse (Salager et Choplin, 2008)

1.3.1. Méthode de Ross-Miles

Il s'agit d'une expérience très simple à mettre en œuvre dont les conditions expérimentales sont fixées par la norme ASTM D1173. On verse *200 mL* de liquide depuis une hauteur de *90 cm* dans un cylindre gradué contenant déjà *50 mL* de liquide. La hauteur de la colonne de mousse obtenue est une indication de la moussabilité du liquide à la température de l'expérience. La hauteur de la colonne en fonction du temps est suivie, et le temps nécessaire pour qu'une fraction ou la totalité du volume collapse peut être utilisé comme estimation de la stabilité de la mousse (Figure 3.9).

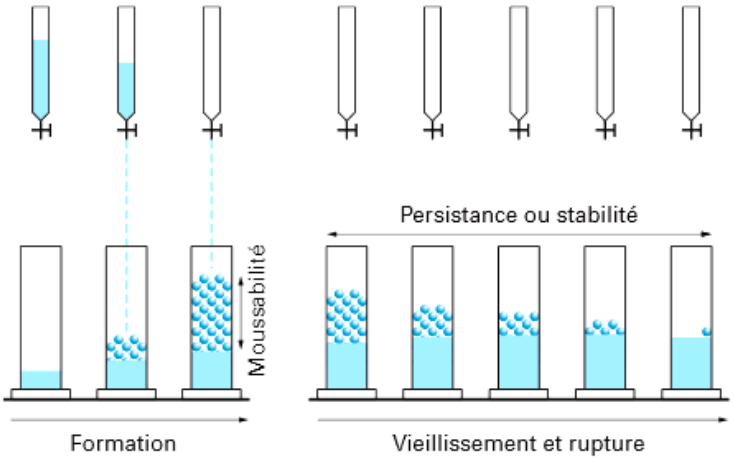


Figure 3.9. Méthode de Ross-Miles (Salager et Choplin, 2008).

1.3.2. Méthode de Bikerman

Cette méthode consiste à générer de la mousse dans une colonne contenant une certaine quantité de liquide par injection d'un débit constant de gaz à travers un fritté produisant des petites bulles. La mousse formée s'accumule dans la colonne et le volume augmente avec le temps, la pente de la région initiale étant proportionnelle au débit de gaz injecté. La partie supérieure de la mousse vieillit et après un certain temps, quand la vitesse de rupture est égale à la vitesse de formation, la hauteur de la colonne de mousse devient constante et on atteint un équilibre dynamique (Figure 3.10). Le débit du gaz doit être adapté pour maintenir la hauteur de la colonne dans des limites raisonnables.

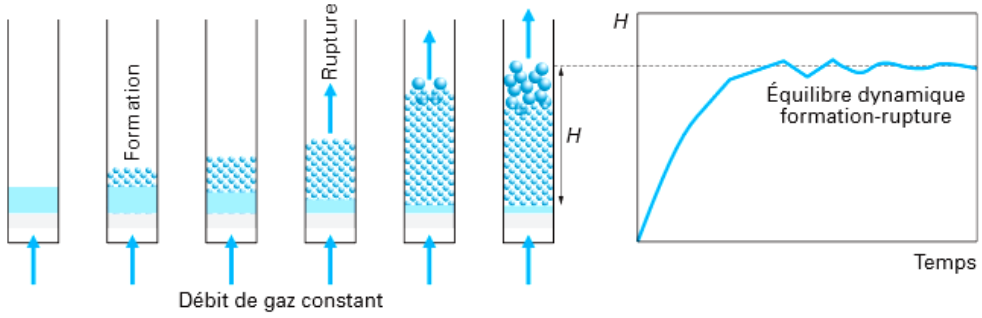


Figure 3.10. Méthode de Bikerman (Salager et Choplin, 2008).

1.3.3. Méthode mixte

Pour cette méthode, on utilise le principe de la méthode de Bikerman. Quand on arrête l'injection du gaz, la mousse ne se forme plus en bas de la colonne mais celle de la partie haute de la colonne commence à vieillir et à se déstabiliser. En conséquence la hauteur de la colonne décroît en fonction du temps et on peut estimer la stabilité de la mousse en fonction de la variation du volume à partir du moment où on arrête l'injection. On utilisera les principes de cette méthode pour caractériser les mousses produites par les solutions des tensioactifs candidats.

1.4. Description du dispositif expérimental

Pour réaliser les tests de stabilité de mousse hors milieu poreux, on utilise une colonne graduée en verre (diamètre interne *4,4 cm*, *50 cm* de hauteur) contenant un fritté en verre borosilicaté (taille des pores comprise entre *100 - 160 µm*) et une pompe à air (débit nominal *80 L/heure*). Le schéma du montage expérimental est présenté dans la Figure 3.11.

1.5. Matériaux. Tensioactifs

On utilise trois tensioactifs pour les expériences de moussabilité hors milieu poreux. Le Triton® X-100, le sucrose laurate C-1216 et le rhamnolipide JBR425. Les solutions sont préparées avec de l'eau déminéralisée.

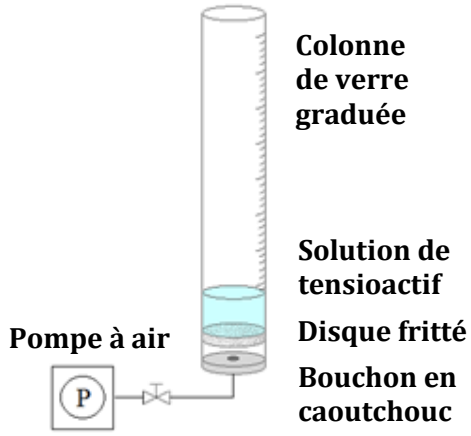


Figure 3.11. Schéma du montage expérimental utilisé pour les expériences de stabilité de mousse hors milieu poreux.

1.6. Protocole expérimental

On prépare *100 mL* de la solution de tensioactif désirée et on l'agite à l'aide d'un dispositif magnétique pendant au moins *10 minutes*. On utilise des différentes concentrations (*5*, *10* et *20* fois la CMC) afin de vérifier si ce paramètre a un effet sur la stabilité de la mousse. Ensuite on verse la solution de tensioactif dans la colonne à l'aide d'une pipette pour éviter la production de mousse et le glissement du liquide à travers les parois de la colonne, qui peut influencer la déstabilisation de la mousse. On connecte la pompe et l'air passe à travers le fritté en générant de la mousse. Comme le disque fritté occupe la totalité de l'aire transversale, la surface de la colonne de mousse formée est homogène, facilitant la lecture de la hauteur. La pompe est arrêtée une fois que la hauteur de la colonne est égale à *40 cm*. Ensuite on laisse la colonne de mousse se déstabiliser, et on mesure la hauteur de la colonne en fonction du temps. La Figure 3.12 montre les différentes étapes de cette expérience.

Le temps nécessaire pour que la moitié du volume de mousse collapse est appelé temps de demi-vie, $t_{1/2}$, qui est le paramètre que l'on va utiliser pour comparer les différents tensioactifs.

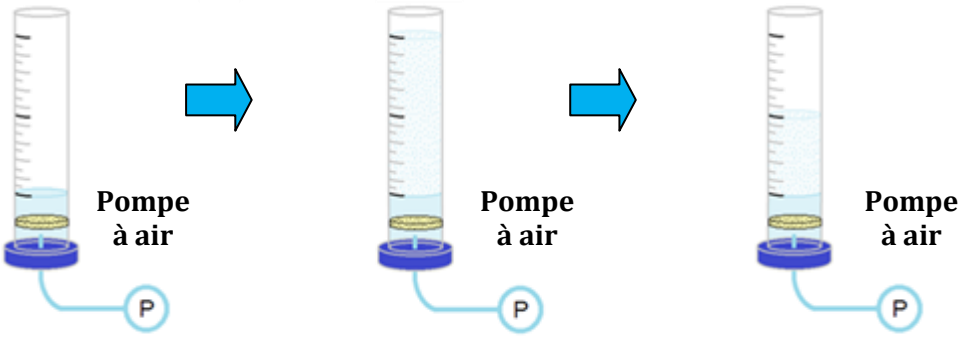


Figure 3.12. Étapes de l'expérience de mesure de la stabilité de la mousse hors milieu poreux. À gauche, *100 mL* de solution de tensioactif ont été versés dans la colonne graduée. Au milieu, une colonne de mousse de *40 cm* de hauteur a été générée. À droite, la moitié du volume de mousse s'est déstabilisé, le temps correspondant au $t_{1/2}$.

2. Échelle locale. Expériences sur colonnes 1-D

2.1. Description du montage expérimental

La Figure 3.13 présente le montage expérimental utilisé pour réaliser les expériences sur colonne. Une pompe à piston est utilisée pour l'injection de liquide. Le gaz (air industriel) est injecté à l'aide d'un régulateur de débit massique. La perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne est mesurée avec un capteur de pression différentielle. Une vue générale de l'installation est présentée dans la Figure 3.14.

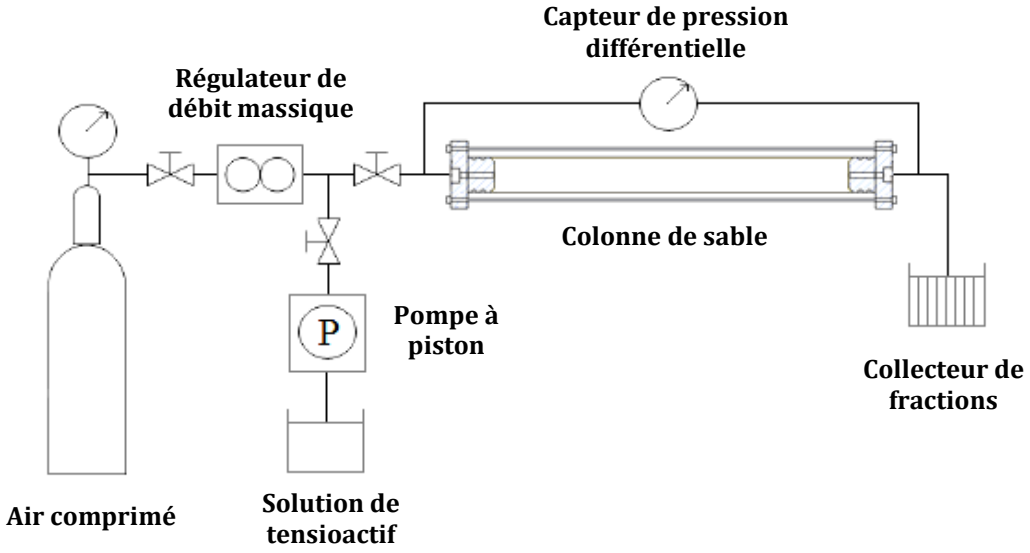


Figure 3.13. Schéma du montage expérimental pour réaliser les expériences sur colonne.

Figure 3.14. Vue générale de l'installation utilisée pour les tests sur colonne.

2.1.1. Colonne

La colonne (Figure 3.15) est constituée d'un tube transparent de PVC (diamètre interne D_{int} = *44 mm*, diamètre externe *50 mm*) de longueur $L \simeq$ *500 mm* et une tenue à la pression de *10 bar* maximum (épaisseur des parois *3 mm*). Aux extrémités, deux bouchons (Figure 3.16) garantissent l'étanchéité et la connexion avec les tubes liant la colonne et les différentes parties de l'installation. Pour éviter que des grains de sable ne sortent de la colonne, du filtre en géotextile est placé entre le bouchon et le milieu poreux.

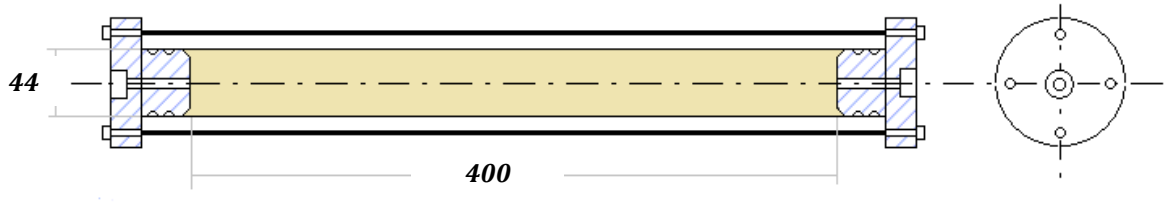


Figure 3.15. Schéma de la colonne de sable. Les dimensions sont données en *mm*.

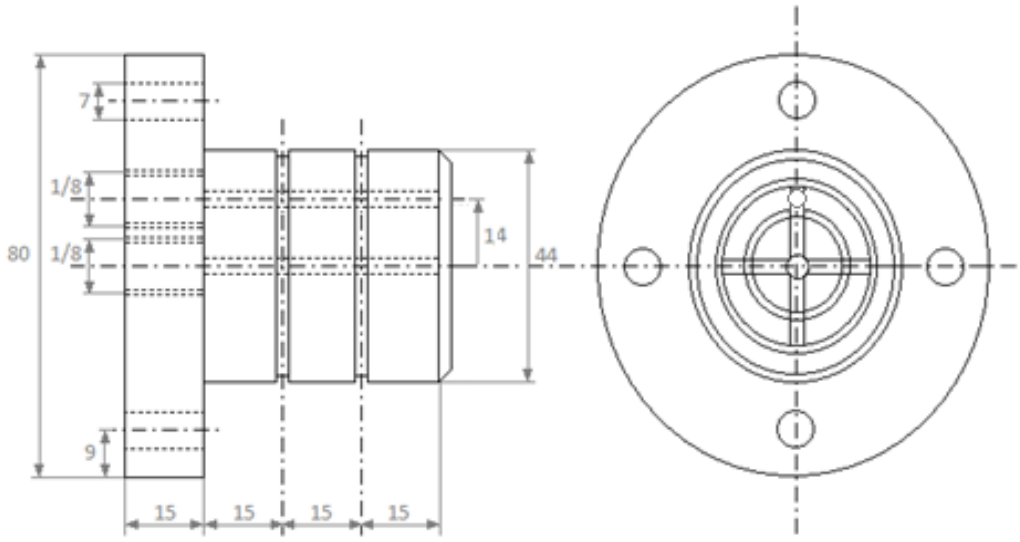


Figure 3.16. Plan des bouchons de la colonne (dimensions données en *mm)*. Le trou central est utilisé pour l'injection des fluides, tandis que le trou excentrique sert à mesurer la pression. Les deux gorges sur la surface extérieure servent à placer les joints toriques garantissant l'étanchéité. Les rainures concentriques sur la base favorisent la bonne répartition des fluides injectés sur l'aire transversale du milieu poreux. Les quatre trous périphériques servent à fixer les tirants.

2.1.2. Pompe piston

Le modèle de pompe utilisée est « Eldex W8590B – Pompe Optos Inox *5 mL/min 525 bar* » et les caractéristiques principales sont les suivantes :

- Débit variable *0,003-5 mL/min*.
- Pression maximale *525 bar*.
- Reproductibilité *+/- 0,3 %.*

2.1.3. Régulateur de débit massique

Le modèle utilisé est El-Flow Bronkhorst F201CV *0-20 ml/min* (dans des conditions normales). Cet appareil donne un débit massique, dont les conditions de référence sont une température $\boldsymbol{T}$ = *0°C* et une pression $\boldsymbol{P}$ = *1,013 bar*. On utilise le terme mL_n/min, l'indice « *n* » indiquant les conditions normales.

2.1.4. Capteur de pression différentielle

Le modèle utilisé est Rosemount 2051C. L'échelle est ajustée pour avoir une gamme de *0-1 bar* (précision de *0,075 %* de la pleine échelle). Les données sont acquises avec une carte d'acquisition National Instruments et visualisées à l'aide du logiciel LabVIEW.

2.1.5. Collecteur de fractions

À la sortie de la colonne l'effluent est collecté à l'aide d'un collecteur de fractions (Gilson, modèle FC203B) pour réaliser les tests de traçage ou d'adsorption.

2.2. Matériaux et fluides

2.2.1. Milieu poreux

Quatre types de milieux poreux non consolidés ont été choisis afin d'avoir une plage de perméabilités comprise entre *1* et *100 Darcy*. Les perméabilités sont estimées à l'aide de la relation de Kozeny-Carman (3.1), où $\boldsymbol{d}$ est le diamètre moyen des particules et $\boldsymbol{\phi}$ la porosité :

$$\boldsymbol{k = \frac{d^2 \phi^3}{[180(1-\phi)^2]}} \qquad \textbf{(3.1)}$$

Dans une première approximation pour estimer la perméabilité on prend comme diamètre moyen des grains la valeur $\boldsymbol{D_{50}}$ de la courbe de refus cumulés, et on utilise une porosité $\boldsymbol{\phi}$ = *0,35*.

a. *Billes de verre*

Pour obtenir une perméabilité proche de *1 Darcy*, on utilise des billes de verre calibrées Spheriglass® Solid Glass 2000 (Potters Europe). Le diamètre moyen des particules est compris entre *27* et *36 µm*, ce qui donne une perméabilité estimée ***k*** = *0,5 Darcy*. Le Tableau 3.3 montre les caractéristiques techniques des billes de verre calibrées :

Tableau 3.3. Propriétés physiques des billes de verre calibrées Spheriglass® Solid Glass 2000.

Référence	**Distribution de taille** (*µm*)	**Passante** (*%*)	**Surface spécifique** (*m^2/cc*)	**Diamètre moyen** (*µm*)	***90 %* comprises entre** (*µm*)
Spheriglass® Solid Glass 2000	*100*	*99,8 – 100*	*0,4 – 0,8*	*27 – 36*	*3 – 80*
	63	*83 – 97*			
	45	*67 – 88*			
	24	*20 – 40*			

b. *BR37*

Le sable Sibelco BR37 donne une perméabilité estimée proche de ***k*** = *10 Darcy*. Tous les sables Sibelco utilisés dans les expériences sont composés de SiO_2 (> *99 %*) et la masse volumique est égale à *2,65 g/cm^3*. La Figure 3.17 montre la courbe de refus cumulés.

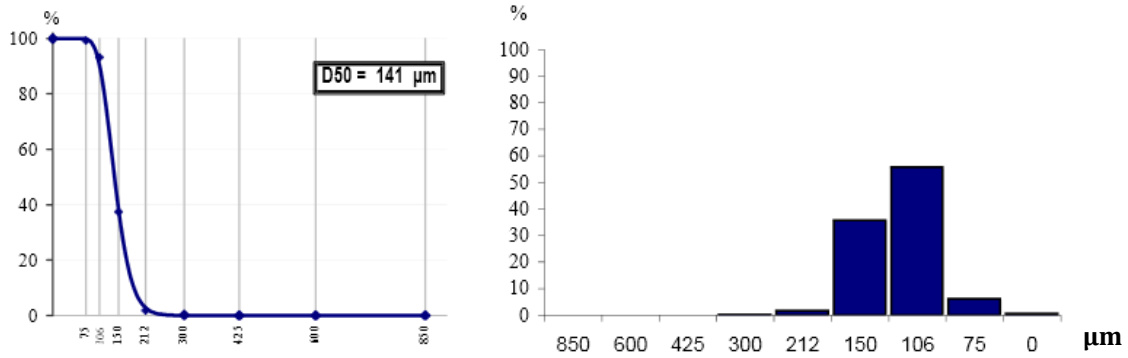


Figure 3.17. Courbe de refus cumulés (à gauche) et histogramme (à droite) pour BR37.

c. *NE34*

Le sable Sibelco NE34 donne une perméabilité estimée proche de ***k*** = *20 Darcy*. La Figure 3.18 montre la courbe de refus cumulés pour ce sable.

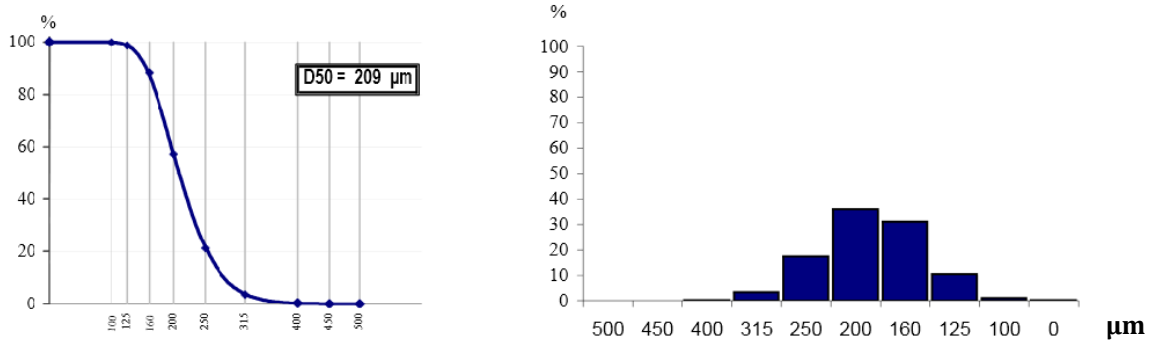


Figure 3.18. Courbe de refus cumulés (à gauche) et histogramme (à droite) pour NE34.

d. MI 0,3/0,6

Le sable Sibelco MI 0,3/0,6 donne une perméabilité estimée proche de ***k*** = *100 Darcy*. La Figure 3.19 montre la courbe de refus cumulés pour ce sable.

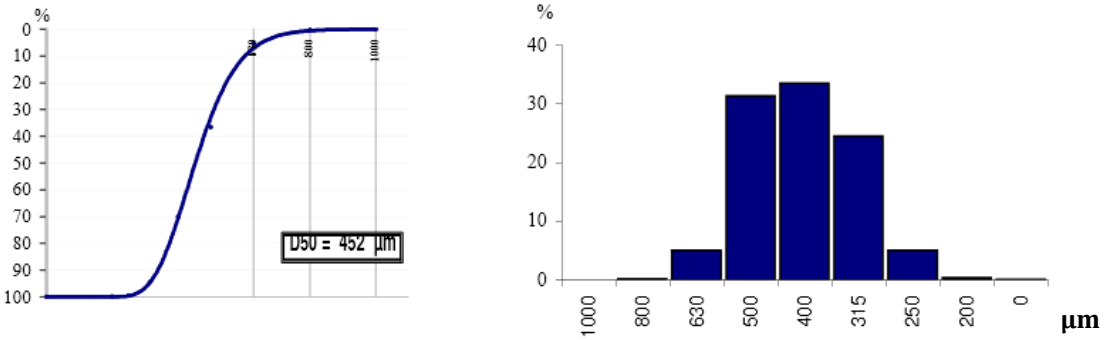


Figure 3.19. Courbe de refus cumulés (à gauche) et histogramme (à droite) pour MI 0,3/0,6.

2.2.2. Tensioactifs

On a utilisé deux types de tensioactifs pour réaliser les expériences sur colonne. Le Triton® X-100 et le sucrose laurate C-1216. Les tensioactifs ont été utilisés comme on les a reçus, sans traitement supplémentaire. Les solutions sont préparées avec de l'eau déminéralisée.

2.2.3. Air

Le gaz utilisé est de l'air industriel, fourni par Air Liquide.

2.3. Protocole expérimental

2.3.1. Fabrication de la colonne

On verse le sable très lentement dans la colonne à l'aide d'un entonnoir, et on frappe doucement en même temps la colonne avec un marteau en caoutchouc. De cette façon on tasse le sable et on évite la formation de couches de caractéristiques physiques différentes. Quand la hauteur du milieu poreux est un peu supérieure à *40 cm*, on ferme la colonne avec le deuxième bouchon en on fixe l'ensemble à l'aide des quatre tirants.

2.3.2. Saturation de la colonne

La colonne est d'abord connectée à la pompe à vide pendant une heure afin d'extraire l'air piégé dans les pores. Il est fondamental de garantir l'étanchéité de la colonne à travers les raccords et les joints afin d'éviter l'entrée d'air pendant cette étape. On effectue la pesée de la colonne à vide. Ensuite on prépare de l'eau dégazée à l'aide d'un réservoir hermétique connecté à la pompe à vide et d'un système d'agitation magnétique. On dégaze l'eau pendant un temps qui dépend du volume, jusqu'à ce qu'à la sortie de la pompe le débit de gaz soit très faible.

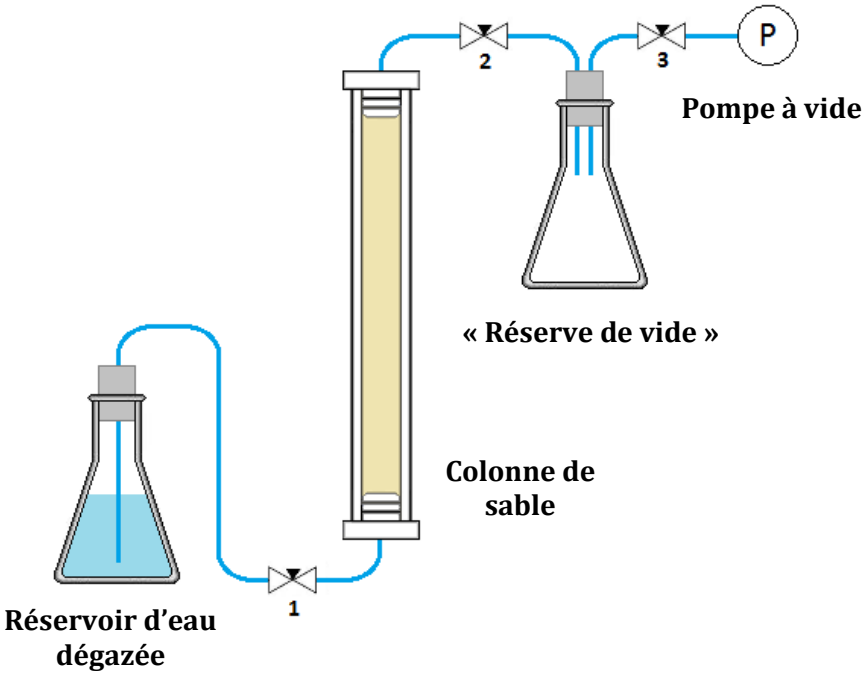


Figure 3.20. Schéma du montage utilisé pour saturer la colonne de sable.

L'étape suivante consiste à placer la colonne verticalement et à la connecter au récipient d'eau dégazée à travers la vanne inférieure (1). La Figure 3.20 montre le schéma du montage utilisé pour cette étape. La vanne supérieure de la colonne (2) est connectée à un « réservoir de vide » (mis au préalable sous vide), qui est relié en même temps à la pompe à vide à travers la vanne (3). La vanne (1) est ensuite ouverte et l'eau commence

à monter tout au long de la colonne en la saturant. Si au bout d'un certain temps l'eau ne monte plus, la vanne (2) est ouverte à nouveau de manière à connecter la colonne à la « réserve de vide » et prolonger l'ascension de l'eau. La réserve est remise sous vide si nécessaire. A la fin de cette étape la pesée de la colonne est effectuée.

2.3.3. Calcul de la porosité et du volume de pores

Le volume de pore du milieu poreux est égal au volume d'eau V_w contenu dans la colonne divisé par le volume total du milieu poreux. La porosité ϕ est donc donnée par l'expression suivante (3.2) :

$$\phi = \frac{V_w}{\frac{\pi D_{int}^2}{4} L} \tag{3.2}$$

où D_{int} est le diamètre interne de la colonne et L est sa longueur.

2.3.4. Mesure de la perméabilité k

La perméabilité intrinsèque k est ensuite calculée à l'aide de la loi de Darcy monophasique (3.3) :

$$u = -\frac{k}{\mu} (\nabla P - \rho g) \tag{3.3}$$

où u est la vitesse de Darcy, μ et ρ sont la viscosité et la masse volumique de l'eau respectivement, P est la pression et g est l'accélération de la pesanteur. La perméabilité k du milieu peut être calculée en mesurant le débit d'eau et la chute de pression à travers le milieu poreux. En position horizontale 1-D, le terme correspondant à l'accélération de la pesanteur peut être négligé et l'équation (3.3) simplifiée (3.4) :

$$\frac{Q}{A} = \frac{k}{\mu} \frac{\Delta P}{L} \tag{3.4}$$

où Q est le débit d'eau, ΔP est la perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne, séparées par une distance L, et A est l'aire transversale.

2.3.5. Saturation en solution de tensioactif et calcul de l'adsorption

L'adsorption des molécules tensioactives dans la matrice solide est un aspect important dont il faut tenir compte pour dimensionner le processus de remédiation. En fait, la perte de tensioactif réduit l'efficacité du traitement et le rend plus onéreux, pouvant mettre en cause la viabilité économique. Pour quantifier ce paramètre et obtenir la

masse de tensioactif adsorbé par gramme de sable, on utilise le concept de temps de séjour. Un test de traçage et un test d'adsorption seront ensuite réalisés et modélisés.

a. Distribution de Temps de Séjour (DTS)

Des éléments fluides suivant différents parcours à travers le milieu poreux prennent différents temps pour traverser la colonne. La distribution de ces temps pour le fluide à la sortie de la colonne s'appelle Distribution de Temps de Séjour $\boldsymbol{E(t)}$ (en abrégé DTS ou RTD, « *Residence Time Distribution* ») et est représenté dans la Figure 3.21. Les conditions de normalisation de la courbe impliquent que l'aire de la surface délimitée par $\boldsymbol{E(t)}$ soit égale à l'unité (3.5).

$$\int_0^\infty \boldsymbol{E\,dt} = \mathbf{1} \qquad \textbf{(3.5)}$$

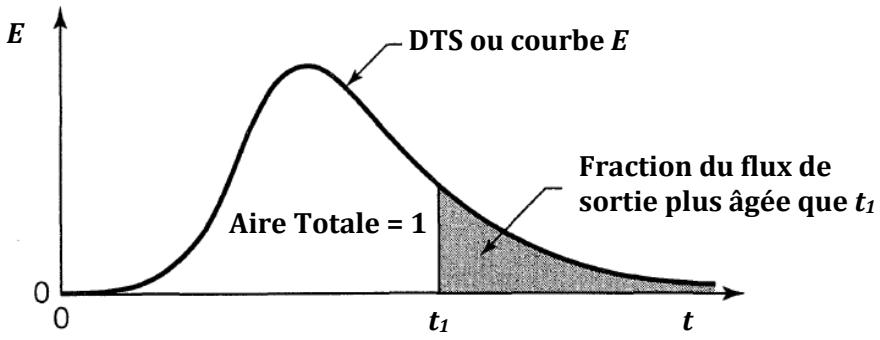


Figure 3.21. Distribution de Temps de Séjour pour un fluide traversant un réacteur (adaptée de Levenspiel, 1999).

En intégrant la courbe $\boldsymbol{E}$ on peut obtenir des différentes informations :

Fraction du flux de sortie moins âgée que $\boldsymbol{t_1}$: $\int_0^{t1} \boldsymbol{E\,dt}$ **(3.6)**

Fraction du flux de sortie plus âgée que $\boldsymbol{t_1}$: $\int_{t1}^\infty \boldsymbol{E\,dt} = \mathbf{1} - \int_0^{t1} \boldsymbol{E\,dt}$ **(3.7)**

La DTS est essentielle pour caractériser le flux non idéal. Il y a plusieurs méthodes expérimentales pour l'obtenir, dont la plus simple consiste à utiliser un traceur non réactif. Il s'agit de molécules inertes, non réactives ayant un comportement identique à celui des molécules d'eau. D'autre part, ces molécules sont identifiables à l'aide de propriétés physiques caractéristiques, telles que la fluorescence, la charge électrique ou la radioactivité.

On utilisera l'injection étalon d'un traceur (Figure 3.22). On considère un débit ***Q*** traversant une colonne dont le volume de pores est ***VP***. On suppose le fluide incompressible. À l'instant ***t*** = *0* la concentration de traceur dans le fluide d'entrée passe brusquement de *0* à C_0.

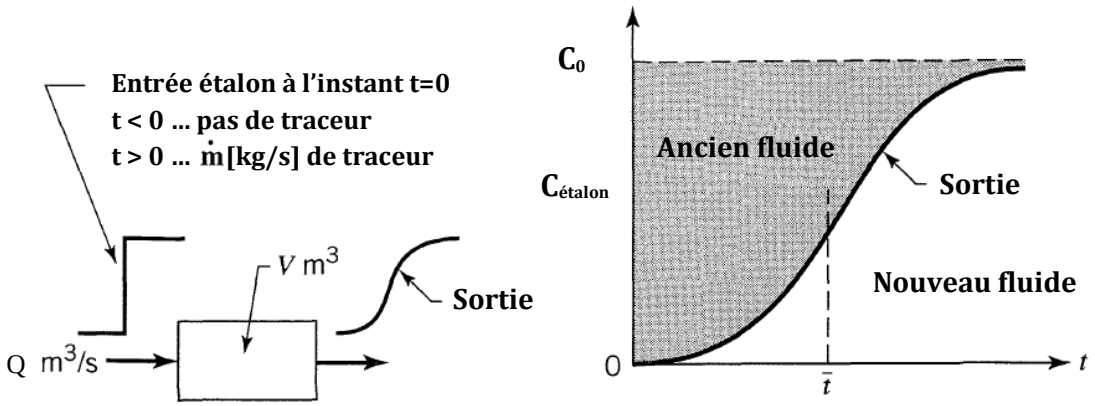


Figure 3.22. Information obtenue à partir d'une entrée étalon avec un traceur (adaptée de Levenspiel 1999).

Soit ***C*** la concentration de traceur à la sortie de la colonne. On peut représenter la réponse avec la courbe $F = C/C_0$ en fonction du temps (Figure 3.23).

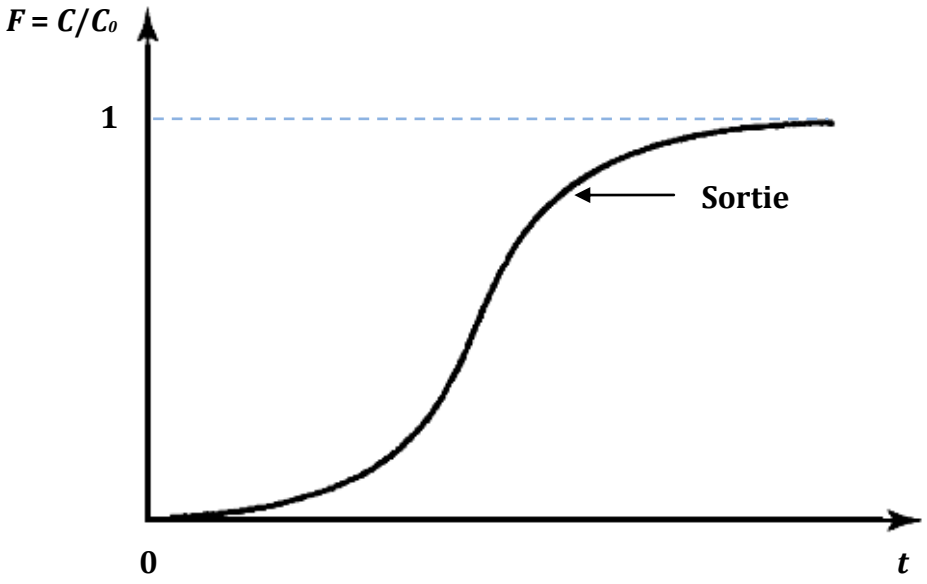


Figure 3.23. Réponse à une injection échelon de traceur. Courbe *F*.

À un instant $\boldsymbol{t}$ après l'injection échelon, la fraction de débit marquée est celle qui a un temps de séjour plus petit que $\boldsymbol{t}$, soit $\int_0^t \boldsymbol{E}(t)dt$, d'où la relation (3.8) :

$$\boldsymbol{E} = \frac{\boldsymbol{dF}}{\boldsymbol{dt}} \tag{3.8}$$

avec la fonction $\boldsymbol{F}$ définie de la façon suivante (3.9) :

$$\boldsymbol{F} = \int_0^t \boldsymbol{E}(\boldsymbol{t})\boldsymbol{dt} \tag{3.9}$$

b. Test de traçage

Protocole

On utilise comme traceur une solution saline de NaCl ($\boldsymbol{C_0}$ = *0,2 g/L*), dont la propriété physique mesurée est la conductivité électrique à l'aide d'un pH-conductimètre (Orion 4Star, Thermo Scientific). On réalise la courbe d'étalonnage pour obtenir la conductivité électrique ($\mu S/cm$) en fonction de la concentration en sel $\boldsymbol{C}$.

On impose un débit $\boldsymbol{Q}$ = *4 mL/min* dans la colonne et à l'instant $\boldsymbol{t}$ = *0* on commence l'injection de solution saline. Comme on a calculé le ***VP*** de la colonne précédemment, on peut calculer le temps de passage du premier ***VP*** pour ce débit, et on prélève l'effluent entre *10 minutes* avant et *10 minutes* après ce temps de passage. On prélève toutes les *30 secondes*, c'est-à-dire que chaque flacon d'effluent contient *2 mL* de solution saline.

La concentration saline de chaque échantillon peut être calculée à l'aide de la courbe d'étalonnage. Les données sont rendues adimensionnelles en divisant les concentrations en sel obtenues par la concentration $\boldsymbol{C_0}$ de la solution injectée. On obtient la courbe $\boldsymbol{C/C_0}$ en fonction du temps.

Modélisation (Ogata et Banks, 1961 ; Charbeneau, 2000 ; Bear, 1979)

On utilise l'équation de transport pour les espèces chimiques conservatives (pas de sources ni de puits) simplifiée pour un flux unidimensionnel (3.10) :

$$\frac{\partial \boldsymbol{C}}{\partial \boldsymbol{t}} + \boldsymbol{v}\,\frac{\partial \boldsymbol{C}}{\partial \boldsymbol{x}} = \boldsymbol{D}\,\frac{\partial^2 \boldsymbol{C}}{\partial \boldsymbol{x}^2} \tag{3.10}$$

où $\boldsymbol{C}$ est la concentration de traceur, $\boldsymbol{x}$ est la variable qui suit la longueur de la colonne, $\boldsymbol{t}$ est le temps, $\boldsymbol{v}$ la vitesse d'écoulement et $\boldsymbol{D}$ est le coefficient de dispersion et diffusion. On peut utiliser la relation suivante (3.11) :

$$\boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{v} = \boldsymbol{D} \tag{3.11}$$

où $\boldsymbol{\alpha}$ est le coefficient de dispersion intrinsèque ou dispersivité. Les conditions imposées pour résoudre cette équation sont les suivantes :

- A $\boldsymbol{t} = 0$ la colonne est totalement saturée en eau pure : $\boldsymbol{C}$ (**x**, 0) = *0*.
- On impose une condition à la limite de type Dirichlet à l'entrée de la colonne. On assume que la concentration de traceur du fluide injecté est constante : $\boldsymbol{C}\ (0, \boldsymbol{t}) = \boldsymbol{C_0}$.
- $\frac{dC}{dx} = 0$ pour x = ∞.

La solution analytique de l'équation 3.10 avec les conditions aux limites décrites ci-dessus s'écrit (Ogata et Banks, 1961)(3.12) :

$$\frac{\boldsymbol{C}}{\boldsymbol{C_0}} = \frac{1}{2}\left(erfc\left(\frac{\boldsymbol{x}-\boldsymbol{vt}}{\sqrt{4\boldsymbol{\alpha vt}}}\right) + exp\left(\frac{\boldsymbol{xv}}{\boldsymbol{D}}\right) erfc\left(\frac{\boldsymbol{x}+\boldsymbol{vt}}{\sqrt{4\boldsymbol{\alpha vt}}}\right)\right) \qquad \textbf{(3.12)}$$

Quand $\boldsymbol{x}/\boldsymbol{\alpha}$ est grand (> *500*), le deuxième élément de (3.12) peut être négligé. Ainsi on obtient l'expression (3.13) :

$$f(\boldsymbol{t}) = \frac{\boldsymbol{C}}{\boldsymbol{C_0}} \simeq \frac{1}{2} erfc\left(\frac{\boldsymbol{x}-\boldsymbol{vt}}{\sqrt{4\boldsymbol{\alpha vt}}}\right) \qquad \textbf{(3.13)}$$

Les données expérimentales peuvent être ajustées à ce modèle théorique, en utilisant l'équation (3.13). On cherche le paramètre $\boldsymbol{\alpha}$ et la vitesse $\boldsymbol{v}$ avec un calage par moindres carrés.

c. Test d'adsorption de tensioactif. Protocole et modélisation

Protocole

Pour nos expériences on utilise une solution de Triton® X-100 avec une concentration $\boldsymbol{C_0}$ de *10* CMC ($\boldsymbol{C_0} = 1{,}5\ g/L$). La concentration en tensioactif dans les effluents est mesurée à l'aide de la concentration de Carbone Organique Total (COT, HiperToc Thermo Scientific). Cette technique donne la valeur des aires des pics, qui sont proportionnelles à la concentration totale de carbone organique. On réalise d'abord la courbe d'étalonnage pour des différentes valeurs de concentration du tensioactif.

On impose un débit $\boldsymbol{Q} = 4\ mL/min$ d'eau dans la colonne et à l'instant $\boldsymbol{t} = 0$ on commence l'injection de la solution de tensioactif. Comme on connaît le ***VP*** de la colonne, le temps de passage du premier **VP** peut être calculé. Ainsi, on commence à prélever les effluents *10 minutes* avant ce temps de passage. Comme à priori on ne connaît pas quelle sera la forme de la courbe d'adsorption pour le Triton® X-100 et pour ce débit, on prélève les effluents pendant un temps plus long que dans le cas du traceur. On prélève toutes les *60 s* (chaque flacon d'effluent contient *4 mL*) et ceci pendant *150 min*.

On doit diluer les échantillons d'effluent parce que le volume minimal nécessaire pour faire l'analyse COT est égal à *10 mL*. On rajoute *16 mL* pour avoir *20 mL* de solution dans chaque tube. En tenant compte de la dilution, on peut mesurer l'aire réelle du pic de chaque tube. À l'aide de la courbe d'étalonnage on peut calculer la concentration de tensioactif de chaque échantillon. On adimensionne les données en divisant les concentrations par la concentration de la solution injectée, et on obtient la courbe $\boldsymbol{C/C_0}$ en fonction du temps.

Modélisation

On modélise ce phénomène avec la même équation que pour les essais avec le traceur (3.10), mais on utilise le concept de vitesse réelle moyenne du polluant $\boldsymbol{v_p}$. Elle est liée à la vitesse $\boldsymbol{v}$ obtenue avec l'essai du traçage en prenant en compte un coefficient de retard $\boldsymbol{R}$ (3.14) :

$$\boldsymbol{R = \frac{v}{v_p}} \qquad \textbf{(3.14)}$$

Ainsi, l'équation que l'on doit résoudre est la suivante (3.15) :

$$\boldsymbol{\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{v}{R}\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{v\,\alpha}{R}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}} \qquad \textbf{(3.15)}$$

Si on utilise l'équation (3.14) pour introduire le concept de vitesse du polluant $\boldsymbol{v_p}$ dans l'équation (3.15), on obtient l'équation (3.16) :

$$\boldsymbol{\frac{\partial C}{\partial t} + v_p\frac{\partial C}{\partial x} = v_p\,\alpha\,\frac{\partial^2 C}{\partial x^2}} \qquad \textbf{(3.16)}$$

Et la solution simplifiée est donnée par l'équation (3.17) :

$$f(\boldsymbol{t}) = \boldsymbol{\frac{C}{C_0}} = \frac{1}{2}\,erfc\left(\boldsymbol{\frac{x - v_p t}{\sqrt{4\alpha v_p t}}}\right) \qquad \textbf{(3.17)}$$

La courbe expérimentale $\boldsymbol{C/C_0}$ peut être ajustée à ce modèle théorique en utilisant l'équation (3.17). On utilise la valeur du paramètre $\boldsymbol{\alpha}$ obtenue avec le test de traçage, et on cherche la vitesse du polluant $\boldsymbol{v_p}$ avec un calage par moindres carrés. Ensuite on obtient, à l'aide de l'équation (3.14) le facteur de retard $\boldsymbol{R}$.

d. Comparaison des tests et calcul de l'adsorption de tensioactif

Pour calculer la quantité de tensioactif adsorbé, on compare les courbes C/C_0 du traceur et d'adsorption. La distance existante entre les deux courbes (en secondes) peut être utilisée pour calculer, avec le débit imposé, le volume de solution dont les molécules de tensioactif ont été adsorbées. La concentration de la solution de tensioactif étant connue (*10* fois la CMC), la masse totale de tensioactif adsorbé et le taux d'adsorption (c'est-à-dire, la masse de tensioactif adsorbé par gramme de sable) peuvent être calculés.

2.3.6. Co-injection de gaz et solution de tensioactif

La solution de tensioactif et l'air sont co-injectés directement dans la colonne saturée à des débits fixes. Le débit total est fixé à *3* cm^3/min (en conditions normales), et la proportion liquide/gaz est modifiée afin d'obtenir différentes qualités de mousse. Le Tableau 3.4 montre les débits de gaz et de liquide utilisés pour les différentes expériences sur colonne. La perte de charge et la récupération de liquide à la sortie de la colonne sont mesurées continument.

Tableau 3.4. Débits de gaz Q_g et de liquide Q_w en fonction de la qualité de la mousse Q_{mousse} utilisés pour les différentes expériences sur colonne.

Q_{mousse} (%)	Q_g (mL_n/min)	Q_w (mL/min)
85	*2,55*	*0,45*
95	*2,85*	*0,15*
99	*2,97*	*0,03*

3. Grande échelle. Expériences sur pilotes 2-D

L'objectif des expériences sur pilote 2-D est de montrer de façon visuelle que le lavage des sols avec des tensioactifs combiné avec la génération de mousse *in situ* permettent d'améliorer l'efficacité de balayage des aquifères hétérogènes, réduisant de cette façon le coût et le temps nécessaires pour la remédiation.

Les différentes étapes de ce processus de dépollution sont réalisés sur deux pilotes bicouches simulant la zone saturée d'un aquifère. Des tests de traçage permettent de visualiser la forme du front d'avancement du liquide et faire des comparaisons entre l'efficacité de balayage avec et sans de mousse. Ces expériences à l'échelle de laboratoire sont très utiles pour identifier les avantages et inconvénients de la technique et pouvoir la mettre au point avant de passer à l'échelle du terrain.

3.1. Description du montage expérimental

Le montage est composé par le pilote, une pompe péristaltique pour l'injection de liquide (Masterflex L/S Modèle 7524-55, 1,6 - 100RPM 0,1HP, Cole Parmer Thermo Fisher Scientific), un régulateur de débit massique pour l'injection du gaz (El-Flow Bronkhorst, modèle F201CV *0-20 ml_n/min*) et des colonnes de liquide pour mesurer les pressions d'entrée et de sortie.

Deux pilotes ont été réalisés, conservant toutes les dimensions égales sauf la largeur : *0,02 m* d'épaisseur, *0,50 m* de hauteur, *0,44 m* de largeur pour le *Pilote 1* et *0,95 m* pour le *Pilote 2*. Le but de faire un deuxième pilote est d'observer l'évolution des fronts d'avancement des fluides sur une longueur plus grande. L'épaisseur des parois en verre, collées avec du silicone, est *0,8 cm*. La Figure 3.24 et la Figure 3.25 montrent les schémas du *Pilote 1* et du *Pilote 2* respectivement.

Le bloc de sable hétérogène est constitué de deux couches de différentes perméabilités, la plus perméable étant celle du bas. Le pilote est ouvert à l'atmosphère, c'est-à-dire qu'il y a une surface libre. Il y a 8 piquages d'injection et 8 piquages d'aspiration, connectés à la pompe péristaltique. Ils sont fixés grâce à un support métallique que l'on glisse entre les parois en verre, comme présenté dans la Figure 3.24 et la Figure 3.25. Le *Pilote 2* a quatre piquages supplémentaires, marqués dans la Figure 3.25 avec des traits rouges (piquages a, a', b et b'). Ils sont placés deux à deux entre les piquages 2 et 3 et 6 et 7, et serviront à mesurer les pressions à l'aide des colonnes de liquide sans avoir à réduire le nombre de piquages destinés à l'injection et aspiration de liquide, comme c'est le cas dans le *Pilote 1* (où on utilise le piquage numéro 5 pour mesurer la perte de charge). Dans le *Pilote 1* une grille sur le verre (mesure *3* x *3 cm*) a été dessinée afin de faciliter la visualisation lors des différentes expériences.

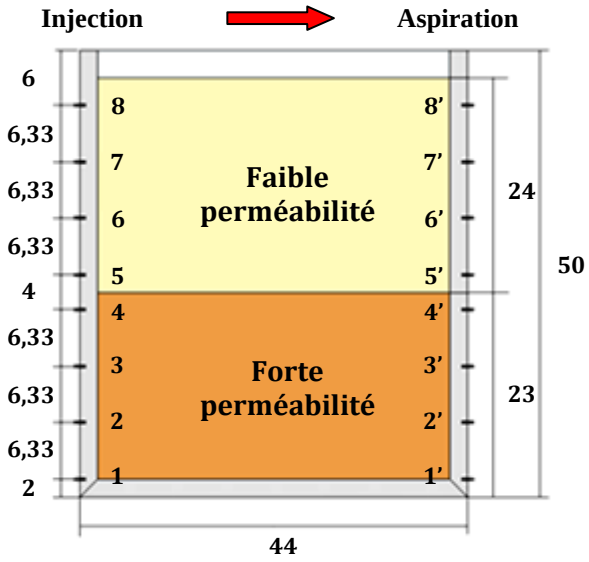


Figure 3.24. Schéma du *Pilote 1*. Les piquages d'injection sont numérotés 1 à 8, et les piquages d'aspiration 1' à 8'. Le sens de l'écoulement est marqué par la flèche rouge. Les dimensions sont données en centimètres.

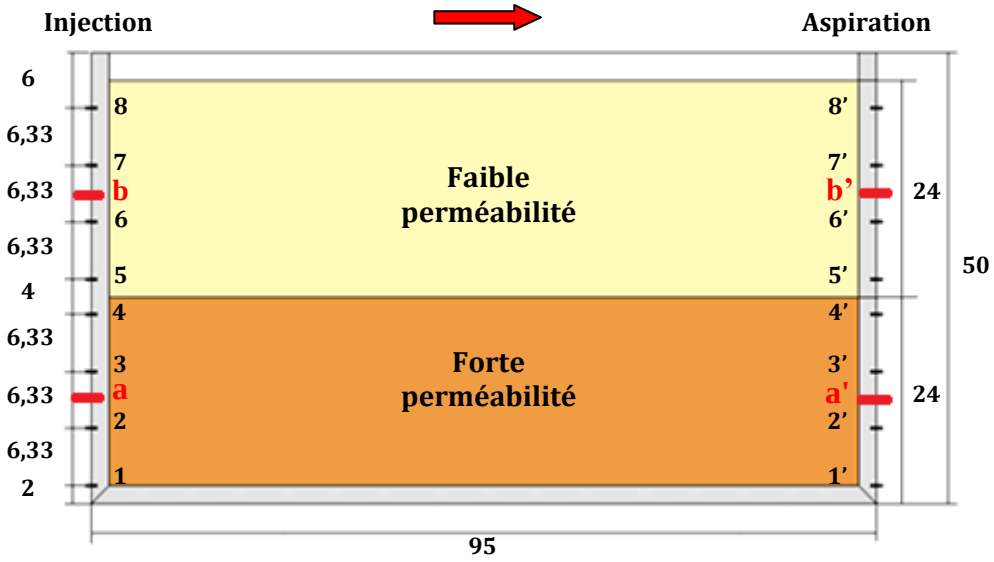


Figure 3.25. Schéma du *Pilote 2*. Les piquages 1 à 8 sont utilisés pour l'injection des fluides, les piquages 1' à 8' pour l'aspiration et les piquages a, a', b et b' (marqués en rouge) sont utilisés pour mesurer la perte de charge dans chaque couche. Le sens de l'écoulement est marqué par la flèche rouge. Les dimensions sont données en centimètres.

3.2. Matériaux et fluides

3.2.1. Milieux poreux

a. BR37

La couche la moins perméable est formée par le sable Sibelco BR37, qui donne une perméabilité estimée proche de *10 Darcy*. Tous les sables Sibelco utilisés dans les expériences sont composés par SiO_2 (> *99 %*) et la densité réelle est égale à *2,65 g/cm³*. La Figure 3.26 montre la courbe de refus cumulés pour ce sable.

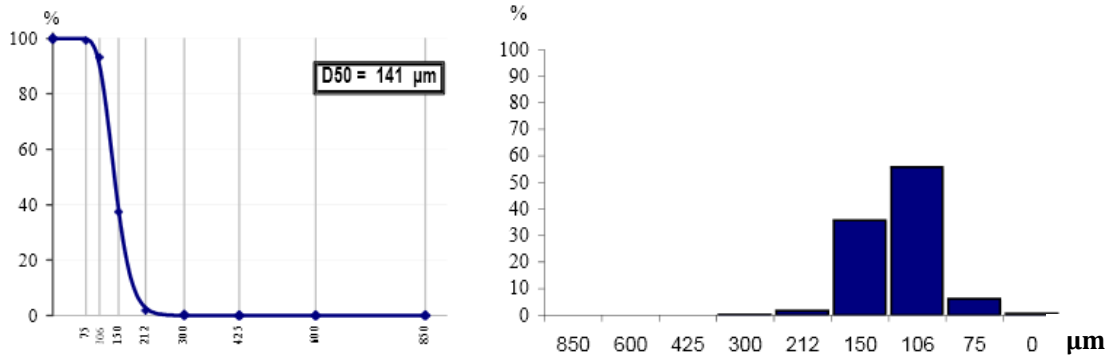


Figure 3.26. Courbe de refus cumulés (à gauche) et histogramme (à droite) pour BR37.

b. MI 0,3/0,6

La couche la plus perméable est formée par le sable Sibelco MI 0,3/0,6, qui donne une perméabilité estimée proche de *100 Darcy*. La Figure 3.27 montre la courbe de refus cumulés pour ce sable.

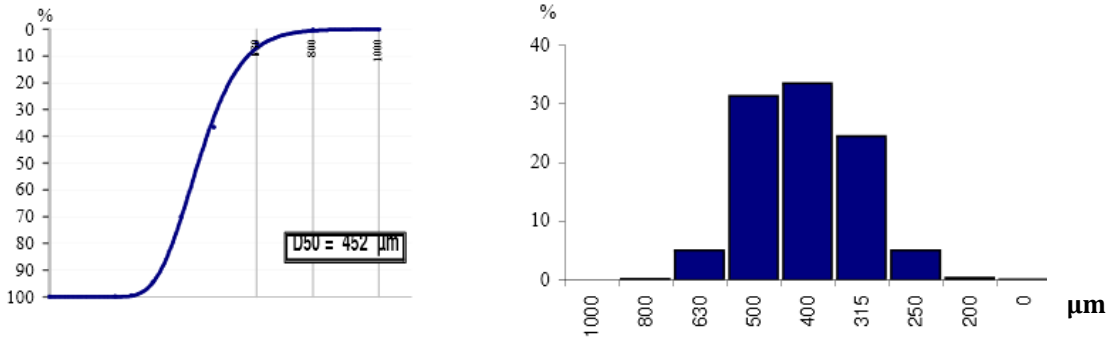


Figure 3.27. Courbe de refus cumulés (à gauche) et histogramme (à droite) pour MI 0,3/0,6.

3.2.2. Tensioactifs

Pour réaliser les tests sur pilotes 2-D le tensioactif utilisé est le Triton® X-100 (Sigma Aldrich). Il s'agit d'un liquide incolore visqueux. La CMC est égale à *150 mg/L*.

3.2.3. Gaz

Comme dans les tests sur colonne, le gaz utilisé est de l'air industriel, fourni par Air Liquide.

3.3. Protocole expérimental

3.3.1. Remplissage du pilote

Le pilote est rempli de sable d'une façon différente de celle utilisée pour les tests sur colonne. D'abord, les parois en verre sont nettoyées à l'acétone afin d'éliminer les possibles restes de silicone utilisé pour le collage des verres. Ensuite, le pilote est rempli avec de l'eau (avec la pompe péristaltique en mode injection seulement), et quand la couche d'eau libre atteint environ *5 cm* de hauteur, on commence à verser le sable lentement à l'aide d'un entonnoir. Pour éviter que l'air reste piégé entre les grains de sable, on tape doucement les parois avec un marteau en caoutchouc et on mixe avec une tige métallique. On continue ce processus jusqu'à ce que l'on atteigne la moitié de la hauteur (environ *24 cm*), ensuite, on change le type de sable et on remplit jusqu'à avoir une hauteur totale égale d'environ *48 cm*.

Pendant cette étape la porosité $\boldsymbol{\phi}$ et le volume de pores ***VP*** de chaque couche peuvent être calculés. On connaît la masse de sable utilisée pour remplir chaque partie ainsi que la masse volumique (*2,65 g/cm*^{3}). Ainsi, on calcule le volume occupé par les grains de sable, et connaissant le volume total on obtient le volume de pores.

3.3.2. Test de traçage. Estimation de la perméabilité

Cette expérience correspond à la première phase du processus de remédiation, où les couches les plus perméables sont dépolluées à l'aide de la solution de tensioactif.

Afin d'estimer la perméabilité du milieu poreux, un test avec un traceur coloré (erioglaucine A, Sigma Aldrich) est réalisé. Pendant ce test la pompe péristaltique travaille en circuit fermé. En effet, les débits d'aspiration et d'injection sont légèrement différents, ce qui peut conduire à une désaturation du pilote ou à l'apparition d'une couche d'eau libre si le circuit est ouvert. Des photos du front d'avancement pour des différents temps sont prises, qui seront ensuite utilisées pour modéliser ce test à l'aide du logiciel MODFLOW et MT3D et connaître ainsi la perméabilité de chaque région. Cette étape sera expliquée en détail dans les Chapitres 4 et 5.

On mesure la perte de charge à l'aide des colonnes de liquide (les piquages en position numéro 5 sont utilisés dans le cas du *Pilote 1*, et pour le *Pilote 2* la perte de charge est mesurée en utilisant les quatre piquages prévus à cet effet).

Le montage présenté dans la Figure 3.28 est utilisé pour mesurer de façon plus précise le débit (étant donné que dans une pompe péristaltique celui-ci varie en fonction de l'usure des tuyaux et peut être différent du débit imposé). Un volume de liquide coloré avec du traceur est en contact avec du liquide non marqué, séparés par une petite bulle de gaz afin d'éviter la diffusion de traceur, qui créerait une zone de transition et empêcherait une mesure correcte de la position de l'interface. Ensuite le déplacement de l'interface en fonction du temps est mesuré. Comme le diamètre des tuyaux est connu (*2,5 mm*), le débit réel donné par la pompe peut être calculé.

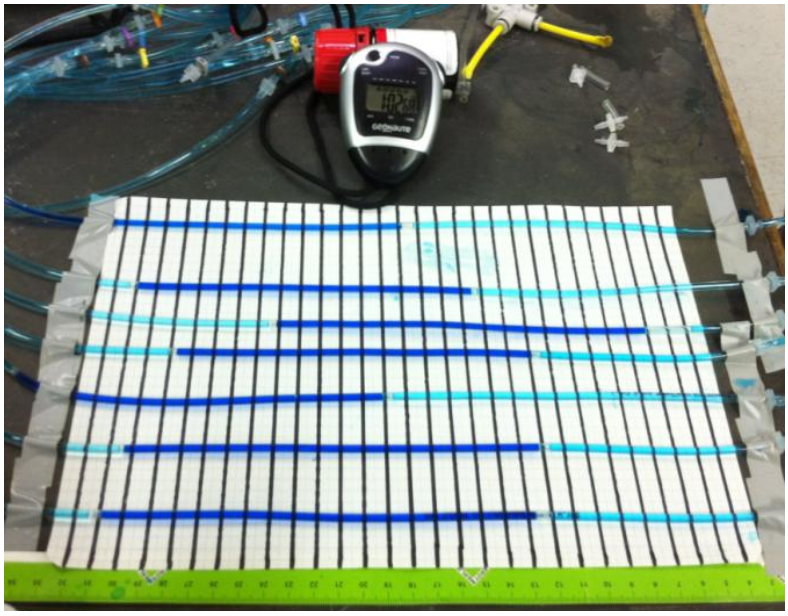


Figure 3.28. Montage utilisé pour la mesure du débit donné par la pompe péristaltique.

3.3.3. Co-injection solution de tensioactif et du gaz

Cette expérience correspond au deuxième volet du processus de remédiation, où l'objectif est de générer de la mousse *in situ* dans la couche la plus perméable (qui a déjà été dépolluée dans la phase précédente), afin de la bloquer et pouvoir ensuite accéder à la couche la moins perméable avec les liquides pour la remédiation.

D'abord plusieurs volumes de pore (environ *2*) de solution de tensioactif (Triton® X-100, concentration égale à *10* fois la CMC) sont injectés afin de saturer la capacité d'adsorption de molécules par le sable. L'injection de solution de tensioactif permet en même temps de déplacer le colorant qui reste dans le pilote (surtout dans la couche supérieure, à faible ***k***) issu du test de traçage précédent. La solution de tensioactif circule préférentiellement à travers la couche inférieure (à forte perméabilité), mais l'objectif est de générer de la mousse *in situ* dans cette partie et pas dans la couche peu perméable. La solution de tensioactif et l'air sont ensuite co-injectés directement dans la couche la plus perméable (à travers le piquage numéro 1) à un débit fixe égal à *16,75* mL_n/min et pour le liquide égal à *2 mL/min* (ce qui donne une qualité de mousse d'environ *90 %*).

3.3.4. Réinjection de solution de tensioactif

Cette expérience correspond à la dernière phase du processus de remédiation. Comme les couches les plus perméables ont été d'abord dépolluées et ensuite bloquées par de la mousse, une fraction plus grande de la solution de tensioactif injectée s'écoule à travers les strates les moins perméables, contenant encore des polluants, qui sont maintenant accessibles.

Après le test de co-injection, de la solution de tensioactif est réinjectée dans le pilote. Le débit total de liquide est mesuré à l'aide du montage présenté dans la Figure 3.28. Dans ce test, la pompe péristaltique fonctionne en circuit ouvert, ce qui peut conduire au développement d'une couche d'eau libre en surface ou à l'assèchement de la partie supérieure du milieu poreux si les débits d'injection et d'aspiration ne sont pas identiques. Un pulse de colorant bleu est utilisé pour visualiser la forme du nouveau front d'avancement du liquide.

L'objectif de ce test est de montrer que la présence d'une région bloquée avec de la mousse dans la couche à forte perméabilité améliore l'efficacité du balayage dans la couche peu perméable. De cette façon la couche peu perméable est balayée plus rapidement, en réduisant la quantité de tensioactif nécessaire pour le processus de dépollution. La position des fronts d'avancement de liquide en fonction du temps sera utilisée pour faire de la simulation numérique avec MODFLOW et MT3D. Ainsi, la perméabilité à l'eau de la zone occupée par de la mousse pourra être estimée et ensuite comparée avec celle obtenue pendant le premier test de traçage.

Chapitre 4

Résultats et discussion

1. Moussabilité. Choix du tensioactif

1.1. Mesure de la Concentration Micellaire Critique des tensioactifs

La tension superficielle du Sucrose Laurate (C-1216) et du biotensioactif JBR425 (rhamnolipide) pour différentes concentrations a été mesurée à l'aide du goniomètre Tracker-Teclis. La Figure 4.1 montre les résultats obtenus pour le laurate de saccharose. On considère pour nos expériences que la CMC est égale à *250 mg/L*.

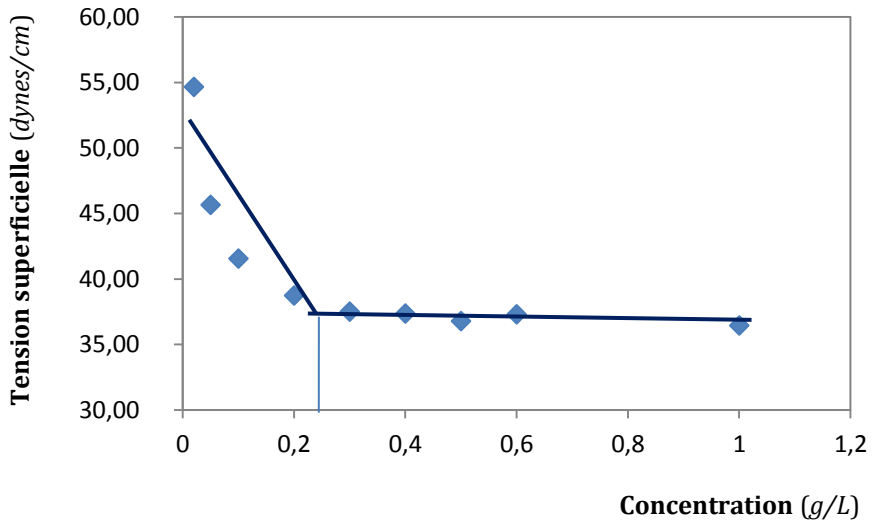


Figure 4.1. Tension superficielle en fonction de la concentration pour le sucroester laurate de saccharose (C-1216).

La Figure 4.2 montre les résultats obtenus pour le rhamnolipide. On considère pour nos expériences que la CMC est égale à *40 mg/L*.

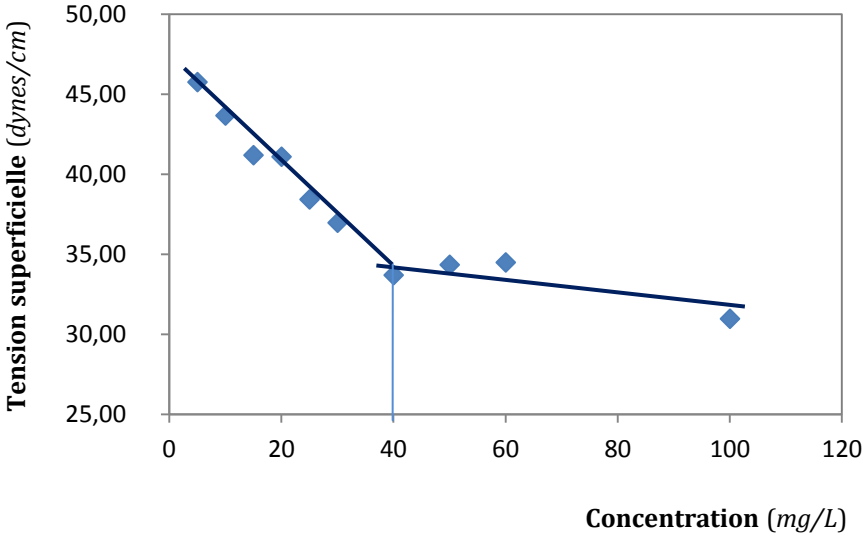


Figure 4.2. Tension superficielle en fonction de la concentration pour le rhamnolipide (JBR425).

1.2. Mesure du temps de demi-vie

Les temps de demi-vie des mousses générées à l'aide des différents tensioactifs ont été mesurés en utilisant le dispositif expérimental décrit au Chapitre 3, section 1.4.

1.2.1. Triton X-100

Nous avons reporté dans la Figure 4.3 l'évolution de la hauteur de la colonne de mousse en fonction du temps. Plusieurs expériences ont été réalisées pour différentes valeurs de la CMC (*10* fois et *20* fois). Les résultats obtenus sont commentés ci-dessous :

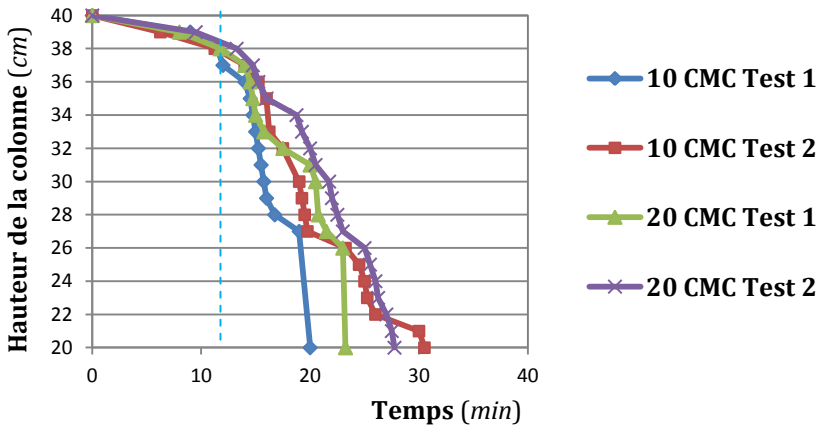


Figure 4.3. Hauteur de la colonne de mousse en fonction du temps pour le Triton® X-100. La ligne bleue pointillée délimite les deux zones des courbes observées.

Les temps de demi-vie dépendent peu de la concentration en tensioactif et ils se situent aux alentours de *25 ± 5 minutes*.

Les courbes peuvent se diviser en deux parties principales (délimitées par une ligne pointillée bleue dans la Figure 4.3). Une première partie correspondant aux temps courts montre une colonne de mousse relativement stable. Ensuite cette colonne se déstabilise assez rapidement sous l'effet du collapse des films minces qui provoque un effet d'avalanche durant lequel un grand volume de mousse s'effondre rapidement. Cette deuxième partie de la courbe ne montre pas une très grande répétabilité. On note également des changements de pente caractéristiques du phénomène d'avalanches successives.

1.2.2. Sucrose Laurate

Les résultats obtenus pour ce tensioactif (Figure 4.4) sont assez différents de ceux obtenus avec le Triton® X-100. La hauteur de la colonne de mousse décroit régulièrement pour donner des temps de demi-vie compris entre *180* et *335 minutes*. Contrairement au cas du Triton® X-100 on n'observe pas de phénomènes d'avalanche mais plutôt un phénomène de drainage des films liquides. Comme précédemment, la concentration en tensioactif a peu d'influence sur la stabilité de la mousse dès lors que sa valeur est supérieure à la CMC.

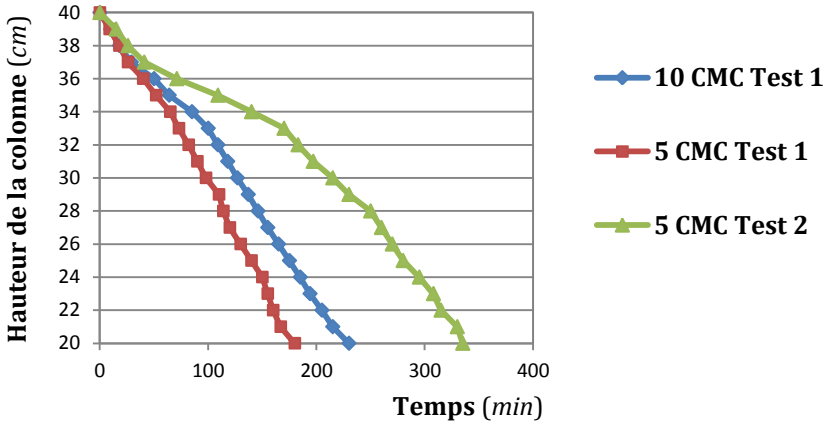


Figure 4.4. Hauteur de la colonne de mousse en fonction du temps pour le Sucrose Laurate.

1.2.3. Rhamnolipide JBR425

Les résultats obtenus pour la stabilité de la mousse hors milieu poreux sont présentés dans la Figure 4.5 :

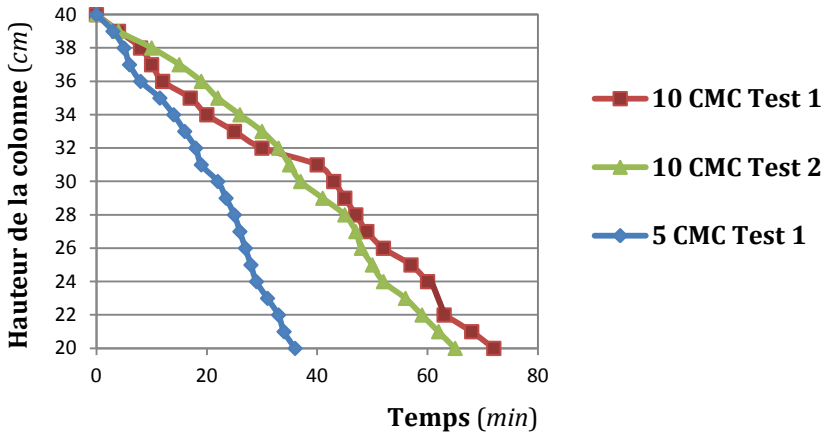


Figure 4.5. Hauteur de la colonne de mousse en fonction du temps pour JBR425.

En terme de répétabilité, les tests avec le biotensioactif JBR425 sont très différents des cas précédents. Le phénomène d'avalanche n'est pas observé pendant les expériences et la hauteur de la colonne de mousse décroit de façon très régulière. Dans ce cas, la concentration de tensioactif joue un rôle dans la stabilité de la colonne de mousse. Pour une concentration égale à *5* fois la CMC le temps de demi-vie est égal à *36 minutes*, et pour une concentration égale à *10* fois la CMC le temps de demi-vie est multiplie par un facteur 2.

Par rapport aux autres tensioactifs utilisés dans cette étude, on obtient une stabilité de la mousse hors milieu poreux plus grande que pour le Triton® X-100 mais plus faible que pour le sucroester.

1.3. Sélection de tensioactifs. Conclusion

Les courbes de hauteur de colonne de mousse en fonction du temps nous donnent une idée de la stabilité de la mousse produite avec chaque type de tensioactif et à des concentrations données. Par rapport au tensioactif classique (Triton® X-100), le laurate de saccharose produit une mousse qui, hors milieu poreux, est beaucoup plus stable même à de plus faibles concentrations en tensioactif. Les rhamnolipides produisent une mousse qui est plus stable que celle du Triton® X-100, mais qui n'est pas comparable à celle du sucroester. En plus, les rhamnolipides sont plus difficiles à obtenir à grande échelle et sont plus couteux, ce qui pourrait être une limitation pour des applications sur le terrain. Ainsi, on retiendra les sucroesters pour continuer nos expériences sur colonne de sable comme tensioactif présentant un bon pouvoir moussant et respectueux de l'environnement, on comparera les résultats avec ceux obtenus pour le Triton® X-100, puisqu'il a déjà été utilisé dans des tests de laboratoire pour la dépollution de sols (Mulligan et Eftekhari, 2003).

Ces résultats, qui ont été obtenus en colonne avec un dispositif expérimental simple, fournissent une information intéressante permettant une première sélection du tensioactif mais ne sont pas directement transposables aux situations en milieu poreux. En effet, la nature même de la mousse en milieu poreux est différente de celle en colonne, où la pression capillaire est d'une autre nature. Le taux de drainage contrôle la vitesse d'amincissement et la rupture des lamelles. En milieu poreux le liquide se draine

sur des distances micrométriques vers d'autres pores, répondant à la pression capillaire. Ce phénomène est à priori plus rapide que celui observé en colonne, où le liquide se draine sur une distance de centimètres par effet de la gravité. De plus, la stabilité de la mousse hors milieu poreux dépend directement de la viscosité du liquide. De la même manière, le phénomène de diffusion sera ralenti par la présence d'une phase solide, et seules les bulles plus petites que la taille du pore fusionnent. Par contre hors milieu poreux ce phénomène est très important et fait que les bulles grossissent, en déstabilisant la mousse. On notera également que la texture de la mousse est très différente en et hors milieu poreux.

Néanmoins, les tests de stabilité de la mousse hors milieu poreux semblent être un moyen rapide de comparer les caractéristiques de la mousse produite en utilisant des différents agents tensioactifs. Par contre, des tests en milieu poreux sont nécessaires pour déterminer si le tensioactif est adapté pour l'application réelle.

2. Échelle locale. Expériences sur colonnes 1-D

L'objectif des expériences sur colonne est d'étudier l'influence du type de tensioactif et de la perméabilité sur la réduction de mobilité de la phase gazeuse à travers la génération de mousse *in situ*. Toutes les expériences ont été réalisées en suivant la même procédure expérimentale. Deux expériences sont décrites en détails (une colonne à faible perméabilité et une autre à plus forte perméabilité) et l'ensemble des résultats obtenus sont récapitulés sous forme de tableau (section 2.3 de ce chapitre).

2.1. Résultats détaillés pour la *Colonne 1*

La *Colonne 1* a été réalisée avec le sable Sibelco BR37 dont le diamètre moyen de grain est de *141 µm*. La longueur de la colonne est $\boldsymbol{L}$ = *0,406 m* (expérience 7 dans le tableau récapitulatif, Tableau 4.2).

2.1.1. Porosité et perméabilité

Après saturation de la colonne, le volume de pore est mesuré par pesée. On obtient un volume de pore $\boldsymbol{VP}$ = *241,42 mL* qui nous donne une porosité $\boldsymbol{\phi}$ = *0,39*.

La perméabilité intrinsèque de la colonne est mesurée à l'aide de la relation débit-pression (Figure 4.6).

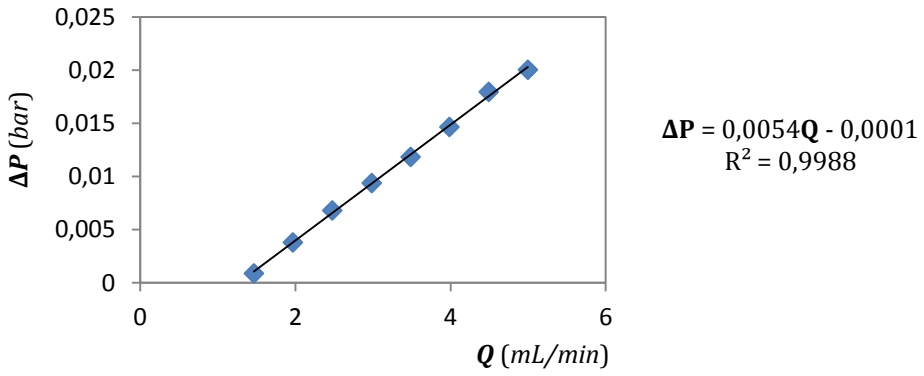


Figure 4.6. Courbe ΔP = f(Q) pour la *Colonne 1*.

Si on compare la fonction obtenue avec l'ajustement linéaire, de forme $\boldsymbol{\Delta P = C \cdot Q - b}$ ($\boldsymbol{b}$ étant le zéro du capteur de pression), avec l'équation (3.4), on obtient la relation suivante (4.1) :

$$\boldsymbol{k = \frac{\mu L}{C A}} \qquad \textbf{(4.1)}$$

Ainsi, la perméabilité intrinsèque $\boldsymbol{k}$ obtenue pour la *Colonne 1* est $\boldsymbol{k}$ = $8{,}23 \cdot 10^{-12}\ m^2$.

La Figure 4.7 représente la perméabilité mesurée pour les différentes expériences sur colonne en fonction du diamètre moyen du grain pour chaque type de milieu poreux utilisé. Les résultats obtenus suivent une loi quadratique, en bon accord avec la relation de Kozeny-Carman.

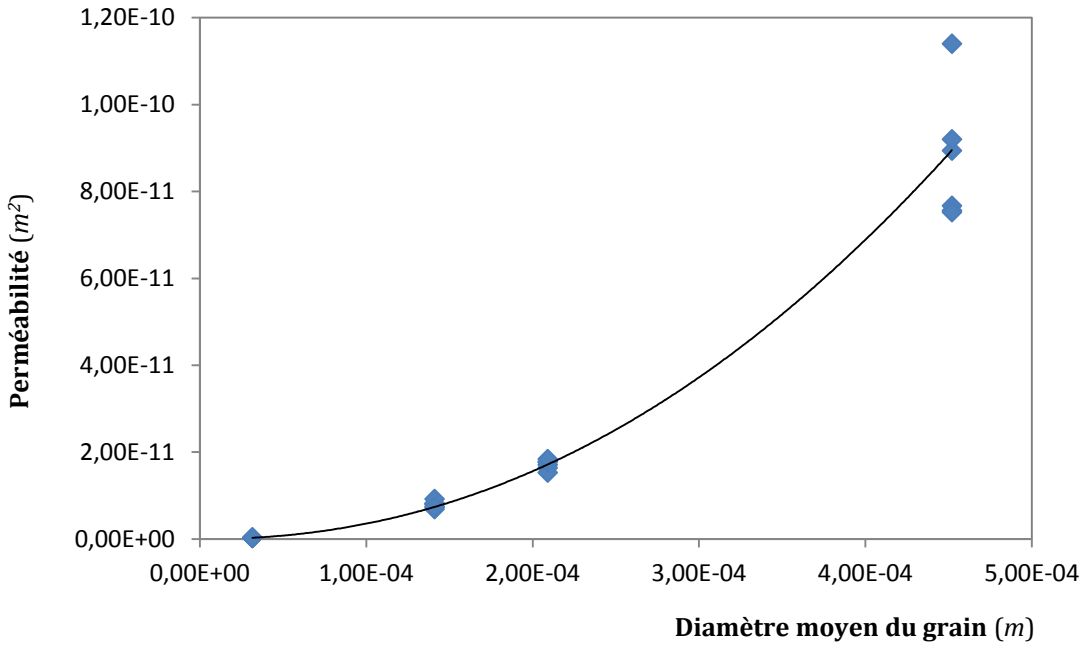


Figure 4.7. Représentation du diamètre moyen du grain pour chaque type de milieu poreux en fonction de la perméabilité mesurée pour les tests sur colonne.

2.1.2. Mesure de l'adsorption de tensioactif

Le principe de la mesure est présenté dans le Chapitre 3. Il repose sur la comparaison entre un traçage monophasique non réactif et l'injection de tensioactif dans le milieu poreux.

a. Test de traçage

Le premier test de traçage est réalisé avec une solution saline de NaCl ($\boldsymbol{C_0}$ = *0,2 g/L*), injectée à un débit égal à $\boldsymbol{Q_w}$ = *4 mL/min*. La courbe d'étalonnage conductivité électrique – concentration en sel est présentée dans la Figure 4.8. On trouve une bonne corrélation linéaire (R^2 = *0,9999*).

La Figure 4.9 montre la courbe de percée mesurée en conductivité pour la *Colonne 1* en fonction du temps d'injection (en secondes).

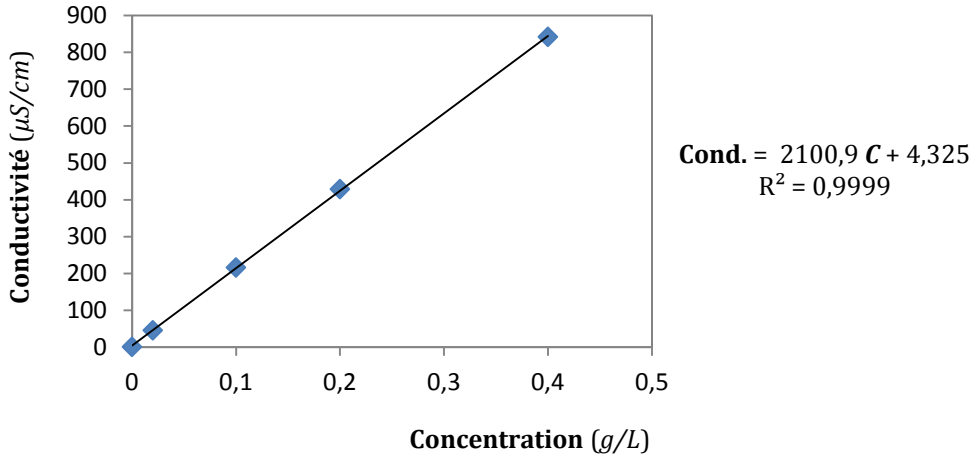


Figure 4.8. Courbe d'étalonnage pour la mesure de la conductivité d'une solution de NaCl pendant le test de traçage.

La courbe d'étalonnage nous permet de tracer la concentration $\boldsymbol{C}$ de NaCl à la sortie de la colonne. La concentration $\boldsymbol{C}$ est mise sous forme adimensionnelle en divisant par la concentration $\boldsymbol{C_0}$ de la solution injectée. Le débit d'injection de liquide ($\boldsymbol{Q_w}$ = *4 mL/min*) et le volume de pore de la *Colonne 1* sont connus, on peut alors tracer les résultats de ce test en fonction du nombre de volumes de pore injectés (Figure 4.10).

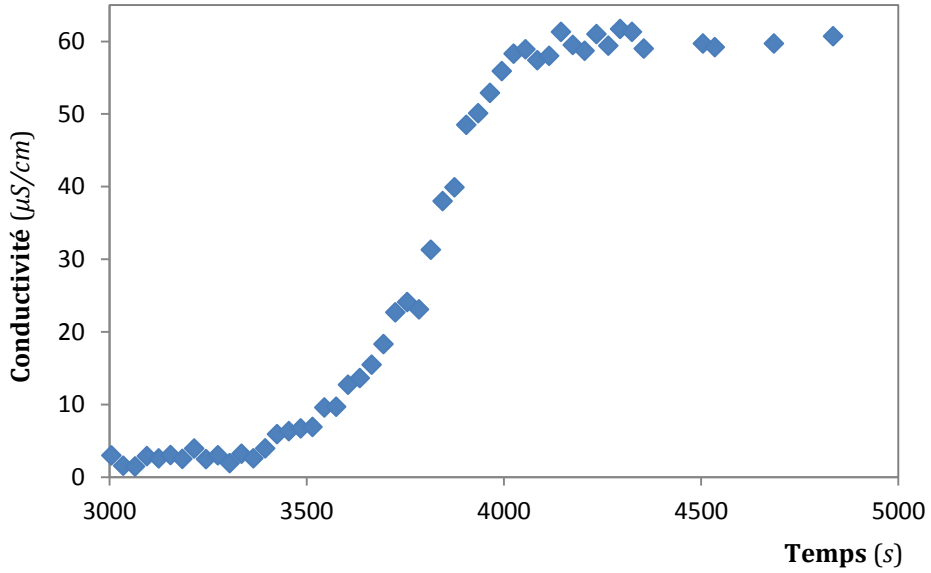


Figure 4.9. Réponse de la *Colonne 1* à une injection échelon de solution saline de concentration C_0 en termes de conductivité en fonction du temps.

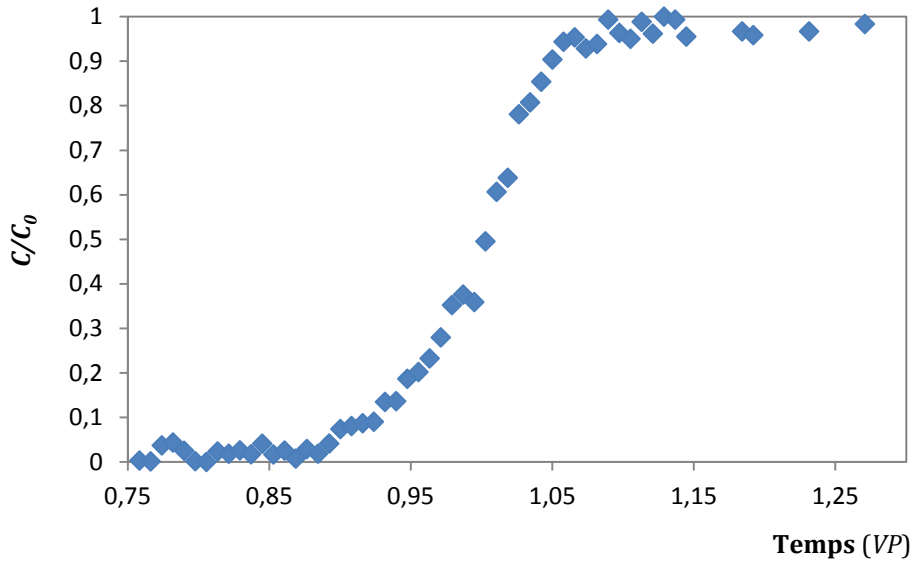


Figure 4.10. Réponse de la *Colonne 1* à une injection échelon de solution saline de concentration C_0 en fonction des volumes de pore injectés.

On modélise cette courbe avec l'équation (3.13) en utilisant Mathematica® (Figure 4.11). Les paramètres α et la vitesse v sont obtenus avec un calage par moindres carrés. Les valeurs obtenues sont les suivantes :

- $v = 1{,}07 \cdot 10^{-4}\ m/s$
- $\alpha = 4{,}8328 \cdot 10^{-4}\ m$

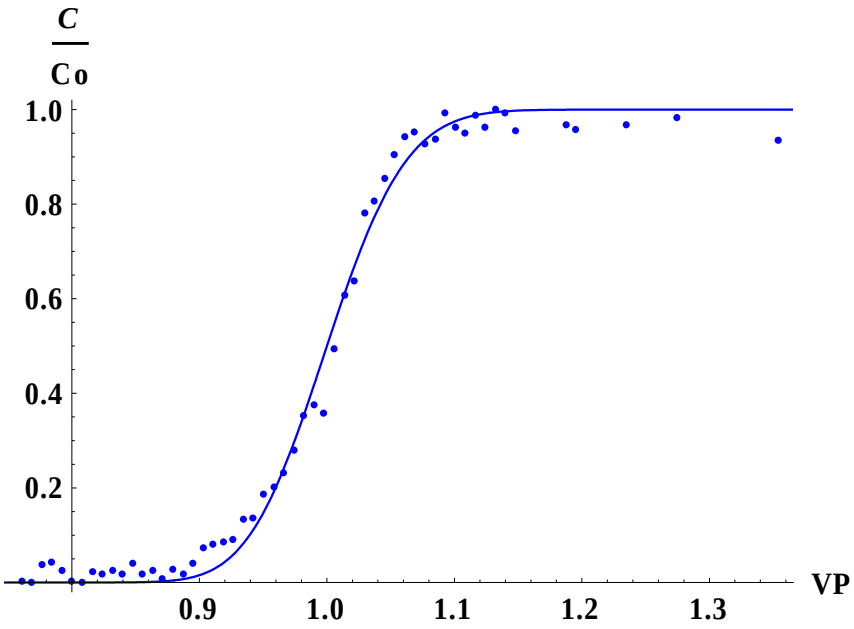


Figure 4.11. Modélisation de la courbe expérimentale C/C_0 du test de traçage pour la *Colonne 1.*

b. Adsorption du tensioactif

La concentration en tensioactif dans les effluents est mesurée par l'intermédiaire du COT (Carbone Organique Total). La première étape consiste à étalonner le COT avec des solutions de différentes concentrations de Triton® X-100. La courbe d'étalonnage ainsi obtenue est représentée dans la Figure 4.12 :

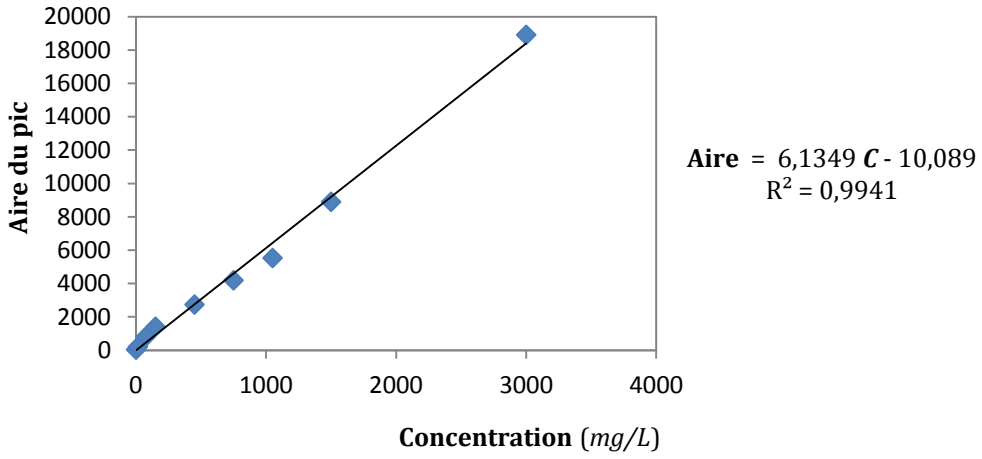


Figure 4.12. Courbe d'étalonnage de COT pour le Triton® X-100.

Après injection de la solution de tensioactif dans la colonne (avec un débit égal à $Q_w = 4\ mL/min$ et concentration $C_0 = 10$ CMC) on obtient la courbe de percée, qui est présentée sous forme adimensionnelle dans la Figure 4.13.

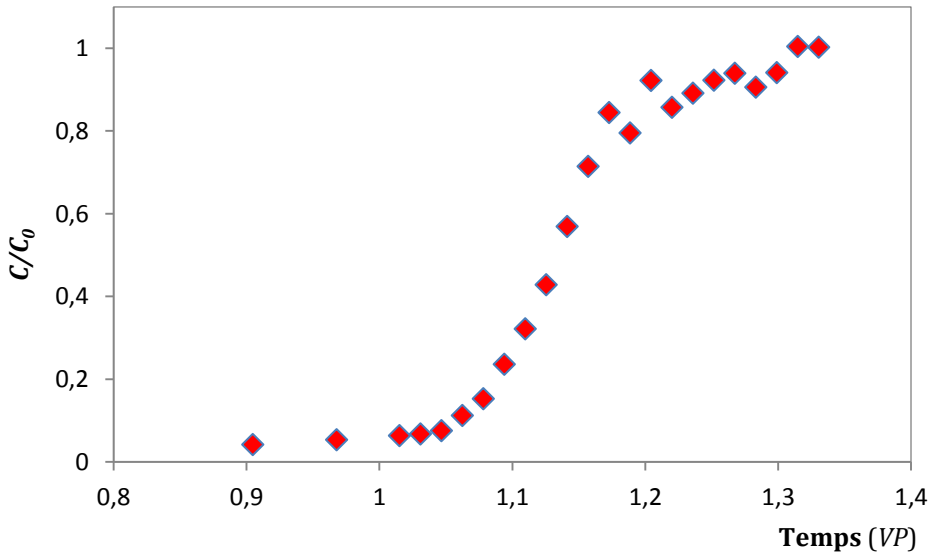


Figure 4.13. Réponse de la *Colonne 1* à une injection échelon de solution de Triton® X-100 (concentration C_0) en fonction des volumes de pore injectés.

Ensuite on modélise cette courbe avec l'équation (3.13) avec Mathematica® (Figure 4.14). On conserve la valeur du paramètre $\boldsymbol{\alpha} = 4{,}8328 \cdot 10^{-4}\ m$ que nous avons obtenu avec le test de traçage et on cherche la vitesse du polluant $\boldsymbol{v_p}$ avec un calage par moindres carrés. On obtient une valeur $\boldsymbol{v_p} = 9{,}43 \cdot 10^{-5}\ m/s$. Le facteur de retard est égal à $\boldsymbol{R} = 1{,}13$.

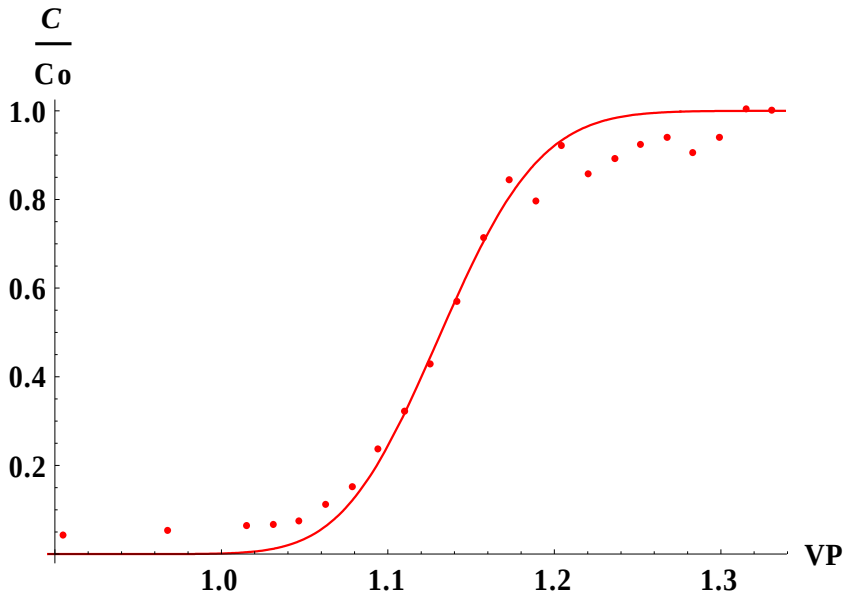


Figure 4.14. Modélisation de la courbe expérimentale C/C_0 du test de traçage pour la *Colonne 1.*

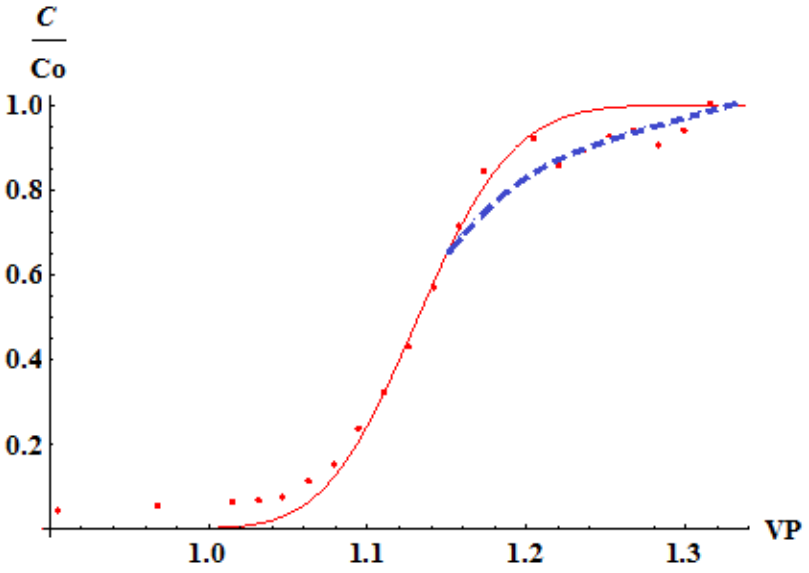


Figure 4.15. Modélisation de la courbe expérimentale C/C_0 du test d'adsorption pour la *Colonne 1.* La ligne bleue pointillée décrit la tendance suivie par la dernière partie de la courbe d'adsorption.

Pour modéliser la courbe d'adsorption on utilise une fonction symétrique. Comme observé dans la Figure 4.15, la dernière partie de la courbe est caractérisée par un taux d'adsorption plus lent (trait bleu discontinu) que celui qui donnerait la courbe symétrique (trait rouge), comme l'indique la diminution de la pente.

En effet, ce phénomène est associé au manque de surface disponible pour l'adsorption. Au fur et à mesure que les molécules de tensioactif s'adsorbent sur la surface solide, les lieux potentiels pour l'adsorption deviennent rares et le taux d'adsorption est ralenti.

c. Comparaison des courbes de traçage et d'adsorption

Pour calculer la quantité de Triton® X-100 qui a été adsorbée sur le milieu poreux on compare la courbe de traçage avec la courbe d'adsorption (Figure 4.16).

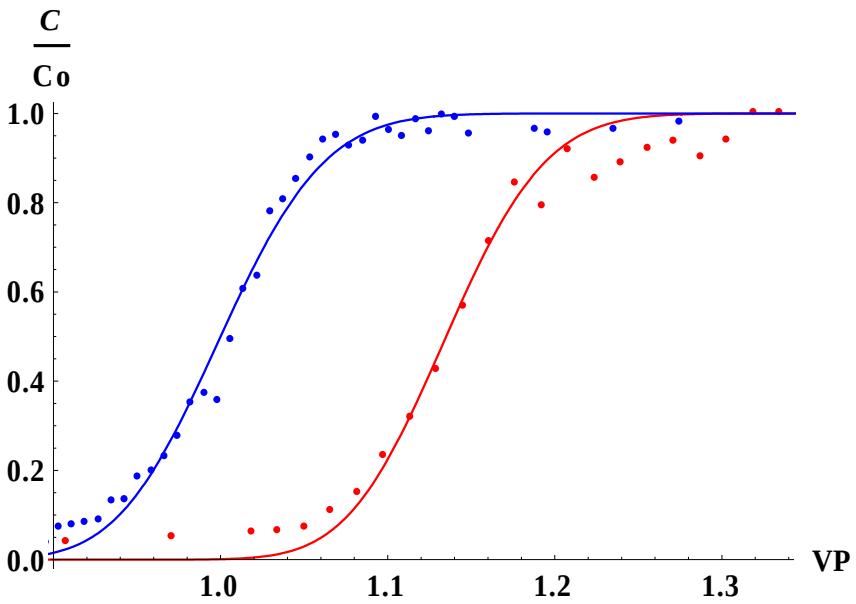


Figure 4.16. Comparaison des courbes C/C_0 pour le test de traçage et le test d'adsorption pour la *Colonne 1*.

On calcule la distance en ***VP*** existante entre les deux courbes, c'est-à-dire, le volume de solution de tensioactif dont les molécules ont été adsorbées. Pour cela, on détermine la valeur en ***VP*** où les deux saturations sont égales à *0,5* et on calcule la différence.

Connaissant le volume de pore de la colonne (*241,42 mL*) on en déduit le volume de la solution de tensioactif nécessaire à l'adsorption complète, soit *32,59 mL*. Connaissant la concentration en tensioactif (*1,5 g/L*) on en déduit facilement que *49 mg* de Triton® X-100 ont été adsorbés dans la colonne. On peut ainsi exprimer l'adsorption de tensioactif en masse par unité de masse du milieu poreux. La masse volumique de sable étant $\rho_{sable} = 2670\ kg/m^3$ on obtient une adsorption de Triton® X-100 égale à *0,05 mg/g de sable.* Cette valeur est très faible, ce qui est cohérent avec la nature du tensioactif non ionique.

2.1.3. Co-injection air-solution de tensioactif

Pour ce test, la solution de tensioactif et l'air sont co-injectés directement dans la colonne saturée avec de la solution de tensioactif à un débit total fixe, égal à $Q_T = 3\ mL/min$ (en conditions normales). On modifie la proportion air/liquide afin d'obtenir différentes qualités de mousse à l'entrée. Le Tableau 4.1 montre les consignes des débits d'air et de solution de tensioactif utilisées.

Tableau 4.1. Débits de gaz Q_g et de liquide Q_w en fonction de la qualité de mousse Q_{mousse} utilisés pour les différentes expériences sur colonne.

Q_{mousse} (%)	Q_g (mL_n/min)	Q_w (mL/min)
85	2,55	0,45
95	2,85	0,15
99	2,97	0,03

Pour la *Colonne 1*, on réalise une co-injection avec les consignes correspondantes pour obtenir une qualité de mousse à l'entrée égale à *95 %*. On utilise une solution de Triton® X-100 avec une concentration égale à *10* fois la CMC. La Figure 4.17 montre la *Colonne 1* pendant ce test. On observe que le front de mousse (partie plus claire) se déplace vers la droite. Le front d'avancement est très net, ce qui indique une bonne formation de mousse et l'absence de ségrégation gravitaire.

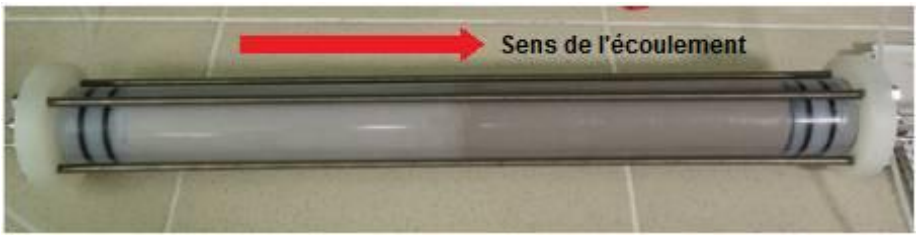


Figure 4.17. Avancement du front de mousse pendant une expérience de co-injection avec la *Colonne 1.*

On mesure continument la perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne et le liquide récupéré à la sortie. La Figure 4.19 montre les courbes obtenues en fonction du nombre de volumes de pore injectés pour cette expérience.

a. Interprétation de la courbe de récupération de liquide

On constate que cette courbe présente deux parties : la première correspond à la sortie de liquide uniquement, c'est-à-dire que le front de mousse se déplace en poussant le liquide qui sature la colonne vers la sortie. La pente de cette partie de la courbe nous donne le débit total de mousse (gaz + liquide), $\boldsymbol{Q_T} = 2{,}69\ mL/min$. On peut voir que ce débit est un peu inférieur au débit injecté, ce qui veut dire que le gaz subit une compression dans la colonne.

La deuxième partie de cette courbe commence quand le front de mousse atteint la sortie de la colonne. La « percée » se produit quand on a injecté un volume inférieur à *1* ***VP***. A partir de ce moment, on obtient de la mousse à la sortie de la colonne mais on récupère uniquement le liquide. La pente de cette partie de la courbe de récupération nous permet de connaître le débit de liquide : $\boldsymbol{Q_w} = 0{,}108\ mL/min$. La qualité de la mousse à la sortie de la colonne est égale à $\boldsymbol{Q_{mousse}} = 95{,}88\ \%$.

La Figure 4.18 montre l'évolution de la saturation de la colonne en fonction du nombre de volumes de pore ***VP*** injectés, calculée à l'aide d'un bilan de masse. La saturation finale de la *Colonne 1* est égale à *0,22*.

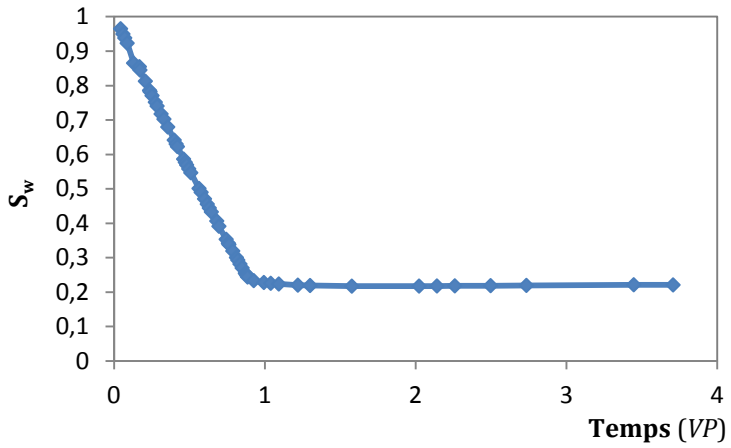


Figure 4.18. Évolution de la saturation S_w de la *Colonne 1* pendant le test de co-injection.

b. Interprétation de la courbe de perte de charge

On constate que la perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne augmente de manière quasi-linéaire jusqu'à la percée, moment où elle commence à se stabiliser. La perte de charge en régime stationnaire est égale à $\boldsymbol{\Delta P} = 0{,}325\ bar$. On observe un décalage entre la percée de la courbe de récupération de liquide et le régime stationnaire pour la courbe de perte de charge. Cela est dû aux réarrangements de bulles après percée, qui font que la pression continue à augmenter après la percée. Ce phénomène a été observé dans toutes les expériences.

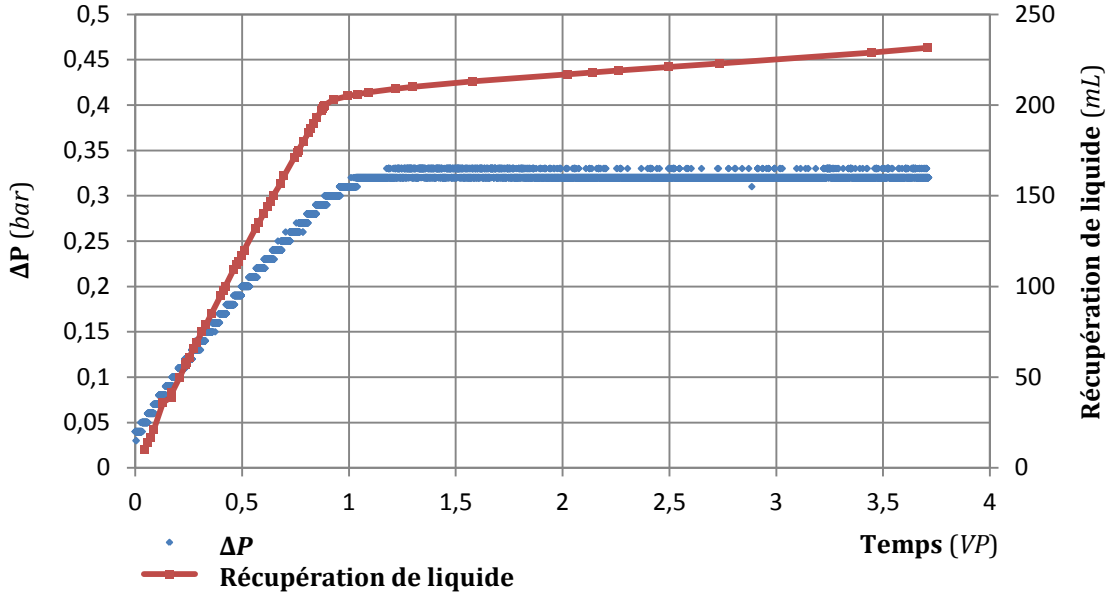


Figure 4.19. Courbes de perte de charge et récupération de liquide à la sortie de la colonne en fonction des volumes de pore injectés pendant le test de co-injection avec une qualité de mousse Q_{mousse} = *95 %* pour la *Colonne 1* (expérience 7).

2.2. Résultats détaillés pour la *Colonne 2*

La *Colonne 2* à été réalisée avec les billes de verre calibrées Spheriglass® Solid Glass 2000 dont le diamètre moyen de grain est compris entre *27* et *36 µm*. La longueur de la colonne est égale à $\boldsymbol{L}$ = *0,323 m* (expérience 1 dans le tableau récapitulatif, Tableau 4.2).

2.2.1. Porosité et perméabilité

Le volume de pore est mesuré par pesée après saturation de la colonne. On obtient $\boldsymbol{VP}$ = *162,54 mL* et une porosité $\boldsymbol{\phi}$ = *0,33*. La perméabilité intrinsèque de la colonne est mesurée à l'aide de la relation débit-pression (Figure 4.20). La pente de la courbe nous donne une perméabilité $\boldsymbol{k}$ = $0{,}252 \cdot 10^{-12}$ m^2.

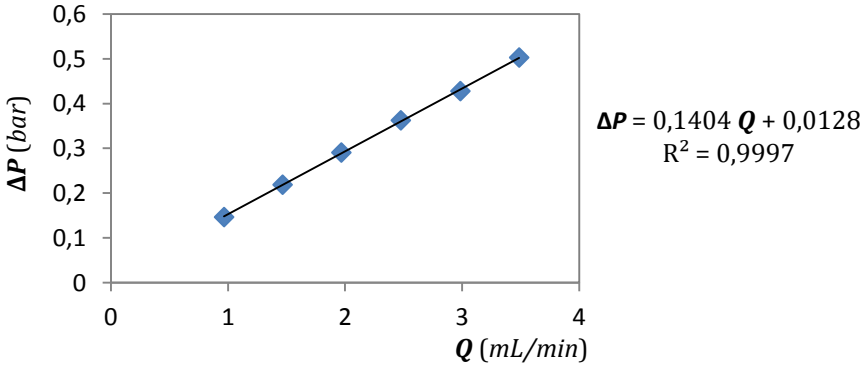


Figure 4.20. Courbe ΔP = f(Q) pour la *Colonne 2*.

2.2.2. Co-injection air-solution de tensioactif

La colonne est d'abord saturée en solution de tensioactif (Triton® X-100, concentration C_{ta} = *10* fois la CMC). On injecte environ deux volumes de pore de solution de tensioactif afin de satisfaire la capacité d'adsorption des molécules par la matrice solide. Ensuite on co-injecte de l'air et de la solution de tensioactif avec une qualité de mousse à l'entrée égale à *95 %* (voir Tableau 4.1 pour le détail des débits air/liquide). La perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne et le volume de liquide récupéré à la sortie sont mesurés continument.

La Figure 4.21 montre la *Colonne 2* pendant ce test. On observe que le front de mousse (partie plus claire) se déplace vers la droite. Cette fois ci le front d'avancement comporte une zone de transition qui peut être distinguée dans la Figure 4.21 par une couleur intermédiaire entre la zone saturée (foncée) et la zone occupée par de la mousse (plus claire).

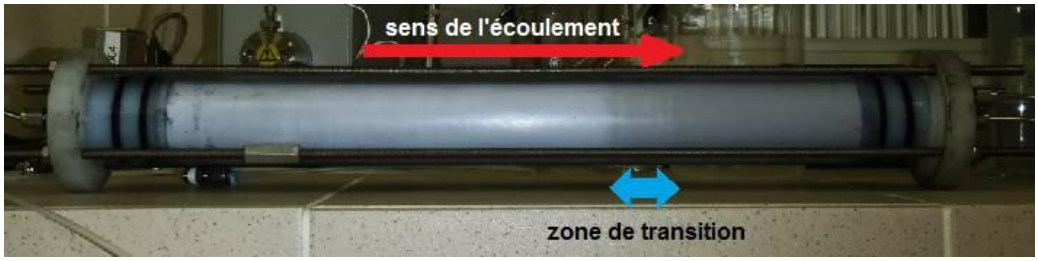


Figure 4.21. Avancement du front de mousse pendant une expérience de co-injection avec la *Colonne 2*. On observe que le front d'avancement de mousse comporte une zone de transition.

a. Interprétation de la courbe de récupération de liquide

La courbe de récupération de liquide (Figure 4.23) présente deux parties : la première correspondante à la sortie de liquide uniquement, quand le front de mousse se déplace en poussant le liquide qui sature la colonne vers la sortie. La pente de cette partie de la courbe nous donne le débit total de mousse (gaz + liquide), Q_T = *1,77 mL/min*. On peut voir que ce débit est inférieur au débit injecté, ce qui veut dire que le gaz subit une compression dans la colonne.

La deuxième partie de cette courbe commence quand le front de mousse atteint la sortie de la colonne. La « percée » se produit quand on a injecté ≃ *0,8* ***VP***. A partir de ce moment, on obtient de la mousse à la sortie mais on récupère uniquement le liquide. La pente de cette partie de la courbe de récupération nous permet de connaître le débit de liquide : Q_w = *0,102 mL/min*, ce qui nous donne une qualité de la mousse à la sortie de la colonne égale à Q_{mousse} = *94,23 %*.

La Figure 4.22 montre l'évolution de la saturation de la colonne en fonction du nombre de volumes de pore ***VP*** injectés, calculée à l'aide d'un bilan de masse. La saturation finale de la *Colonne 1* est égale à *0,22*.

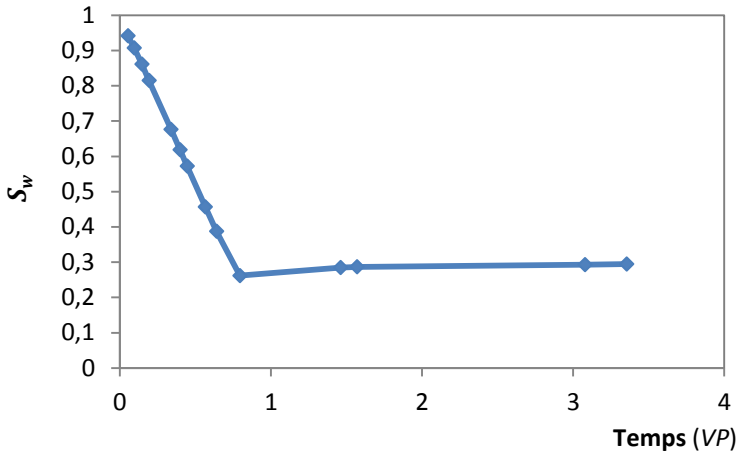


Figure 4.22. Évolution de la saturation de la *Colonne 2* pendant le test de co-injection.

b. Interprétation de la courbe de perte de charge

La Figure 4.23 montre la courbe de perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne pendant le test de co-injection pour la *Colonne 2*. On constate que cette courbe présente trois parties. Au début de la co-injection, la pente est très forte, c'est-à-dire, que le gradient de pression est très grand. Pendant cette étape, la mousse formée présente une couleur plus foncée, comme le montre la Figure 4.21. Aux alentours de *0,1* ***VP*** injectés, la pente de la courbe de pression en fonction du temps diminue, et visuellement on constate que la couleur de la mousse formée à partir de ce moment est plus claire. Ce changement est observé pour toutes les expériences avec des colonnes fabriquées avec des billes de verre quand la perte de charge entre l'entrée et la sortie du milieu poreux atteint une valeur aux alentours de *0,8 bar*. Ce phénomène est interprété dans le point 2.4 de ce chapitre.

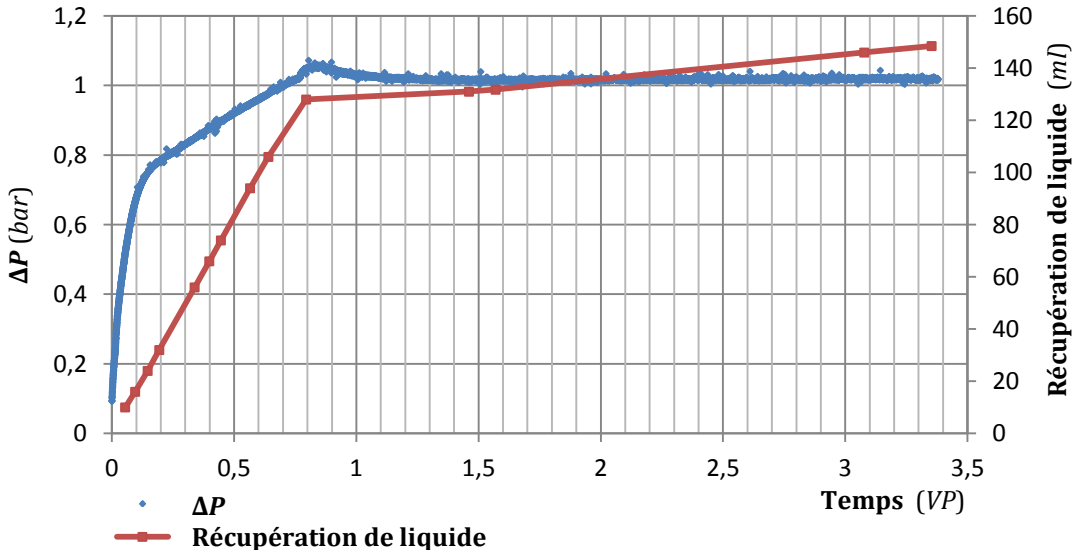


Figure 4.23. Courbes de perte de charge et récupération de liquide à la sortie de la colonne en fonction des volumes de pore injectés pendant le test de co-injection avec une qualité de mousse Q_{mousse} = *95 %* pour la *Colonne 2* (expérience 1).

2.3. Tableau récapitulatif des expériences sur colonne

Tableau 4.2. Tests sur colonne. Résumé des conditions expérimentales et résultats. En gras les expériences présentées en détail précédemment.

Exp.	Milieu poreux	L (m)	ϕ	VP (mL)	k ($Darcy$)	Q_{mousse} ($\%$)	Tensioactif	Débit récup. (mL/min)	S_w station.	ΔP_{mousse} (bar)	∇P_{mousse} (bar/m)	ΔP_{eau} (bar)	RF
1	**Spheriglass**	**0,323**	**0,33**	**162,5**	**0,252**	**95**	**Triton**	**1,770**	**0,29**	**1,020**	**3,1579**	**0,2600**	**3,92**
2	Spheriglass	0,388	0,33	195,8	0,360	99	SE	1,674	0,18	1,420	3,6598	0,2180	6,51
3	Spheriglass	0,382	0,33	194,8	0,309	99	Triton	1,740	0,22	0,916	2,3966	0,2480	3,69
4	Spheriglass	0,378	0,34	194,8	0,231	99	Triton	1,728	0,20	1,115	2,9497	0,3610	3,09
5	Spheriglass	0,386	0,34	193,8	0,306	85	Triton	1,884	0,45	0,985	2,5516	0,2650	3,71
6	BR37	0,422	0,40	259,8	8,04	95	Triton	2,478	0,20	0,340	0,8057	0,01530	22,26
7	**BR37**	**0,406**	**0,39**	**241,4**	**8,23**	**95**	**Triton**	**2,694**	**0,22**	**0,320**	**0,7882**	**0,01450**	**22,07**
8	BR37	0,419	0,39	246,8	7,52	95	SE	2,478	0,13	0,340	0,8115	0,01640	20,73
9	BR37	0,415	0,38	239,8	6,89	99	SE	2,484	0,12	0,360	0,8675	0,01740	20,69
10	BR37	0,421	0,40	258,8	8,09	99	Triton	2,376	0,15	0,288	0,6843	0,01460	19,68
11	BR37	0,421	0,41	259,8	9,22	85	Triton	2,532	0,29	0,287	0,6815	0,01490	19,31
12	BR37	0,420	0,38	260,4	7,31	85	SE	2,616	0,26	0,320	0,7619	0,01670	19,16
13	NE34	0,422	0,36	231,8	17,10	95	Triton	2,766	0,25	0,140	0,3325	0,00827	16,97
14	NE34	0,420	0,36	230,8	16,40	95	SE	2,676	0,19	0,155	0,3698	0,00829	18,73
15	NE34	0,420	0,35	223,8	15,30	99	Triton	2,736	0,12	0,161	0,3833	0,00911	17,68
16	NE34	0,422	0,36	231,8	17,70	99	SE	2,772	0,13	0,159	0,3780	0,00788	20,26
17	NE34	0,423	0,36	232,8	17,80	85	Triton	2,772	0,30	0,135	0,3191	0,00811	16,65
18	NE34	0,420	0,36	231,8	18,40	85	SE	2,754	0,24	0,150	0,3571	0,00759	19,78
19	MI 0,3/0,6	0,420	0,33	209,8	76,70	85	Triton	2,880	0,37	0,020	0,0476	0,00153	13,09
20	MI 0,3/0,6	0,414	0,32	201,8	75,60	85	SE	2,832	0,31	0,028	0,0679	0,00180	15,63
21	MI 0,3/0,6	0,417	0,34	215,8	114,0	95	Triton	2,952	0,31	0,019	0,0456	0,00128	14,84
22	MI 0,3/0,6	0,408	0,32	198,8	89,40	95	SE	2,958	0,21	0,021	0,0520	0,00147	14,43
23	MI 0,3/0,6	0,421	0,32	205,8	92,00	99	Triton	3,036	0,16	0,020	0,0475	0,00142	14,10
24	MI 0,3/0,6	0,412	0,33	205,8	75,24	99	SE	2,970	0,24	0,030	0,0728	0,00198	15,14

2.4. Interprétation des résultats. Facteur de résistance à la mobilité RF et influence sur la texture de la mousse

Afin de comparer plusieurs expériences, il est pratique d'utiliser des paramètres adimensionnels (Siddiqui *et al.*, 2002). Le facteur de réduction de la mobilité (« *Mobility Reduction Factor* » ou ***MRF***, Maini, 1985) et le facteur de résistance à la mobilité (« *Resistance Factor* » ou ***RF***, Chou, 1991) ont été proposés dans la littérature. Ils sont exprimés respectivement par les équations (4.2) et (4.3) :

Facteur de Réduction de la Mobilité (« *Mobility Reduction Factor* » ***MRF***)

$$\left[\frac{\Delta P_{tensioactif-gaz}}{\Delta P_{eau-gaz}}\right]_{pour\ le\ même\ débit} \quad \textbf{(4.2)}$$

Facteur de Resistance à la Mobilité (« *Resistance Factor* » ***RF***)

$$\left[\frac{\Delta P_{tensioactif-gaz}}{\Delta P_{eau}}\right]_{pour\ le\ même\ débit} \quad \textbf{(4.3)}$$

Pour déterminer le ***MRF*** il est nécessaire de réaliser une expérience de co-injection avec de l'eau et du gaz, tandis que la détermination du ***RF*** nécessite seulement la perte de charge pendant l'injection d'eau. Ainsi on considère le ***RF*** pour interpréter nos expériences. Les pertes de charge sont mesurées en régime permanent pour les écoulements de mousse et d'eau. Une valeur faible du ***RF*** implique la présence de « *weak foam* » tandis qu'une valeur forte révèle la présence de « *strong foam* ».

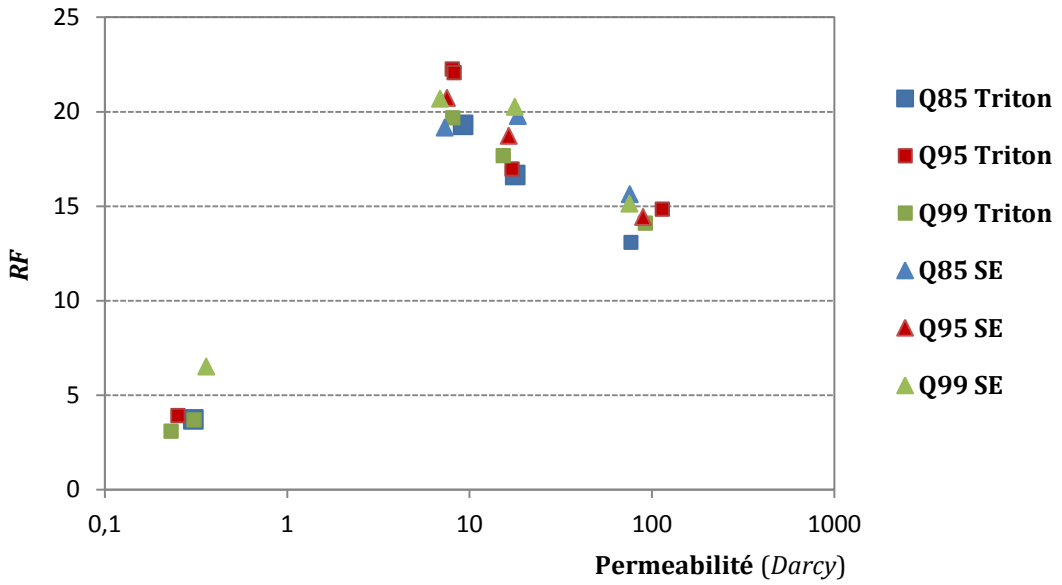


Figure 4.24. Facteur de résistance à la mobilité *RF* en fonction de la perméabilité pour les tests sur colonne. Q fait référence à la qualité de la mousse (*85 %*, *95 %* ou *99 %*) et SE signifie sucroester.

La Figure 4.24 montre les valeurs de ***RF*** pour toutes les expériences en fonction de la perméabilité. On observe que la qualité de la mousse et le type de tensioactif n'ont pas d'effet important. Les résultats sont regroupés dans quatre groupes, un pour chaque type de milieu poreux.

La Figure 4.24 montre clairement deux régimes d'écoulement de mousse. Pour la même valeur du débit total, le ***RF*** est faible pour des faibles perméabilités (*250 millidarcy*), ce qui est caractéristique de la « *weak foam* ». Pour des fortes valeurs de perméabilité (*8*, *15* et *100 Darcy*) le ***RF*** est grand ; comportement caractéristique de la « *strong foam* ». On observe aussi que la valeur du ***RF*** diminue quand la perméabilité augmente. Ces résultats sont interprétés ci-dessous.

2.4.1. Expériences à faible perméabilité

La mobilité d'un gaz s'écoulant à travers un milieu poreux diminue drastiquement quand il est dispersé dans un liquide, comme dans le cas de la mousse (Fried, 1961). Cette réduction de mobilité dépend de plusieurs paramètres, parmi lesquels la texture de la mousse, qui est gouvernée par les mécanismes de génération et de destruction de lamelles au sein du milieu poreux.

La stabilité des films dépend de la pression capillaire. A l'équilibre, la succion capillaire dans les bords de Plateau est équilibrée par la pression de disjonction $\boldsymbol{\Pi}$. Dans un film liquide cette pression est le résultat des forces résultant des interactions entre les molécules du tensioactif (forces attractives de van der Waals $\boldsymbol{\Pi_A}$ et forces répulsives stériques et électrostatiques $\boldsymbol{\Pi_R}$), dont la valeur dépend de l'épaisseur du film. Des pressions de disjonction positives ($\boldsymbol{\Pi_R} > \boldsymbol{\Pi_A}$) donnent des films stables. Cette pression de disjonction ne peut pas dépasser une certaine valeur $\boldsymbol{\Pi_{max}}$, qui dépend du type de tensioactif, de sa concentration et de la présence d'électrolytes en solution. Quand la pression capillaire $\boldsymbol{P_c}$ dans le milieu poreux est égale à $\boldsymbol{\Pi_{max}}$ les films sont instables et collapsent. Cette pression capillaire est connue sous le nom de pression capillaire limite $\boldsymbol{P_c^*}$, et sa valeur dépend du type de tensioactif et de sa concentration mais aussi des caractéristiques du milieu poreux et du débit (Khatib *et al.*, 1988).

Les lamelles s'écoulant à travers un milieu poreux subissent des processus d'étirement et de compression en se déplaçant depuis les seuils vers les corps des pores. Pendant ce processus, le liquide vide ou remplit les films afin d'adapter leur épaisseur pour que la pression de disjonction équilibre la pression capillaire imposée par la géométrie du milieu poreux. Cependant cela n'est pas instantané et l'épaisseur des films oscille autour de la valeur d'équilibre, où $\boldsymbol{P_c} = \boldsymbol{\Pi}$. En conséquence, l'épaisseur peut correspondre instantanément à une valeur au dessus de $\boldsymbol{\Pi_{max}}$ en provoquant le collapse des lamelles. On s'attend à ce que des plus grandes oscillations d'épaisseur se produisent pour des plus fortes vitesses d'écoulement et pour des plus grands rapports d'aspect ($\boldsymbol{R_b/R_t}$ où $\boldsymbol{R_b}$ est la dimension du corps du pore et $\boldsymbol{R_t}$ est la dimension du seuil du pore). Ainsi, les lamelles dynamiques collapsent à des valeurs de pression capillaire inférieures à la valeur statique, $\boldsymbol{\Pi_{max}}$.

Il existe une relation inverse entre perméabilité et pression capillaire. Pour une même saturation du liquide $\boldsymbol{S_w}$, plus la perméabilité est forte, plus la pression capillaire est faible, comme le montre la Figure 4.25.

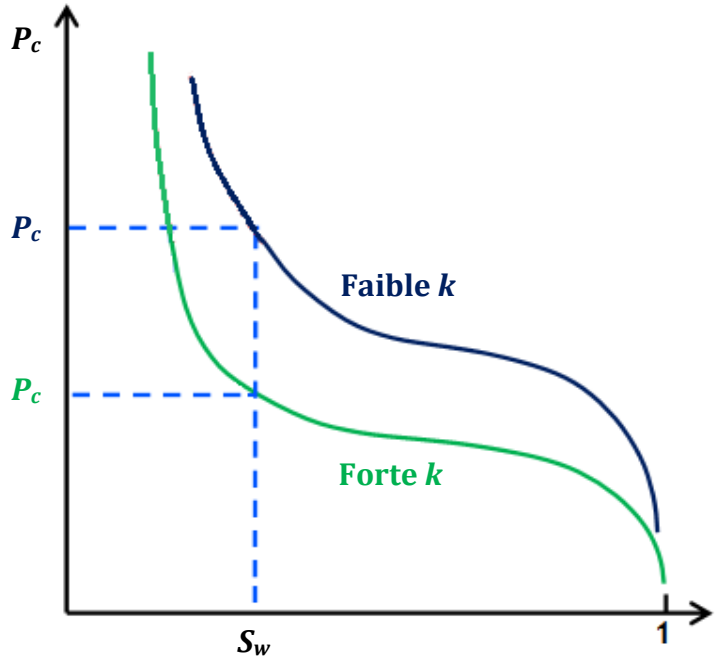


Figure 4.25. Courbes de pression capillaire en fonction de la saturation en phase aqueuse pour des milieux de différente perméabilité.

Cette caractéristique signifie que les films liquides générés au sein d'un milieu poreux seront rompus d'une manière plus facile dans un milieu à faible perméabilité que dans un à forte perméabilité. Par conséquent, le taux de destruction de lamelles est plus fort que le taux de création et la texture de la mousse est caractéristique de la « *weak foam* », où la réduction de mobilité du gaz est faible. Ceci est cohérent avec les données représentées sur la Figure 4.24 où on voit clairement que le ***RF*** pour les expériences à faible ***k*** est quatre ou cinq fois plus faible que le ***RF*** mesuré pour des perméabilités élevées. Ceci suggère que pour les milieux à faible perméabilité, la pression capillaire est supérieure à la pression capillaire limite, donc la mousse formée n'est pas très stable. La pression de disjonction n'est pas facile à mesurer, surtout dans des milieux poreux. Les données obtenues par Exerowa *et al*. (1987) avec un tensioactif anionique (dodécyl sulfate de sodium, SDS) pour des conditions statiques et en fonction de la concentration en électrolyte varient entre 10^4 et 10^5 *Pa* (Figure 4.26).

Dans notre étude, nous avons utilisé des tensioactifs non ioniques, ce qui devrait conduire à des valeurs inférieures de pression de disjonction Π (absence de forces de répulsion électrostatique) par rapport aux tensioactifs anioniques. Un milieu poreux dont la perméabilité est de *250 millidarcy* correspond à un rayon de pore proche de *2 µm* et une pression capillaire de $3 \cdot 10^4$ *Pa* (avec $\sigma = 0{,}03$ *N/m*), qui est du même ordre de grandeur.

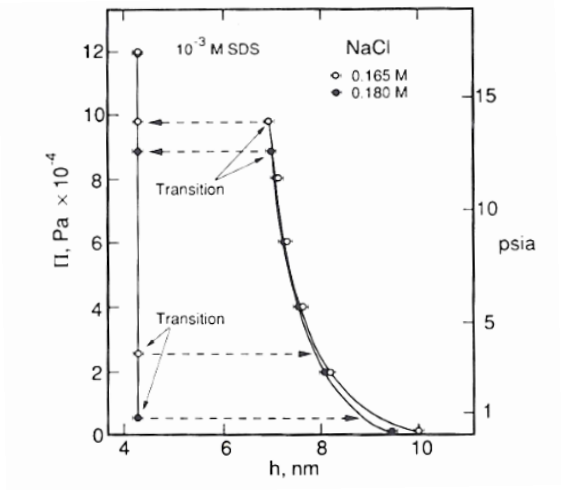


Figure 4.26. Isothermes de pression de disjonction expérimentale à température ambiante pour sodium dodécyl sulfate (*C = 10⁻³ kmol/m³*) et deux concentrations du sel (*C = 0,165* et *C = 0,185 kmol/m³*) (Exerowa *et al.*, 1987).

La Figure 4.27 montre un exemple de la perte de charge et de récupération du liquide à la sortie de la colonne pendant un test de co-injection. La percée du gaz (***t*** ≃ *0,8* ***VP***) correspond à un changement de pente dans la courbe de production de liquide et de la perte de charge. Si la production d'eau est monotone avant la percée, la courbe de perte de charge présente un changement de pente à ***t*** ≃ *0,1* ***VP***. Comme le gradient de pression dépend de la texture de la mousse, le changement de pente signifie que la texture change aussi. La première partie de la courbe de pression indique une forte valeur de la pente, ce qui est attribué à une génération de « *strong foam* ». Ensuite, quand la pression à l'entrée dépasse la valeur *7·10⁴ Pa*, la plupart des lamelles deviennent instables et collapsent, et la mousse s'écoulant dévient « *weak* ».

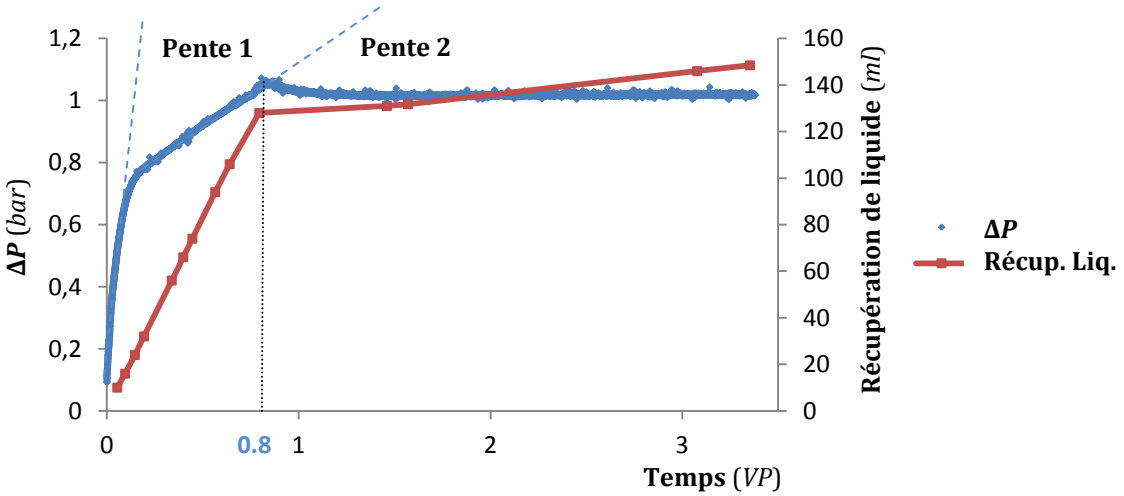


Figure 4.27. Perte de charge et récupération de liquide en fonction des volumes de pore injectés pour une colonne de perméabilité *k = 0,250 Darcy* pendant un test de co-injection (expérience 1).

Ce changement de texture est aussi observé visuellement dans la Figure 4.28 où on montre une photo du milieu poreux pendant l'expérience (***t*** ≃ *0,6* ***VP***). On observe trois couleurs correspondant aux trois zones de l'écoulement. La couleur foncée à droite correspond à une saturation en eau égale à *100 %*, tandis que la couleur claire à gauche correspond à l'écoulement de la « *weak foam* ». Entre ces deux zones, on observe une région de transition correspondant à la « *strong foam* ».

L'interprétation des courbes montrées dans la Figure 4.27 nous amène à une représentation de la distribution de pressions dans la colonne schématisée dans la Figure 4.29.

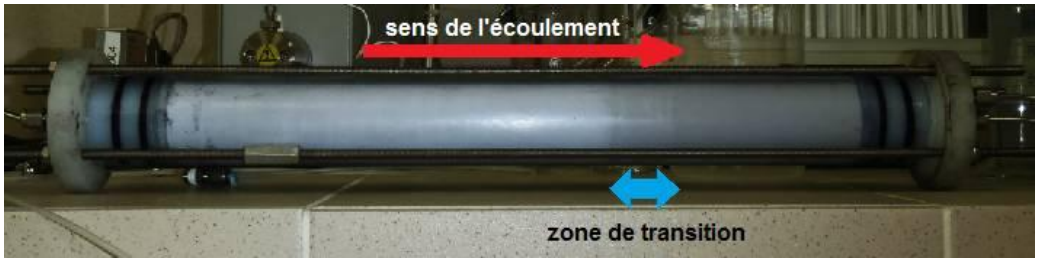


Figure 4.28. Front d'avancement de mousse pendant un test de co-injection dans une colonne de perméabilité *k* = *0,250 Darcy* (expérience 1). Une zone de transition est observée.

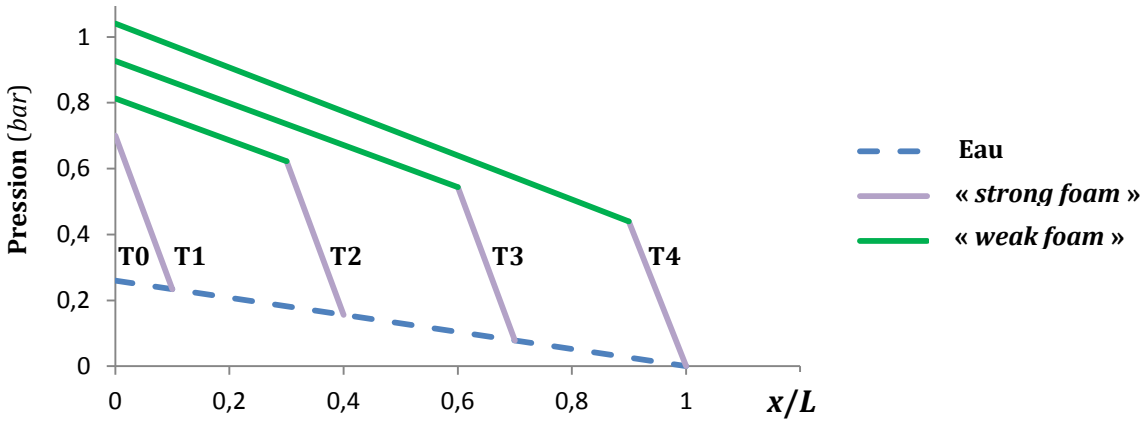


Figure 4.29. Représentation schématique de la distribution de pression dans une colonne à faible perméabilité pour différents moments pendant un test de co-injection (expérience 1).

A ***t*** = T0, la mousse n'est pas présente et la distribution de pression correspond à l'écoulement d'eau (droite bleue discontinue). A ***t*** = T1, *10* % de la longueur de la colonne est occupé par de la « *strong foam* » (la droite continue violette intercepte la droite pointillée à ***x/L*** = *0,1*). La distribution de pression à travers la colonne est donnée par la droite continue (étiquetée T1) et la ligne pointillée à partir de ***x/L*** = *0,1*, qui représente la pression dans la colonne dans la partie qui est encore *100 %* saturée en solution de tensioactif. A ***t*** = T1 la pression en ***x/L*** = *0* atteint la valeur critique (*0,7 bar*) et de la « *weak foam* » commence à se générer et la pente de la courbe de pression

change. La « *strong foam* » générée avant $\boldsymbol{t}$ = T1 se déplace vers la sortie de la colonne en imposant un gradient de pression donné par la pente de la courbe violette continue, et la « *weak foam* » impose un gradient de pression plus faible, donné par la pente de la courbe solide verte. Les autres courbes peuvent être interprétées de la même façon. $\boldsymbol{t}$ = T4 représente le temps de percée. Les droites continues, qui représentent la distribution de pression dans les régions occupées par de la mousse, sont linéaires. Cela signifie que pour un instant donné, le gradient de pression est constant dans la zone occupée par chaque type de mousse. Comme les droites continues sont parallèles, le gradient de pression est également indépendant du temps. C'est-à-dire que la perte de charge nécessaire pour générer une unité de volume de mousse pour chaque type de mousse (« *weak* » ou « *strong* ») ne dépend pas du temps.

Concernant le ***RF***, la différence de comportement entre les expériences à faible et à forte perméabilité suggère l'existence d'une zone de transition qu'il est difficile de déterminer de façon précise.

2.4.2. Expériences à forte perméabilité

La Figure 4.24 montre que pour des perméabilités variant entre *8* et *100 Darcy* la valeur de ***RF*** est élevée. Dans cette région on assume que la pression capillaire est inférieure à la valeur critique $\boldsymbol{P_c^*}$, ainsi la mousse générée est stable et « *strong* ». Le ***RF*** diminue quand la perméabilité augmente. Cette tendance peut aussi être expliquée en considérant que la stabilité des lamelles dépend de la pression capillaire. Pour illustrer ce fait on considère une représentation simple de la pression capillaire en utilisant la Fonction J de Leverett (Leverett, 1941), qui est une fonction adimensionnelle de la saturation de la phase mouillante décrivant la pression capillaire pour différents types de milieux poreux :

$$\boldsymbol{J(S_w) = \frac{P_c(S_w)}{\sigma \cos\theta}\sqrt{\frac{k}{\phi}}} \qquad \textbf{(4.4)}$$

Pour la plupart de nos expériences de co-injection, la valeur de la saturation de la phase mouillante en régime stationnaire varie entre *0,2* et *0,25*, ce qui correspond à une valeur de la fonction J de Leverett proche de *0,5*. On a représenté dans la Figure 4.30 la pression capillaire (pour $\boldsymbol{S_w}$ = *0,2*) en fonction de la perméabilité. Dans la même figure, le ***RF*** pour les différentes perméabilités est aussi représenté. On observe clairement la même tendance pour les valeurs de ***RF*** et la pression capillaire. Pour un débit donné, de plus faibles valeurs de perte de charge sont nécessaires pour déplacer les lamelles quand la pression capillaire diminue. Une fois la mousse générée au sein du milieu poreux, le comportement est indépendant de la qualité et du type de tensioactif.

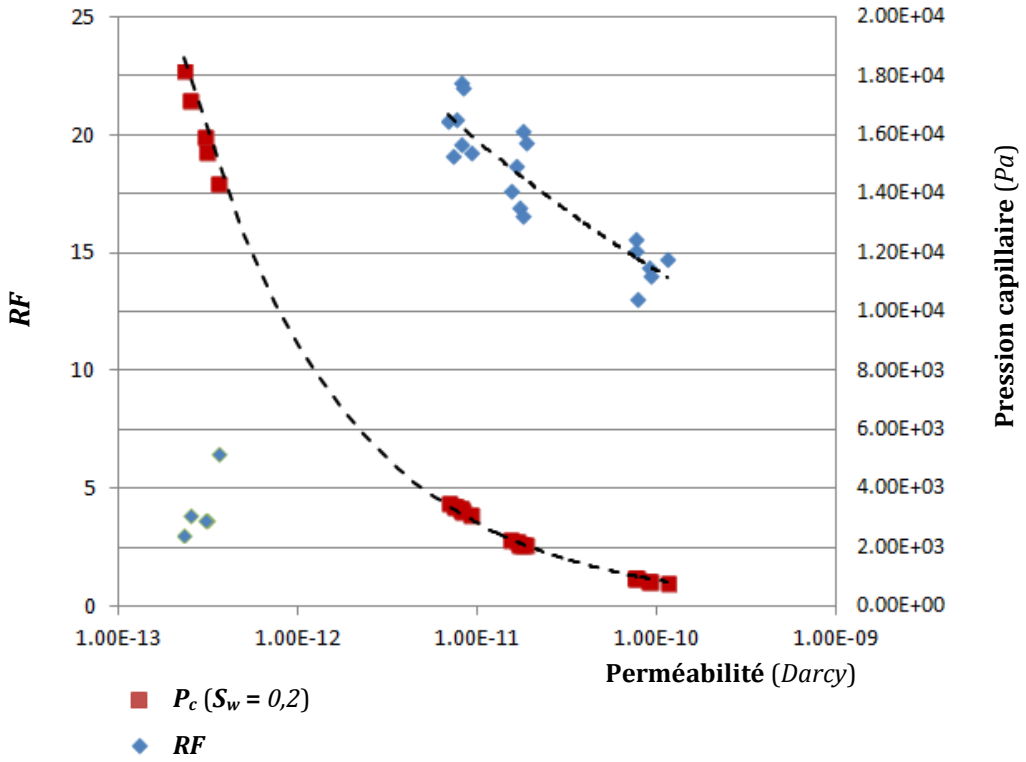


Figure 4.30. Pression capillaire pour les expériences sur colonne selon la fonction J de Leverett pour une saturation de la phase mouillante S_w égale à *0,2*.

Pour des perméabilités variant entre *8* et *100 Darcy*, comme le ***RF*** est fort, on assume que de la « *strong foam* » est générée et la mobilité du gaz est réduite. La Figure 4.31 présente les courbes de perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne et de récupération de liquide à la sortie de la colonne en fonction des volumes de pore injectés.

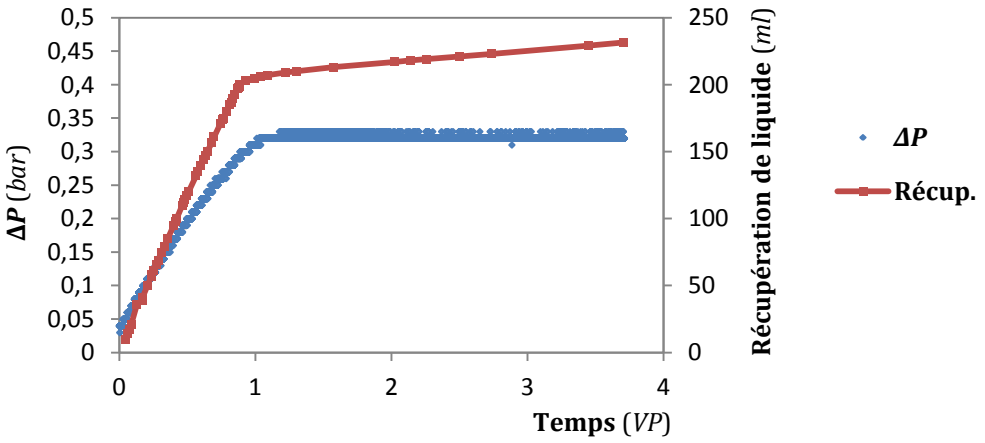


Figure 4.31. Courbes de perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne et de récupération du liquide en fonction du nombre de volumes de pore injectés pour une colonne à forte *k*.

On observe que l'écoulement de mousse est de type piston et que le front de déplacement est net et qu'il avance à vitesse constante. La production de liquide cumulée avant la percée est linéaire avec le temps. Cela veut dire qu'avant la percée, le volume de mousse généré par unité de temps est constant et déplace (comme un piston) une quantité équivalente d'eau, qui est récupérée à la sortie de la colonne. Concernant la première partie de la courbe de perte de charge en fonction du temps (avant percée) on observe une quasi-linéarité. L'interprétation des courbes de pression et de récupération du liquide montre que le gradient de pression dans la zone occupée par de la mousse est constant avec le temps, comme le montre de façon schématique la Figure 4.32.

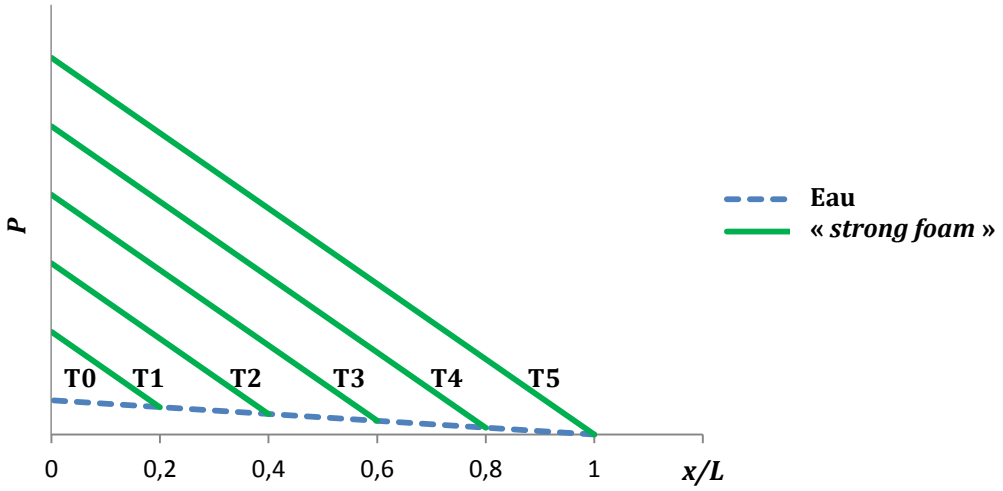


Figure 4.32. Représentation schématique de la distribution de pression dans une colonne à forte perméabilité pour de différents temps pendant un test de co-injection.

2.4.3. Gradient de pression minimal pour la génération de « strong foam »

Des études expérimentales indiquent que la génération de mousse (c'est-à-dire, la transition de « *weak foam* » à « *strong foam* ») exige de dépasser une certaine valeur du gradient de pression ou de la vitesse du gaz (Ransohoff et Radke, 1988 ; Rossen et Gauglitz, 1990 ; Tanzil *et al.*, 2002). Cela peut être expliqué par le fait que les phénomènes générant des lamelles produisant de la « *strong foam* » dépendent fortement des débits d'injection, c'est-à-dire, il existe une vitesse critique d'écoulement (le processus de « *lamella division* » exige que les lamelles statiques des seuils de pore soient déplacées par un gradient de pression suffisant, et le phénomène de « *snap-off* » dépend de la pression capillaire dynamique locale).

On considère qu'une valeur élevée du ***RF*** indique la formation de « *strong foam* ». Ainsi, la valeur du gradient de pression pour nos colonnes à forte ***k*** (> *8 Darcy*) doit être supérieure ou égale à la valeur ∇P^{min}. Les résultats de nos expériences peuvent être comparés aux études de la littérature concernant le gradient de pression minimal pour générer de la mousse.

Ransohoff et Radke (1988) ont étudié la vitesse minimale du gaz nécessaire pour générer de la mousse dans des blocs homogènes de billes de verre (« *glass bead packs* ») saturés en solution de tensioactif, où seulement du gaz est injecté à débit constant et en état stationnaire il n'y a pas de production de liquide (la pression dans la phase liquide est donc constante et la perte de charge à travers le milieu poreux est due à l'écoulement du gaz). Ils ont trouvé que l'activation de sites générant de lamelles par « *snap-off* » se produisait quand le nombre capillaire N_{ca} défini par l'expression (4.5) était égal ou supérieur à *8*.

$$N_{ca} = \frac{\mu_g \, v \, \phi \, L \, d}{2\sigma k k_{rg}} \tag{4.5}$$

où μ_g est la viscosité du gaz, v est la vitesse interstitielle, ϕ est la porosité, L est la longueur du bloc de billes de verre, d est le diamètre des grains, σ est la tension interfaciale gaz-liquide, k est la perméabilité intrinsèque et k_{rg} est la perméabilité relative du gaz. Si on combine la condition du nombre capillaire critique de Ransohoff et Radke (4.5) avec la loi de Darcy pour la phase non mouillante et la relation de Blake-Kozeny (4.6) pour la perméabilité, on obtient l'expression (4.7) pour le gradient de pression minimal ∇P^{min} :

$$k = \frac{d^2 \, \phi^3}{150 \, (1-\phi)^2} \tag{4.6}$$

$$\nabla P^{min} = \frac{N_{ca}^{*} \, \sigma}{L} \sqrt{\frac{4 \, \phi^3}{150 k \, (1-\phi)^2}} \tag{4.7}$$

où ϕ est la porosité. Dans ce modèle, ∇P^{min} est proportionnel à $k^{-1/2}$. L'expression (4.7) est valide dans le cas où seulement du gaz est injecté et à l'état stationnaire il n'y a pas de production de liquide. Ransohoff et Radke (1988) affirment que lorsque le débit fractionnaire d'eau est différent de zéro, le phénomène de « *snap-off* » nécessite des vitesses plus élevées, ce qui conduit à un nombre capillaire critique légèrement supérieur à celui constaté pour un débit d'eau nul ($N_{ca}^{*} = 8$). Ils ont confirmé ce fait expérimentalement. Néanmoins, les expériences de Rossen et Gauglitz (1990) dans des colonnes poreuses homogènes contredisent cette théorie. Les auteurs ont constaté que le débit d'injection minimale pour la génération de mousse diminue lorsque le débit fractionnaire de liquide augmente.

Tanzil *et al.* (2002) ont réalisé des expériences de génération de mousse dans des colonnes saturées en solution de tensioactif pendant le drainage initial. Ils ont observé que la génération de mousse a lieu pour des valeurs du nombre capillaire défini par l'expression (4.8) dont la valeur est proche de *2* :

$$N_{ca} = \frac{\Delta P}{\sigma}\sqrt{\frac{k}{\phi}} \qquad \textbf{(4.8)}$$

Ainsi, le gradient de pression minimale pour la génération de mousse est donné par l'équation (4.9) où L est la longueur de la colonne :

$$\nabla P^{min} = \frac{2\sigma}{L}\sqrt{\frac{\phi}{k}} \qquad \textbf{(4.9)}$$

Dans les deux derniers modèles, le gradient de pression minimal ∇P^{min} est proportionnel à $k^{-1/2}$.

Rossen et Gauglitz (1990) affirment que la génération de mousse implique la mobilisation des lamelles initialement présentes dans les seuils des pores, dont le nombre dépend de la pression capillaire, ainsi un gradient de pression minimal doit être surmonté. Ils ont utilisé un modèle basé sur la théorie de la percolation pour exprimer la dépendance du ∇P^{min} avec le débit fractionnaire d'eau (4.10) :

$$\nabla P^{min} \sim \frac{\sigma}{R_t F_P L_{pore}} \qquad \textbf{(4.10)}$$

où R_t est le rayon du seuil du pore, F_P un facteur de proportionnalité qui dépend du débit fractionnaire de liquide injecté, et L_{pore} la longueur du pore. Ainsi la variation de ∇P^{min} avec la perméabilité dépend de comment varient la taille du seuil de pore et la longueur de pore avec la perméabilité. Dans des milieux poreux non consolidés (comme le sable et les billes de verre) on assume qu'ils sont proportionnels à $k^{-1/2}$, ∇P^{min} étant donc proportionnel à k^{-1}. Des études expérimentales ultérieures (Gauglitz *et al.*, 2002) ont confirmé cette tendance (co-injection de solution de tensioactif et du gaz en régime stationnaire avec des qualités de mousse et des pertes de charge à travers les colonnes fixes).

Dans la Figure 4.33 nous avons représenté nos données expérimentales ainsi que les résultats de la littérature (équations (4.7) et (4.9) où $\sigma = 0{,}03\ N/m$, $\phi = 0{,}35$, $L = 0{,}4\ m$).

Pour des fortes valeurs de perméabilité (*>1 Darcy*), on génère de la « *strong foam* », on peut donc supposer que $\nabla P \geq \nabla P^{min}$. Nos données expérimentales se situent juste au dessus de la prédiction de Ransohoff et Radke (1988). Ceci est cohérent avec le fait que des valeurs plus grandes du nombre capillaire critique sont attendues lorsque le débit fractionnaire est différent de zéro, ce qui correspond à notre procédure expérimentale.

Nos données sont plus proches de la prédiction de Tanzil *et al.* (2002), mais sont proportionnelles à $k^{-1,15}$ au lieu de $k^{-1/2}$. L'origine de cette différence en terme de pente de corrélation pourrait être attribuée à des conditions expérimentales différentes. Tanzil explique que ses expériences ont été effectuées pendant le drainage initial et pas à l'état stationnaire, alors que dans nos expériences le gradient de pression est toujours constant. En d'autres termes, pour nos expériences on a trouvé que le gradient de

pression dans la région occupée par de la mousse avant la percée est le même que dans toute la colonne à l'état stationnaire.

En ce qui concerne les expériences à faible perméabilité, nos données ne suivent pas la même tendance observée avec les expériences à forte perméabilité. Cela est dû à la nature de la mousse générée, qui est du type « *weak* foam » (faible valeur du ***RF***) comme on a expliqué précédemment. Cependant, si on considère le gradient de pression obtenu pendant la première étape de l'expérience (pente 1 dans la Figure 4.27) qui correspond à une formation de « *strong foam* », et que l'on réalise une extrapolation linéaire du signal de pression jusqu'à $t = 0,8$ ***VP*** (percée du gaz), on obtient les données représentées dans la Figure 4.33 par des carreaux vides, qui sont bien en accord avec la tendance et sont proportionnelles à k^{-1}.

La génération de mousse dépend fortement des conditions expérimentales (par exemple la longueur de la colonne) et de la procédure (saturation initiale, débits d'injection du gaz et du liquide, etc.). Comme indiqué par Rossen et Gauglitz (1990), il est plus facile de générer de la mousse pendant le drainage initial d'un milieu poreux initialement saturé en solution de tensioactif que dans un milieu poreux partiellement saturé en eau où la solution de tensioactif et le gaz sont ensuite co-injectés. Cela est une cause de la dispersion des données expérimentales qui peut être observée dans les résultats de la littérature.

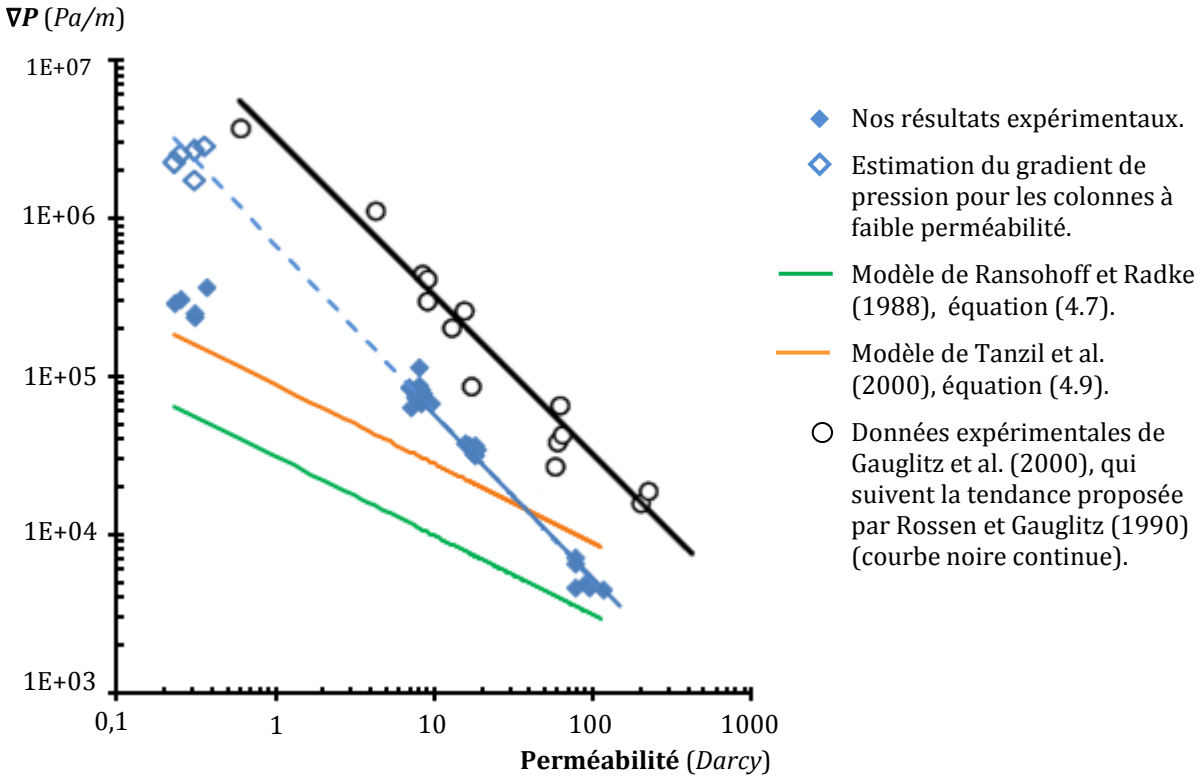


Figure 4.33. Comparaison des modèles de ∇P^{min} pour la génération de mousse (Rossen et Gauglitz, 1990 ; Tanzil *et al.*, 2002 ; Ransohoff et Radke, 1988) avec nos données expérimentales pour les tests de co-injection. Le ∇P pour les tests sur colonne à forte k est proportionnel à $k^{-1,15}$.

2.4.4. Saturation en eau des colonnes en régime permanent

La saturation en phase mouillante à l'état stationnaire est un indicateur de l'efficacité de déplacement par de la mousse des fluides initialement présentes dans la colonne. Cette saturation finale dépend à priori de la perméabilité $\boldsymbol{k}$ et de la fraction de liquide injectée. A l'échelle du pore, le gaz (sous forme de mousse) s'écoule à travers les pores de plus grande taille, et le liquide occupe les pores les plus petits. Ainsi, la fraction de gaz piégée par des lamelles stationnaires occupe les pores de taille intermédiaire. Cette fraction de gaz piégé diminue la surface poreuse disponible pour l'écoulement en réduisant considérablement la perméabilité relative (Apaydin et Kovscek, 2001).

La saturation de la phase liquide $\boldsymbol{S_w}$ pour chaque colonne en régime permanent est calculée à l'aide d'un bilan de masse (4.11) :

$$\boldsymbol{S_w = \frac{VP + Q_w\, t - V_w}{VP}} \qquad \textbf{(4.11)}$$

où $\boldsymbol{VP}$ est le volume de pore, $\boldsymbol{Q_w}$ est le débit injectée par la pompe, $\boldsymbol{V_w}$ est le volume de liquide récupéré à la sortie de la colonne et $\boldsymbol{t}$ est le temps.

La Figure 4.34 présente la saturation $\boldsymbol{S_w}$ en régime stationnaire pour les colonnes en fonction de la qualité de la mousse imposée (c'est-à-dire, en fonction du débit fractionnaire de liquide) et pour les deux tensioactifs utilisés. La Figure 4.35 présente les valeurs de saturation de la colonne en fonction de la perméabilité.

On observe que dans la plupart des cas, la valeur de la saturation finale est comprise entre *0,15* et *0,3*. On n'observe pas de tendance suivant la qualité de la mousse ni la perméabilité $\boldsymbol{k}$ du milieu. Concernant le type de tensioactif, on constate une plus grande dispersion des résultats pour le Triton® X-100, fait qui est facilement observable dans la Figure 4.34. De plus les valeurs de $\boldsymbol{S_w}$ atteintes avec ce produit sont les plus grandes.

En effet, les expériences de moussabilité hors milieu poreux ont montré que la mousse produite avec le Triton® X-100 n'était pas très résistante et sa stabilité était conditionnée par la présence d'avalanches. Dans les expériences en milieu poreux, on observe une plus forte variabilité des résultats en termes de saturation pour ce tensioactif. Cela peut être dû à la fragilité des lamelles, qui ne seraient pas capables de résister aux contraintes imposées par l'écoulement, collapseraient plus facilement et que le gaz n'est pas piégé dans le milieu et l'espace peut être occupé par le liquide.

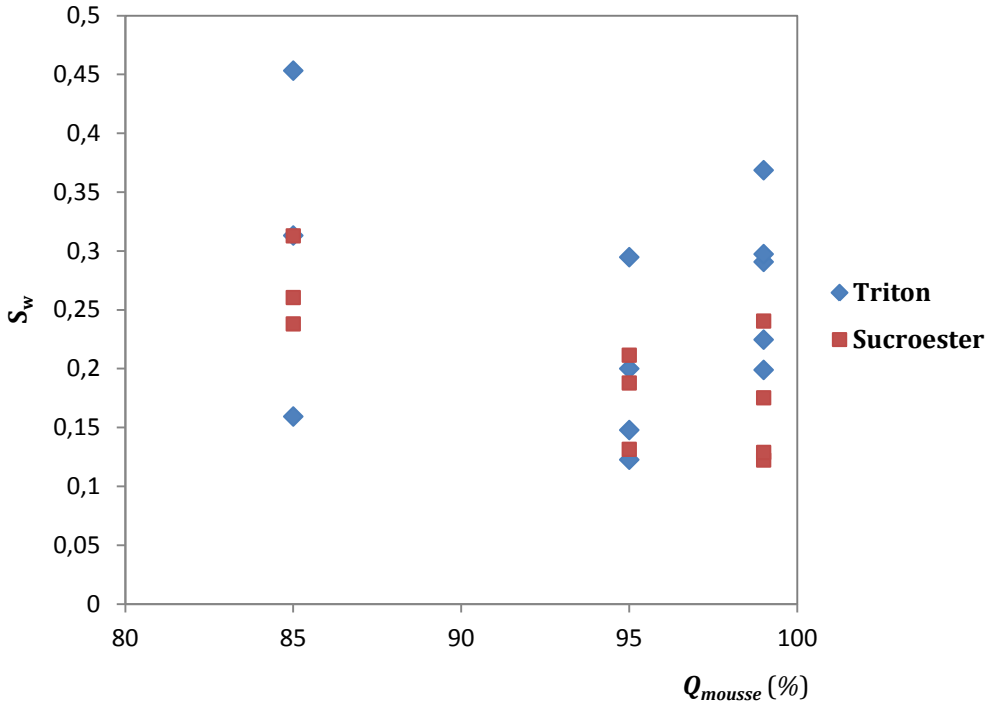


Figure 4.34. Saturation en liquide S_w en régime permanent pour les tests sur colonne en fonction de la qualité de mousse Q_{mousse} imposée à l'entrée.

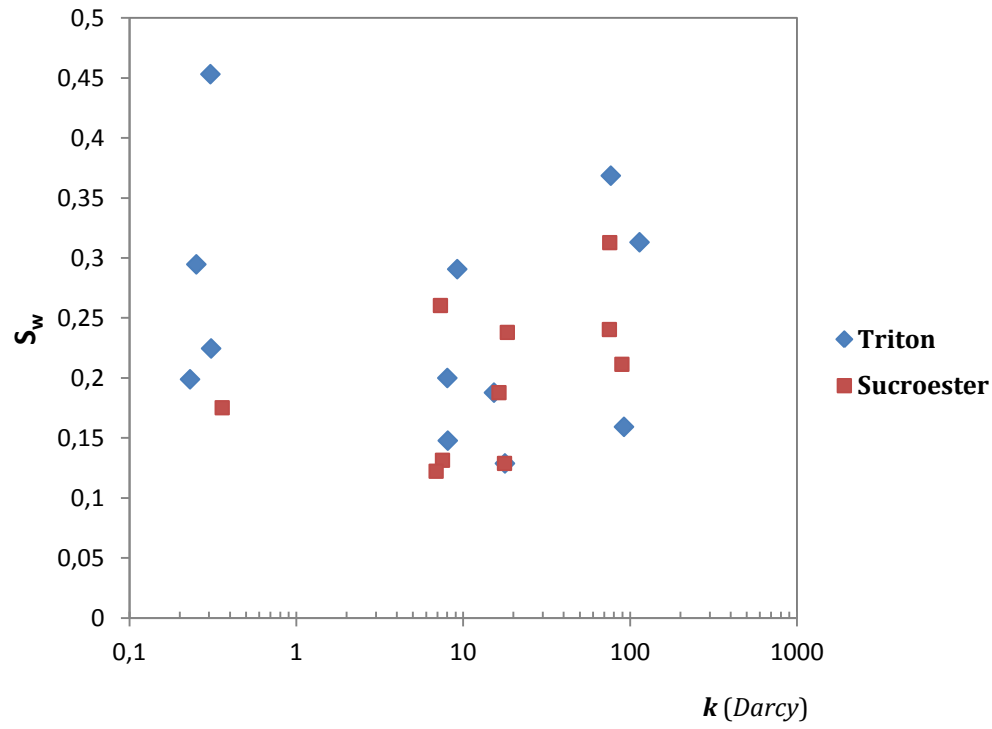


Figure 4.35. Saturation en liquide S_w en régime permanent pour les expériences sur colonne en fonction de la perméabilité k du milieu poreux.

2.5. Interprétation des résultats. Approche empirique en terme de viscosité de la mousse

Dans cette interprétation du facteur de résistance à la mobilité pour les expériences sur colonne on fait une analogie entre deux capillaires d'une même longueur $\boldsymbol{L}$ (correspondant à la longueur de la colonne) : dans le premier capillaire, il y a un débit $\boldsymbol{Q}$ de mousse, et dans le deuxième capillaire, le même débit $\boldsymbol{Q}$ mais d'eau. Le rayon des capillaires est égal au rayon de pore $\boldsymbol{r_{pore}}$ qui dépend de la perméabilité et peut être calculé à l'aide de l'expression (4.12) :

$$\boldsymbol{r_{pore} = \sqrt{\frac{8k}{\phi}}} \qquad \textbf{(4.12)}$$

Le Tableau 4.3 présente les caractéristiques des différents milieux poreux utilisés dans nos expériences sur colonne :

Tableau 4.3. Caractéristiques des milieux poreux utilisés dans les tests sur colonne. Le rayon de pore r_{pore} a été calculé à l'aide de l'expression (4.12).

Milieu poreux	Perméabilité (*Darcy*)	D_{50} (μm)	Rayon de pore r_{pore} (μm)
Spheriglass® 2000	*≃ 0,250*	*30*	*2,38*
BR37	*≃ 8*	*141*	*13*
NE34	*≃ 17*	*209*	*19*
MI 0,3/0,6	*≃ 75*	*452*	*39*

Pour calculer la perte de charge dans un capillaire, on utilise la formule de Hagen-Poiseuille (4.13) :

$$\boldsymbol{\Delta P = \frac{8\mu L Q}{\pi r_{pore}^4}} \qquad \textbf{(4.13)}$$

Le débit $\boldsymbol{Q}$ peut être exprimé comme $\boldsymbol{Q = v \cdot A}$, $\boldsymbol{v}$ étant la vitesse et $\boldsymbol{A}$ l'aire transversale. Si on remplace dans (4.13) avec $\boldsymbol{A = \pi \cdot r_{pore}^2}$, on obtient (4.14) :

$$\boldsymbol{\Delta P = \frac{8\mu L v}{r_{pore}^2}} \qquad \textbf{(4.14)}$$

La viscosité effective de la mousse $\boldsymbol{\mu_f}$ est exprimée à l'aide de l'expression 4.14 (Falls *et al.*, 1988 ; Ettinger et Radke, 1992 ; Kovscek et Radke, 1994) :

$$\mu_f = \mu_g + \frac{\alpha\, n_f}{v_{fg}{}^{1/3}} \qquad \textbf{(4.15)}$$

où μ_g est la viscosité du gaz, n_f exprime le nombre de bulles par unité de volume, α représente une constante de proportionnalité et v_{fg} est la vitesse du gaz qui circule (« *flowing gas* »). On considère que la viscosité du gaz μ_g est négligeable. Les différents paramètres sont calculés en faisant les hypothèses suivantes :

1) *Densité de bulles n_f*

n_f est définie comme le nombre de bulles par unité de volume de gaz qui circule. On suppose qu'il y a autant de bulles que de pores, le nombre de pores étant égal au nombre de grains dans la longueur L de la colonne (on prend D_{50} comme taille de grain représentatif). On exprime le volume de gaz qui circule V_{fg} comme le volume du capillaire multiplié par *0,8* (valeur moyenne de la saturation en gaz que l'on a obtenu pour les expériences sur colonne en régime permanent). La Figure 4.36 montre le schéma utilisé pour le calcul de n_f :

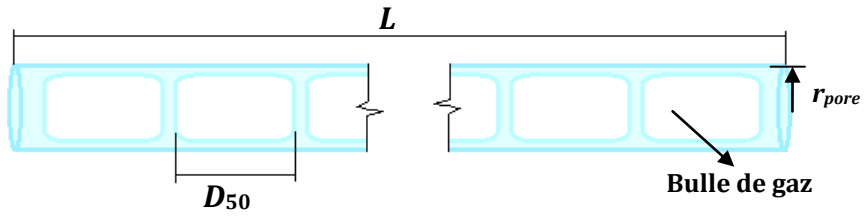


Figure 4.36. Schéma du capillaire utilisé pour le calcul de la densité de bulles n_f.

De cette façon, on obtient l'expression (4.16) pour n_f :

$$n_f \simeq \frac{\left(\frac{L}{D_{50}}\right)}{V_{fg}} = \frac{\left(\frac{L}{D_{50}}\right)}{0,8\,\pi\, r_{pore}^2\, L} \qquad \textbf{(4.16)}$$

2) *Vitesse du gaz v_g*

On suppose que le débit de gaz Q_g est égal au débit total Q_T (ceci implique de façon indirecte que la fraction de gaz piégée est nulle). Pour calculer la vitesse du gaz qui circule, v_{fg}, on divise le débit par l'aire transversale de la colonne A multiplié par la porosité ϕ (4.17) :

$$v_{fg} \simeq \frac{Q_T}{A\,\phi} = v \qquad \textbf{(4.17)}$$

3) Paramètre α.

Il s'agit d'une constante de proportionnalité qui varie avec la perméabilité $\boldsymbol{k}$ et le type de tensioactif à travers la tension superficielle $\boldsymbol{\sigma}$ (Kovscek et Bertin, 2003). On ajustera ce paramètre à l'aide des données expérimentales.

Le facteur de résistance à la mobilité ***RF*** peut être calculé à travers les relations (4.18) et (4.19), qui expriment la perte de charge dans un capillaire pour un écoulement d'eau et de mousse respectivement. Pour obtenir l'équation (4.19), on a intégré la définition de viscosité effective de la mousse (4.15) dans la formule de Hagen-Poiseuille (4.13).

Perte de charge pour un écoulement d'eau dans un capillaire

$$\boldsymbol{\Delta P_{eau} = \frac{8\mu L v}{r_{pore}^2}} \qquad \textbf{(4.18)}$$

Perte de charge pour un écoulement de mousse dans un capillaire

$$\boldsymbol{\Delta P_{mousse} = \frac{8\left(\frac{\alpha\, n_f}{v_{fg}{}^{1/3}}\right) L\, v}{r_{pore}^2}} \qquad \textbf{(4.19)}$$

Ainsi, on obtient l'expression (4.20) pour ***RF*** (on utilise l'hypothèse 2, $\boldsymbol{v_{fg} \simeq v}$) :

$$\boldsymbol{RF = \frac{\Delta P_{mousse}}{\Delta P_{eau}} = \frac{\alpha\, n_f}{\mu}\, v^{-1/3}} \qquad \textbf{(4.20)}$$

La valeur expérimentale de ***RF*** est connue pour chaque test. Le Tableau 4.4 présente les valeurs de $\boldsymbol{n_f}$, $\boldsymbol{v}$ et $\boldsymbol{\alpha}$ calculées à partir des équations (4.16), (4.17) et (4.20) respectivement.

La Figure 4.37 montre les valeurs obtenues pour $\boldsymbol{\alpha}$. On observe que ce paramètre dépend de la perméabilité et que l'on peut faire un ajustement linéaire. On constate que pour des faibles valeurs de la perméabilité, on s'éloigne de la linéarité.

Tableau 4.4. Valeurs de n_f, v_g et α obtenus pour les expériences sur colonne.

Test	L (m)	ϕ	k ($Darcy$)	r_{pore} (μm)	Q (mL/min)	RF	n_f ($bulles/m^3$)	v (m/s)	α ($Pa{\cdot}s^{2/3}m^{10/3}$)
1	0,323	0,33	0,252	2,47	1,77	3,92	2,18E+15	5,86E-05	6,99E-20
2	0,388	0,33	0,360	2,95	1,674	6,51	1,53E+15	5,53E-05	1,62E-19
3	0,382	0,33	0,309	2,72	1,74	3,69	1,79E+15	5,71E-05	7,92E-20
4	0,378	0,34	0,231	2,34	1,728	3,09	2,43E+15	5,59E-05	4,86E-20
5	0,386	0,34	0,306	2,69	1,884	3,72	1,84E+15	6,09E-05	7,96E-20
6	0,422	0,40	8,04	12,6	2,478	22,26	1,78E+13	6,71E-05	5,09E-17
7	0,406	0,39	8,23	13,2	2,694	22,07	1,62E+13	7,81E-05	5,82E-17
8	0,419	0,39	7,52	12,5	2,478	20,73	1,82E+13	7,01E-05	4,70E-17
9	0,415	0,38	6,89	12,0	2,484	20,69	1,95E+13	7,17E-05	4,42E-17
10	0,421	0,40	8,09	12,7	2,376	19,68	1,76E+13	6,44E-05	4,48E-17
11	0,421	0,41	9,22	13,5	2,532	19,31	1,55E+13	6,84E-05	5,08E-17
12	0,42	0,38	7,31	12,5	2,616	19,16	1,82E+13	7,62E-05	4,48E-17
13	0,422	0,36	17,1	19,5	2,766	16,97	7,42E+12	8,42E-05	1,00E-16
14	0,42	0,36	16,4	19,0	2,676	18,73	5,24E+12	8,12E-05	1,55E-16
15	0,42	0,35	15,3	18,7	2,736	17,68	5,45E+12	8,56E-05	1,43E-16
16	0,422	36,13	17,7	19,8	2,772	20,26	4,86E+12	8,41E-05	1,83E-16
17	0,423	36,2	17,8	19,8	2,772	16,65	4,84E+12	8,39E-05	1,51E-16
18	0,42	36,3	18,4	20,1	2,754	19,78	4,69E+12	8,32E-05	1,84E-16
19	0,42	32,86	76,7	43,2	2,88	13,09	4,71E+11	9,61E-05	1,27E-15
20	0,414	32,06	75,6	43,4	2,832	15,63	4,67E+11	9,68E-05	1,54E-15
21	0,417	34,04	114	51,8	2,952	14,84	3,29E+11	9,51E-05	2,06E-15
22	0,408	32,05	89,4	47,2	2,958	14,43	3,94E+11	1,01E-04	1,70E-15
23	0,421	32,15	92	47,8	3,036	14,10	3,85E+11	1,04E-04	1,72E-15
24	0,412	32,86	75,24	42,8	2,97	15,14	4,81E+11	9,91E-05	1,46E-15

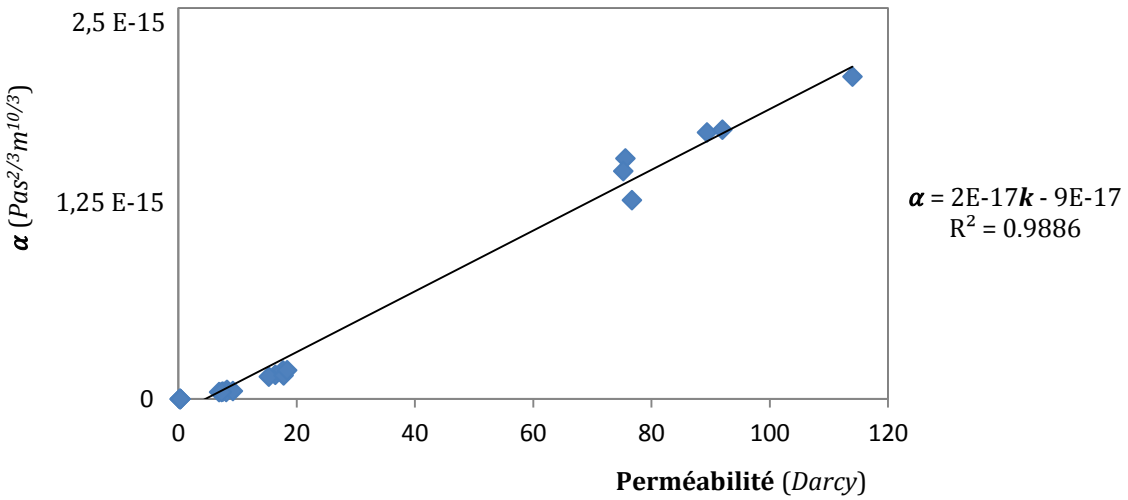


Figure 4.37. Paramètre α en fonction de la perméabilité k pour les tests sur colonne.

2.6. Discussion

Les tests d'écoulement de mousse sur colonne pour des différentes perméabilités ont montré que le facteur de résistance à la mobilité ***RF*** diminue quand la perméabilité augmente, mais pour des faibles perméabilités (< *1 Darcy*) il y a un changement dans la tendance de la courbe et le facteur de résistance à la mobilité est plus faible que prévu. Ce comportement peut être expliqué avec un modèle basé sur la pression capillaire.

La pression capillaire P_c imposée par le milieu poreux est une fonction monotone de la saturation S_w. Ainsi, quand on injecte du gaz, la saturation de la phase mouillante diminue et la pression capillaire augmente. Si la valeur de P_c^* est atteinte (ce qui se produira plus facilement pour des milieux poreux à faible perméabilité, comme c'est le cas des colonnes à $k \simeq 250$ *millidarcy*), les lamelles ne sont pas stables et le taux de coalescence augmente, en produisant une mousse instable avec des bulles plus grosses (de type « *weak foam* »), qui donne un ***RF*** faible. Ce phénomène a été observé pendant l'état transitoire : quand le front de mousse se déplace vers la sortie de la colonne et le milieu poreux se désature (et en même temps la valeur de P_c augmente), la texture de la mousse générée subit un changement abrupt qui se manifeste visuellement mais aussi à travers la courbe de perte de charge, où le gradient de pression diminue. En effet, la coalescence des lamelles est directement liée à la pression capillaire limite P_c^*, dont la valeur dépend de plusieurs paramètres (vitesse d'écoulement du gaz, milieu poreux, concentration en tensioactif, etc.). Dans nos expériences on étudie l'effet de la perméabilité du milieu sur la P_c^*, Apaydin et Kovscek (2001) ont constaté le même effet sur la variation de texture de la mousse en fonction de la concentration en tensioactif pour une même perméabilité. Le Tableau 4.5 montre la valeur de la pression capillaire limite P_c^* en fonction de la concentration en tensioactif. Les auteurs ont réalisé des expériences de co-injection de gaz et solution de tensioactif (AOS 1416) à des débits fixes sur des colonnes de perméabilité k = *7 Darcy* et présaturées en solution de tensioactif. Les résultats en terme de pression sont modélisés à l'aide du « *Bubble Population Balance Model* ». La Figure 4.38 présente les résultats de la modélisation de texture de la mousse et les courbes de pression expérimentales et modélisées pour deux cas.

Tableau 4.5. Valeurs de pression capillaire limite P_c^* pour des différentes concentrations de tensioactif (Apaydin et Kovscek, 2001).

Concentration tensioactif *(% en masse)*	**Pression capillaire limite** P_c^* (kPa)
1	*30,4*
0,1	*17,6*
0,020	*7,19*
0,01	*3,67*
0,005	*2,34*

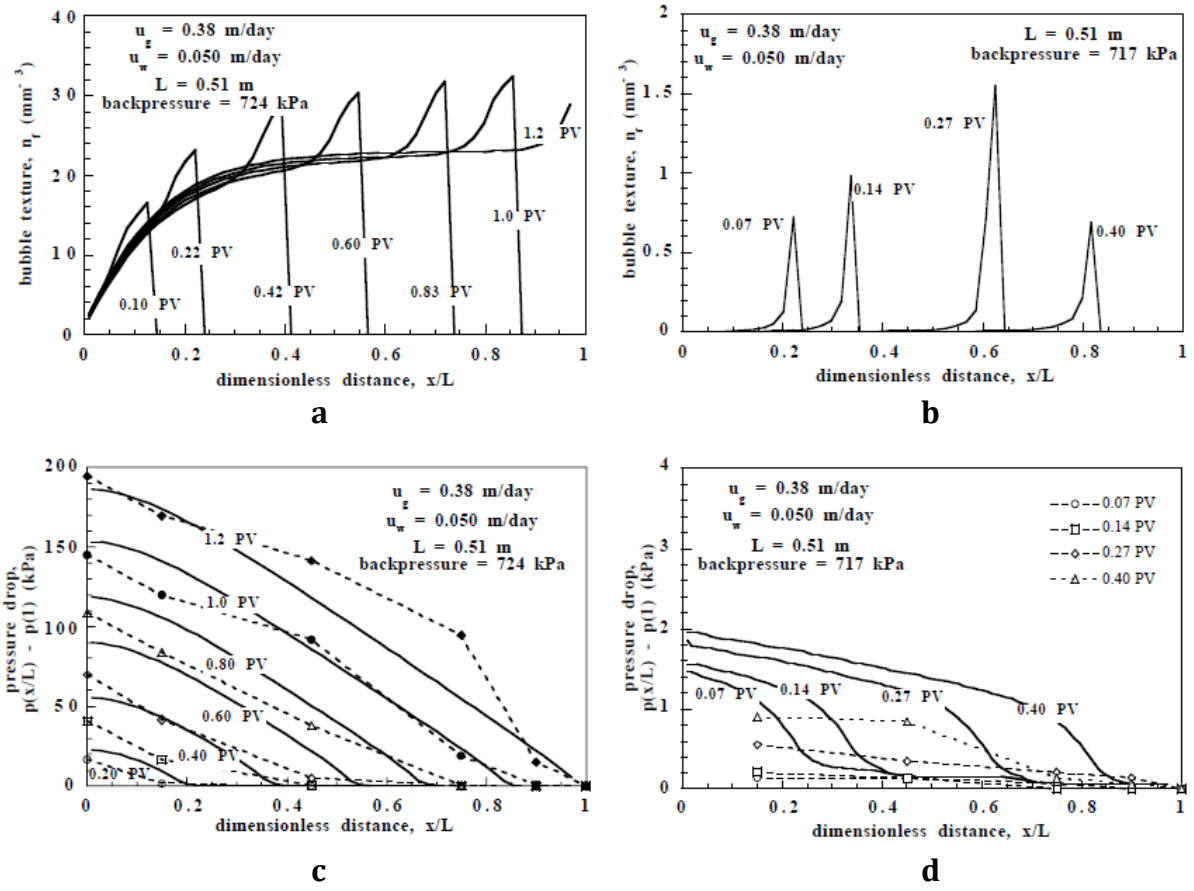


Figure 4.38. Modélisation des profils de texture de mousse avant percée: pour une concentration en tensioactif égale à *C = 1 %* (a) et pour *C = 0,005 %* (b). Courbes de pression (avant percée) expérimentales (lignes pointillées) et modélisées (lignes continues) pour *C = 1 %* (c) et pour *C = 0,005 %* (d) (Apaydin et Kovscek, 2001).

Pour une concentration ***C*** = *1 %* on observe que la texture de la mousse est typique de la « *strong foam* » (Figure 4.38a) et les profils de pression (Figure 4.38c) indiquent un gradient de pression élevé et quasi-constant le long de la colonne. Cette situation est la même que pour nos expériences à forte perméabilité, où la valeur de la pression capillaire est inférieure à la valeur critique P_c^*. Pour une concentration ***C*** = *0,005 %* on observe qu'un front de mousse de texture fine se génère en amont (« *strong foam* »), et quand la saturation de liquide diminue, la pression capillaire atteint la valeur critique P_c^* et la mousse générée est faible (la texture est typique de la « *weak foam* ») (Figure 4.38b). Ce phénomène se traduit aussi dans les courbes de pression le long de la colonne (Figure 4.38d). On observe que le gradient de pression dans la zone occupée par la « *strong foam* » est fort et diminue par la suite. On a observé le même type de comportement dans nos expériences à faible perméabilité.

La comparaison de l'étude menée par Apaydin et Kovscek (2001) avec nos expériences sur colonne (où l'influence de la perméabilité est mise en évidence) montre que le comportement de la mousse en termes de gradient de pression et texture est le même une fois atteinte la pression capillaire limite. Ainsi, on peut conclure que pour générer de la « *strong foam* » on ne doit pas dépasser cette valeur limite de pression capillaire, qui

dépend de la concentration de tensioactif mais aussi des caractéristiques du milieu poreux (perméabilité, longueur, etc.).

Nos expériences suggèrent aussi que pour des perméabilités plus fortes (*8*, *15* et *100 Darcy*), les valeurs du RF sont grandes et indiquent la formation de « *strong foam* ». Ceci implique que la valeur de la pression capillaire est plus faible que la pression capillaire limite et la mousse formée est stable. Comme la pression capillaire diminue quand la perméabilité augmente, cela veut dire que pour un débit donné, des plus faibles valeurs de pression sont nécessaires pour que les lamelles s'écoulent. Cela explique le fait que pour cette gamme de perméabilités, le ***RF*** diminue quand la perméabilité augmente.

Nous avons également constaté que la qualité de la mousse $\boldsymbol{Q_{mousse}}$ ne semble pas avoir un effet très important sur le ***RF*** (pour la gamme de valeurs utilisées dans cette étude). Ainsi on peut fabriquer une mousse stable par co-injection d'air et de solution de tensioactif avec des fortes qualités de mousse, ce qui implique un faible débit fractionnaire de liquide et par conséquence de tensioactif. Cela est un avantage du point de vue économique, étant donné que le prix des agents tensioactifs peut représenter une contrainte budgétaire pour mener un projet de remédiation.

Par rapport au type de tensioactif, on a constaté que ce paramètre ne semble pas avoir une influence importante sur ***RF***. Ainsi les mousses générées avec laurate de saccharose donnent des valeurs de ***RF*** similaires à celles obtenues avec du Triton® X-100. Cela veut dire que les sucroesters peuvent être adaptés à ce type d'application, avec l'avantage d'être biodégradables et non toxiques.

Le graphique du ***RF*** en fonction de la perméabilité présenté est utile pour connaître le type de mousse générée (« *weak foam*» ou « *strong foam*») et ensuite prédire le comportement des écoulements de mousse dans des milieux poreux de différentes perméabilités.

3. Grande échelle. Expériences sur pilotes 2-D

Les différentes étapes du processus de remédiation de lavage de sols avec des solutions de tensioactif combiné avec la génération de mousse *in situ* ont été réalisées sur deux pilotes de type bicouche simulant la zone saturée d'un aquifère. Des tests de traçage avec et sans la présence de mousse et leur simulation numérique permettent de visualiser la forme du front d'avancement du liquide et quantifier l'amélioration en terme d'efficacité de balayage et réduction de mobilité du gaz. Ces expériences à l'échelle du laboratoire mettent en évidence les avantages de la technique et les difficultés de mise en œuvre, et sont très utiles pour mettre au point le processus avant de passer à l'échelle du terrain.

3.1. Résultats pour le *Pilote 1*

3.1.1. Calcul du volume de pores

Le volume de pores (et la porosité $\boldsymbol{\phi}$) de chaque couche peut être calculé facilement à partir de la masse de sable utilisée, les dimensions et la densité du sable (*2650 kg/m³*). Le Tableau 4.6 présente les données pour les deux parties du *Pilote 1* :

Tableau 4.6. Caractéristiques des couches du *Pilote 1*.

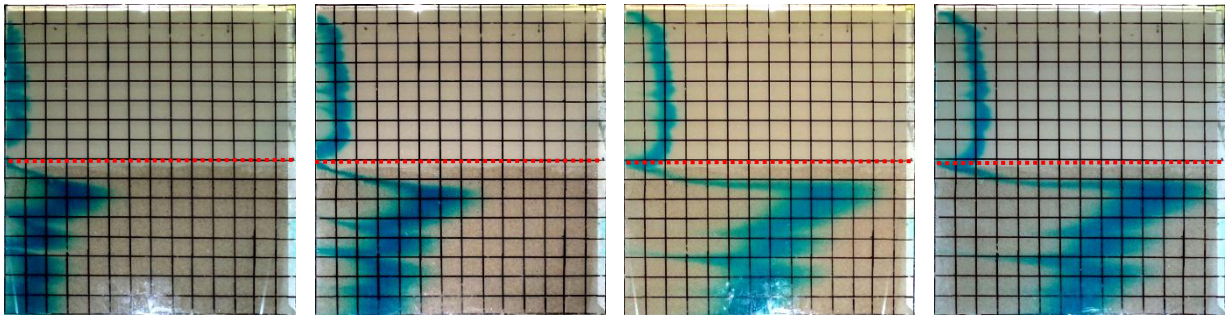
	Couche supérieure (à faible *k*)	**Couche inférieure (à forte *k*)**
Masse de sable (*kg*)	*3,432*	*3,868*
Hauteur (*m*)	*0,24*	*0,23*
Volume Total (*L*)	*2,130*	*2,024*
Volume de Pore (*L*)	*0,835*	*0,564*
Porosité $\boldsymbol{\phi}$ (*%*)	*39,18*	*27,9*

3.1.2. Test de traçage. Estimation de la perméabilité

Pendant ce test, on injecte du liquide à travers les piquages 1, 2, 3, 4, 6, 7 et 8. Le débit total, mesuré à l'aide du montage présenté dans la Figure 3.28, est égal à $\boldsymbol{Q_w}$ *= 11 mL/min* (*1,57 mL/min* par injecteur). La perte de charge est mesurée à l'aide des colonnes de liquide (piquage 5) et est égale à $\boldsymbol{\Delta P}$ *= 3 cm d'eau = 294 Pa*.

La Figure 4.39 montre la position du front d'avancement au cours du test de traçage avec le colorant. On observe que l'efficacité du balayage est faible dans la couche supérieure (à faible perméabilité), l'eau s'écoulant préférentiellement à travers la couche la plus perméable. La position des fronts d'avancement est utilisée pour modéliser ce test à l'aide de MODFLOW et MT3D et obtenir la perméabilité de chaque

couche. Le meilleur calage nous donne k_1 = *11,3 Darcy* et k_2 = *61,6 Darcy* (Chapitre 5, section 2.2.1).

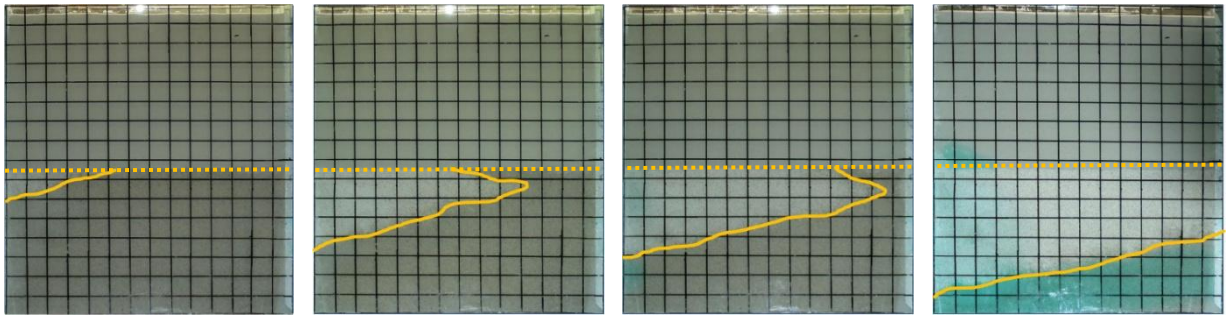


a) t = *0 min* b) t = *12 min* c) t = *32 min* d) t = *37 min*

Figure 4.39. Positions du front d'avancement du liquide pendant le premier test de traçage pour le *Pilote 1.* On observe que l'efficacité de balayage est très faible dans la couche supérieure.

3.1.3. Co-injection

Après avoir injecté environ deux volumes de pore de solution de Triton® X-100, concentration égale à C_{ta} = *10* fois la CMC (qui s'écoulent préférentiellement à travers la couche la plus perméable), de l'air et de la solution de tensioactif sont co-injectés à travers le piquage numéro 1 à des débits fixes (pour le gaz Q_g = *16,75* mL_n/min et pour le liquide Q_w = *2 mL/min*, ce qui donne une qualité $Q_{mousse} \simeq$ *90 %*). La Figure 4.40 montre la position du front de mousse pour des différents instants lors du test de co-injection.



a) t = *0 min* b) t = *27 min* c) t = *45 min* d) t = *173 min*

Figure 4.40. Déplacement du front de mousse pendant le test de co-injection pour le *Pilote 1.*

La Figure 4.40 montre que la mousse est générée *in situ* dans la couche la plus perméable et qu'elle progresse horizontalement. La forme de la région occupée par de la mousse est triangulaire, probablement à cause de l'effet de la gravité. Une fois le régime permanent atteint, $\simeq$ *65 %* de la surface de cette zone est occupée par de la mousse.

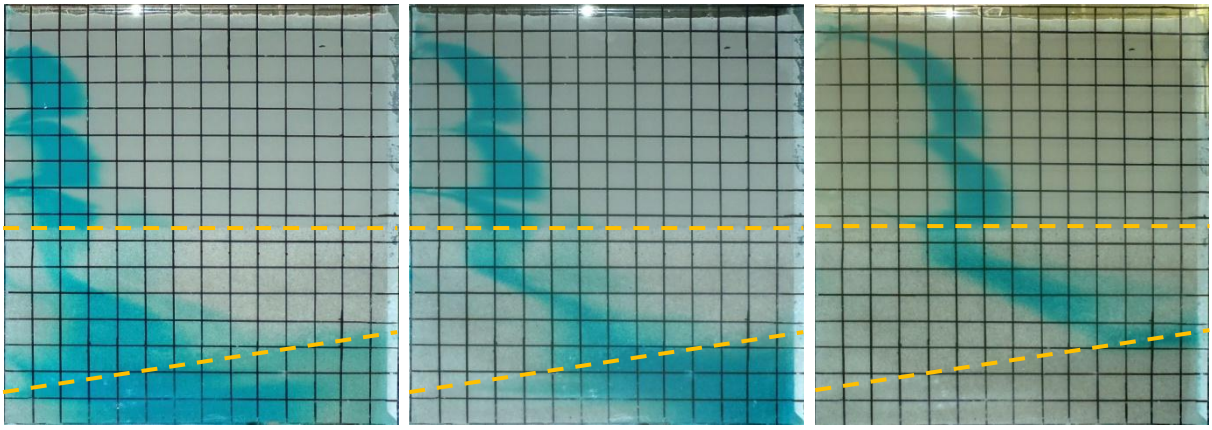
On observe que le gaz ne rentre pas dans la couche supérieure (à faible perméabilité). Cela peut être dû à une pression capillaire d'entrée trop grande qui empêche au gaz de s'écouler à travers cette zone.

3.1.4. Réinjection de liquide

Après le test de co-injection, de la solution de tensioactif est réinjectée à travers les piquages 1, 2, 3, 4, 5, 6 et 7. Le débit total, mesuré à l'aide du montage présenté dans la Figure 3.28, est égal à $\boldsymbol{Q_w}$ = *10 mL/min* (*1,43 mL/min* par injecteur). L'aspiration de liquide se fait à travers les piquages homologues correspondants. Dans cette expérience, la pompe fonctionne en circuit ouvert, ce qui risque de donner des débits d'aspiration et d'injection légèrement différents. Pour corriger ce défaut de fonctionnement de la pompe, de l'eau est rajouté si la partie supérieure s'assèche ; par contre si une lame d'eau libre se développe en surface, l'excès de liquide est éliminé. Malgré tous les efforts, la précision du débit n'est pas très bonne et on constate qu'il varie au cours du temps, comme on l'expliquera dans le Chapitre 5.

Afin de visualiser le front de déplacement, un pulse de colorant bleu est utilisé. La Figure 4.41 montre les positions de ce front pour différents instants lors de ce test. Si on compare les fronts d'avancement présentés dans la Figure 4.41 et la Figure 4.39, on constate que la présence d'une région bloquée par de la mousse améliore nettement l'efficacité du balayage dans la couche peu perméable. Les propriétés de la portion de la couche très perméable où il n'y a pas de mousse restent inchangées.

Ce test a été modélisé avec MODFLOW et MT3D afin d'obtenir la nouvelle perméabilité de la zone occupée par de la mousse et connaître la réduction de perméabilité de la zone bloquée par de la mousse. (voir Chapitre 5, section 2.2.2)



a) $\boldsymbol{t}$ = *0 min* b) $\boldsymbol{t}$ = *22 min* c) $\boldsymbol{t}$ = *65 min*

Figure 4.41. Fronts d'avancement expérimentaux pendant le test de traçage après la co-injection de solution de tensioactif et gaz pour le *Pilote 1*. La zone occupée par de la mousse est limitée par des lignes pointillées jaunes.

3.2. Résultats pour le *Pilote 2*

Le deuxième pilote réalisé a une longueur double que le premier (*0,95 m* vs. *0,44 m*). Le but est d'observer l'évolution des fronts d'avancement et vérifier si on est capable de générer de la mousse *in situ* sur des distances plus longues.

3.2.1. Calcul du volume de pores

Comme dans le cas précédent, le volume de pores (et la porosité ϕ) de chaque couche est calculé à partir de la masse de sable utilisée, les dimensions et la valeur de la densité du sable (*2650 kg/cm³*). Le Tableau 4.7 présente les données pour les deux parties du *Pilote 2* :

Tableau 4.7. Caractéristiques des couches du *Pilote 2*.

	Couche supérieure	**Couche inférieure**
Masse de sable (*kg*)	*7,834*	*8,113*
Hauteur (*m*)	*0,24*	*0,24*
Volume Total (*L*)	*4,560*	*4,560*
Volume de Pore (*L*)	*1,604*	*1,499*
Porosité ϕ (*%*)	*35,17*	*32,86*

3.2.2. Test de traçage. Estimation de la perméabilité.

Le liquide est injecté grâce aux 8 piquages et aspiré à travers leurs homologues. Le débit total est égal à Q_w = *11,6 mL/min (1,45 mL/min* par injecteur*)*. La perte de charge est mesurée à l'aide des colonnes de liquide : ΔP = *5,4 cm d'eau* (*529,2 Pa*) pour le piquage b (couche à faible k) et ΔP = *2,8 cm d'eau* (*274,4 Pa*) pour le piquage a (couche à forte k).

La Figure 4.43 montre la position du front d'avancement de liquide au cours du test de traçage avec le colorant (la première image (a) correspond à t = 0 pour la modélisation décrite dans le Chapitre 5). On constate que l'efficacité de balayage est faible dans la couche supérieure (à faible perméabilité), l'eau s'écoulant préférentiellement à travers la couche la plus perméable. La position du front d'avancement est utilisée pour modéliser ce test de traçage à l'aide de MODFLOW et MT3D et obtenir la perméabilité de chaque couche (voir Chapitre 5, section 2.3.1). Le meilleur calage donne des perméabilités k_1 = *13,3 Darcy* (K_1 = *0,8 cm/min*) et k_2 = *61,6 Darcy* (K_2 = *3,7 cm/min*).

3.2.3. Co-injection

Après avoir injecté environ deux volumes de pore de solution de Triton® X-100 (C_{ta} = *10* fois la CMC), qui s'écoulent préférentiellement à travers la couche la plus perméable, de l'air et de la solution de tensioactif sont co-injectés à travers le piquage 1 à des débits fixes (pour le gaz égal à Q_g = *16,75* mL_n/min et pour le liquide égal à Q_w = *2 mL/min*, ce qui donne une qualité $Q_{mousse} \simeq$ *90 %*). En même temps le liquide est aspiré à travers les 8 piquages correspondants. La pompe péristaltique fonctionnant en circuit ouvert, il est compliqué d'avoir le même débit à l'entrée qu'à la sortie comme on a déjà expliqué. Pour cette raison, on rajoute du liquide si la partie supérieure s'assèche ou on enlève le liquide en excès si une couche d'eau libre se développe en surface.

Pendant cette expérience on a observé qu'un écoulement préférentiel du gaz s'est développé au contact de la surface métallique des rails (où les injecteurs sont fixés). Ainsi, une partie du gaz injecté monte directement à la surface. Néanmoins, ce fait n'empêche pas la formation de mousse *in situ* dans la couche à forte k (il faut prendre en compte que l'aspiration de liquide crée un écoulement, même si on perd une partie du gaz injecté). La Figure 4.44 montre la position du front de mousse pour différents temps lors du test de co-injection. Comme dans le cas du *Pilote 1*, le gaz ne pénètre pas la couche à faible k et se déplace horizontalement, la forme de la région triangulaire étant occupée par de la mousse. En régime permanent, *62 %* du volume de la couche à forte k contient de la mousse.

3.2.4. Réinjection de liquide

Après le test de co-injection, on réinjecte de la solution de tensioactif à travers les 8 piquages, le débit total étant égal à Q_w = *11,6 mL/min*. Encore une fois, comme la pompe fonctionne en circuit ouvert pendant cette expérience, le débit risque de varier au cours du temps et on doit surveiller la surface libre continument pour éviter la formation de couches d'eau libre ou des assèchements. Afin de visualiser le front de déplacement, on utilise un pulse de colorant. La Figure 4.45 montre les positions de ce front pour des différents instants lors de ce test. La première image (a) correspond à t = 0 pour la modélisation décrite au Chapitre 5.

Si on compare les fronts d'avancement présentés dans la Figure 4.45 et la Figure 4.43, on constate que la présence d'une région bloquée avec de la mousse améliore nettement l'efficacité du balayage dans la couche peu perméable. Les propriétés de la portion de la couche très perméable où il n'y a pas de mousse restent inchangées.

On observe que pendant cette expérience une partie du gaz présent dans la zone occupée par de la mousse est mobile et s'écoule vers la sortie du pilote, comme le montre la Figure 4.42.

Dans cette figure on peut voir la présence de mousse de différentes textures, en fonction du milieu poreux où elle a été générée. En effet, la mousse que l'on observe dans les tubes de sortie « a » et « b » provient de la région occupée par de la mousse, et sa texture est plutôt grossière, avec des bulles de grande dimension. On observe également des différences entre la texture de la mousse de ces deux tubes, ce qui reflète que la mousse présente dans cette zone n'est pas homogène. Le troisième tube (nommé « c ») contient de la mousse qui a traversé la couche peu perméable (la mousse n'est pas générée dans cette zone mais à proximité des piquages d'aspiration il y a des phénomènes de bord, et

une partie du gaz traverse le milieu poreux). Cette mousse est plus humide et elle présente une texture beaucoup plus fine, ce qu'implique que le gaz est beaucoup moins mobile dans le milieu poreux à faible ***k***. En comparant cette mousse avec celle des tubes « a » et « b », on constate que la taille des bulles est aussi liée à la taille des pores où elle est générée.

Cette mobilisation du gaz se traduit par une augmentation de la saturation en liquide de la zone occupée par de la mousse. Ce fait peut être observé au cours du test de réinjection de liquide, où la couleur de la zone occupée par de la mousse change avec le temps et devient plus foncée, ce qui indique que la saturation en eau augmente (on peut comparer les Figure 4.44 d et h, par exemple).

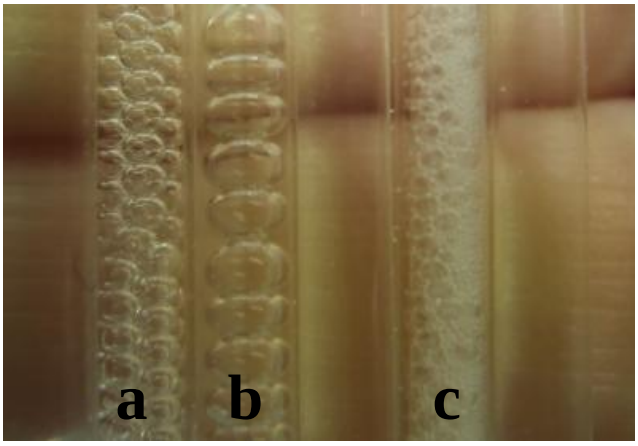
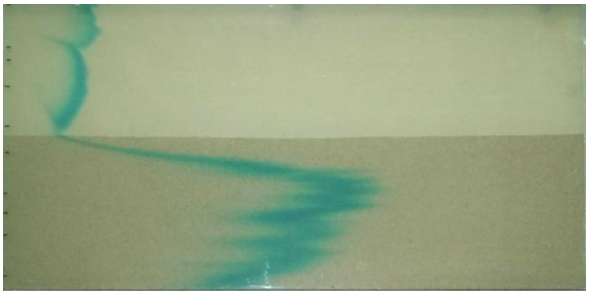


Figure 4.42. Détail des tuyaux de sortie du *Pilote 2* pendant le test de réinjection de liquide après la co-injection. Des différences de texture de mousse sont observées. Le tuyau « a » correspond au piquage 4, le « b » au piquage 3 et le « c » au piquage 5.

.

a) ***t*** = *0 min*



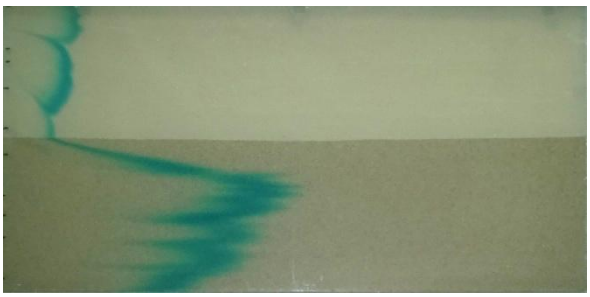
e) ***t*** = *74 min*

b) ***t*** = *16 min*

f) ***t*** = *91 min*

c) ***t*** = *32 min*

g) ***t*** = *105 min*



d) ***t*** = *52 min*

h) ***t*** = *127 min*

Figure 4.43. **Fronts d'avancement pendant le premier test de traçage pour le *Pilote 2*.**

Note : La présence d'une barre métallique dans la partie supérieure du Pilote 2 (pour rigidifier la structure et limiter la déformation des parois en verre) fait que dans les photos on n'observe pas la couche supérieure complète. Ainsi, on ne voit que 20,5 cm des 24 cm de hauteur de la couche à faible perméabilité. La partie visible dans les photos a une longueur de 91 cm et une hauteur de 44,5 cm.

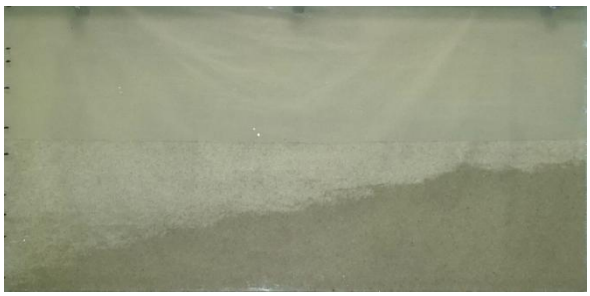
a) ***t*** = *0 min*

e) ***t*** = *28 min*

b) ***t*** = *7 min*

f) ***t*** = *38 min*

c) ***t*** = *13 min*



g) ***t*** = *75 min*

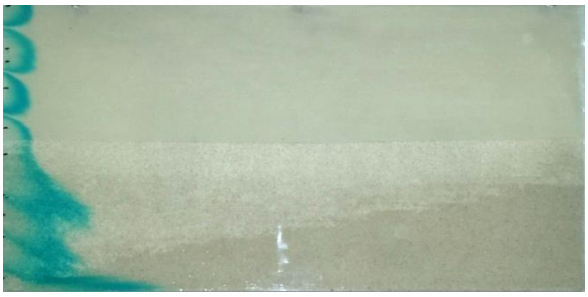
d) ***t*** = *16 min*

h) ***t*** = *139 min*

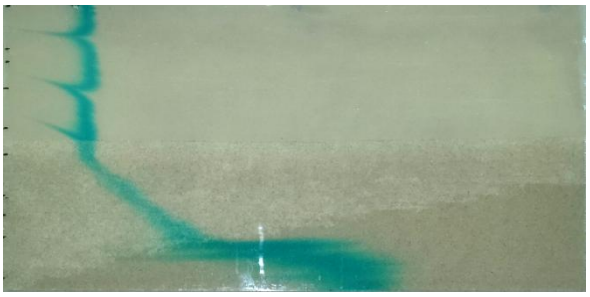
Figure 4.44. **Fronts d'avancement de mousse pendant le test de co-injection pour le *Pilote 2*.**

a) ***t*** = *0 min*

e) ***t*** = *43 min*

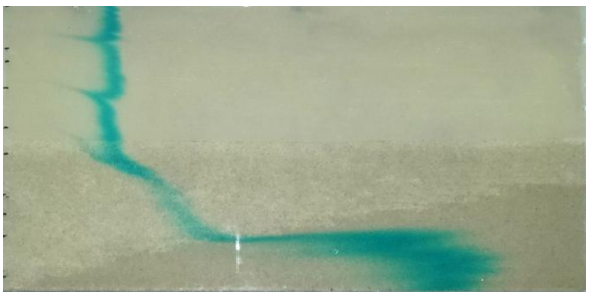


b) ***t*** = *6 min*



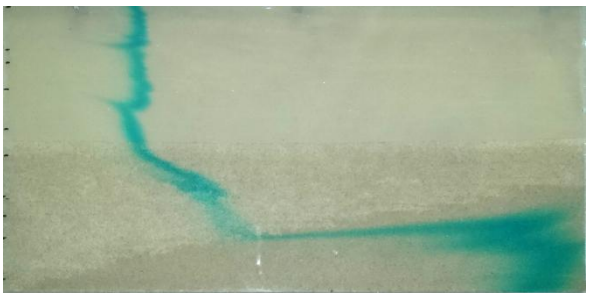
f) ***t*** = *62 min*

c) ***t*** = *16 min*



g) ***t*** = *94 min*

d) ***t*** = *35 min*



h) ***t*** = *115 min*

Figure 4.45. **Fronts d'avancement pour le deuxième test de traçage pendant la réinjection de liquide pour le *Pilote 2*.**

3.3. Discussion

Les tests sur pilotes 2-D hétérogènes ont permis la visualisation des différentes étapes du processus de remédiation de lavage de sols avec combiné avec la génération de mousse *in situ*. Les tests de traçage initiaux montrent que l'efficacité de balayage est très faible dans la couche la moins perméable, la plupart du liquide s'écoulant à travers la zone à forte ***k***.

Dans la deuxième étape, la co-injection de solution de tensioactif et du gaz, on arrive à générer de la mousse *in situ* dans la couche à forte ***k***. Dans le *Pilote 2* on a eu des difficultés durant cette étape, car une partie du gaz injectée migrait directement en surface à travers un chemin préférentiel en contact avec les rails métalliques. Néanmoins, ce problème n'a pas empêché la formation de mousse. Ceci met en évidence l'importance de développer un bon système d'injection, car autrement le gaz injecté monte directement en surface. La mousse générée se déplace horizontalement à travers la partie très perméable du pilote et ne rentre pas dans la couche à faible ***k***, probablement parce que celle là constitue une barrière capillaire pour l'écoulement du gaz. En d'autres termes, la pression capillaire d'entrée pour le gaz est très grande.

L'application de cette technique exige une bonne connaissance des caractéristiques du terrain. La migration du gaz injecté vers la zone non saturée de l'aquifère est un aspect très important. Cela conduirait à la diminution du gaz disponible pour générer de la mousse dans les zones que l'on souhaite bloquer. Les expériences ont montré que la présence d'une couche à faible perméabilité empêche le gaz de monter en surface. Ainsi, concernant la stratégie d'injection sur pilote 2-D les conditions les plus favorables ont été utilisées: injection de gaz directement dans la couche qui doit être bloquée et présence d'une couche peu perméable comme toit. Il serait intéressant de voir ce qui se passerait dans la situation inverse : gaz injectée dans la couche peut perméable et une couche à forte ***k*** au dessus. Hirasaki *et al*. (1997) affirment que dans les aquifères stratifiées, si le gaz est injecté dans une couche à faible ***k***, le gaz remonterait vers la surface et l'interface faible ***k***/forte ***k*** représenterait une zone de création de lamelles par « *snap-off* ». Ainsi la présence d'hétérogénéités pourrait favoriser la génération de mousse *in situ*.

Certains auteurs expliquent que la pression d'injection du gaz est un facteur très important pour éviter la ségrégation gravitaire du gaz, permettant d'atteindre une meilleure efficacité de balayage ainsi que des valeurs de saturation en phase gaz plus grands. Ce fait est lié aux conditions nécessaires pour la génération de « *strong foam* », comme expliqué dans la section 2.4.3 de ce chapitre. En plus, cette texture favorise le déplacement horizontal du front de mousse (Li *et al*., 2006). Il serait intéressant de vérifier l'influence de ce paramètre sur l'efficacité du blocage, mais les conditions de surface libre limitent énormément la valeur de pression d'injection (ou de débit de gaz) applicable.

Dans la troisième phase, on a réinjecté de la solution de tensioactif et à l'aide d'un pulse de colorant la forme du front d'avancement du fluide est observable. En comparant ce test de traçage avec celui de la phase 1 (sans présence de mousse), on constate que la forme du front d'avancement est plus nette, cela induit donc que la couche à faible perméabilité est mieux balayée. Par contre on observe certaines différences durant ce test pour le *Pilote 1* et le *Pilote 2*. Dans le test sur le pilote de plus grand largueur on constate qu'une partie du gaz est mobile et sort du pilote. Ainsi, avec le temps la zone

occupée par de la mousse devient de plus en plus humide et une plus grande quantité de liquide peut s'écouler à travers cette zone. Ce phénomène produit une modification de la perméabilité relative pour la phase liquide au cours du temps durant cette expérience, ce qui peut représenter une difficulté pour la modélisation numérique. Ainsi, l'efficacité du « blocage » de la couche la plus perméable diminue avec le temps. Il est probable que ce phénomène ait eu lieu aussi pour le *Pilote 1*, mais les dimensions étant plus petites, les expériences ont été moins longues et le changement de saturation était alors moins marqué. Une solution possible serait de reprendre la co-injection de gaz et de solution de tensioactif afin de régénérer de la mousse dans cette zone. Ainsi, l'alternance des étapes de co-injection avec l'injection de liquide garantirait la présence de mousse dans la zone que l'on souhaite bloquer. On notera que cette technique est utilisée en génie pétrolier sous le nom de SAG (« *Surfactant Alternating Gas* »). Ce test a été modélisé afin d'obtenir la perméabilité de la zone occupée par de la mousse (voir Chapitre 5, section 2).

Chapitre 5

Modélisation numérique

1. Modélisation des tests sur colonnes 1-D. UTCHEM

Il y a trois approches pour modéliser la mousse en milieu poreux : les modèles empiriques, semi empiriques et mécanistiques. Ces dernières, qui incluent les modèles de population de bulles entre autres, sont en principe les plus complètes. Cependant elles nécessitent de connaître plusieurs paramètres dont l'obtention de valeurs fiables reste une tâche très compliquée.

Même s'il existe un désaccord quant à la meilleure approche pour simuler les écoulements de mousse, il y a certains points qui font l'objet d'une acceptation générale :

- La mousse n'est pas considérée comme une autre phase en milieu poreux ;
- La mobilité de l'eau ne varie pas avec la présence de tensioactif et reste seulement une fonction de la saturation ;
- La mobilité du gaz est déterminée par la texture de la mousse.

Un simulateur de mousse ne doit pas forcément être mécaniste pour décrire avec précision le transport de mousse. Kovscek (1998) a suggéré que pour qu'un modèle décrive de façon efficace le comportement de la mousse sur le terrain, il y a certaines conditions qui doivent être observées :

- Réduction de la mobilité du gaz en présence de mousse ;
- Description de l'écoulement de mousse comme celui d'un fluide non-newtonien ;
- Variation des propriétés de la mousse en fonction de la concentration de tensioactif ;
- Représentation exacte du transport de tensioactif, incluant le phénomène d'adsorption.

Le simulateur UTCHEM, développé par l'Université du Texas à Austin, est un outil scientifique et technique pour la modélisation des processus de récupération assistée du pétrole et la réhabilitation des aquifères. Le modèle utilisé pour la simulation des écoulements de mousse a été développé en 1999 par Pope et collaborateurs.

Dans cette partie de la thèse on se propose de modéliser les écoulements de mousse en régime permanent. Pour cela, on identifiera les paramètres du modèle les plus importants et leur influence sur la courbe de perte de charge. Ensuite on se propose de trouver un moyen de lier les paramètres que l'on a pu mesurer en laboratoire avec ceux utilisés par le modèle.

1.1. Description du logiciel

UTCHEM (version 9.0) est un modèle 3-D, multi composants, polyphasique pour les procédés d'écoulement chimique (« *chemical flooding processes* ») qui modélise le comportement de phases complexes, les transformations physiques et chimiques et les propriétés des milieux poreux hétérogènes. Le modèle a d'abord été développé par Pope et Nelson en 1978 pour simuler la Récupération Assistée du Pétrole en utilisant des tensioactifs et des polymères. En 1990 Bhuyan *et al*. ont modifié le modèle pour inclure d'autres procédés chimiques et des réactions géochimiques entre les phases solide et liquide.

Le code prend en compte quatre phases : une pour le gaz et trois pour les liquides (phase aqueuse, phase huile et microémulsion). Le nombre de composants varie selon l'application, le logiciel en admet jusqu'à huit : eau, huile, tensioactif, polymère, chlore, calcium, alcool et gaz. Des équations de conservation de la masse, une équation de bilan d'énergie et de pression pour les quatre phases fluides sont utilisées. Pour les résoudre, cinq hypothèses majeures sont observées :

1. Propriétés des fluides et des roches légèrement compressibles ;
2. La loi de Darcy est applicable ;
3. La dispersion suit une généralisation de la loi de Fick ;
4. Mélange idéal ;
5. Le comportement de la phase liquide ne dépend pas de la pression du réservoir.

Les conditions à la limite sont : pas d'écoulement et pas de flux dispersif à travers les frontières imperméables (sauf si l'option de limites latérales ouvertes est activée). Les équations sont résolues en utilisant la méthode des différences finies (schéma de type bloc centré). La méthode de résolution est implicite en pression et explicite en concentration. Un ou deux points en amont et discrétisation spatiale de troisième ordre sont des options disponibles dans le code. Pour augmenter la stabilité et la robustesse des méthodes de deuxième et troisième ordre, un limiteur de flux a été ajouté par Liu *et al*. (1994).

Dans le domaine de la réhabilitation d'aquifères pollués, UTCHEM peut simuler les processus suivants :

- Le déversement et la migration des NAPLs dans les zones saturées et non saturées ;
- Tests de traçage PITT (« *Partition Interwell Tracer Tests* ») dans les zones saturées et non saturées ;
- Dépollution en utilisant cosolvents/tensioactifs/polymères ;
- Dépollution en utilisant des tensioactifs et de la mousse ;
- Dépollution en utilisant des cosolvents ;
- Bioremédiation ;
- Réactions géochimiques (métaux lourds et radionucléides).

1.1.1. Modèle pour la mousse

Le modèle semi-empirique implémenté décrit la réduction de la mobilité du gaz en présence de mousse et prend en compte les effets de la fluidification par cisaillement due à l'écoulement du gaz, ainsi que l'évolution des saturations en huile et en eau (Pope *et al.*, 2000). Il est basé sur l'observation que la mousse en milieu poreux collapse instantanément quand la pression capillaire dépasse une certaine valeur (pression capillaire critique P_c^*), qui dépend principalement du type de tensioactif, de sa concentration et des propriétés du milieu poreux (Khatib el al., 1988).

Le paramètre de réduction de la mobilité du gaz R dépend de la saturation de la phase aqueuse S_w et est calculé comme suit (5.1) :

$$\begin{cases} R = 1 & \text{pour} \quad S_o > S_o^* \\ R = 1 & \text{pour} \quad C_s < C_s^* \\ R = 1 & \text{pour} \quad S_w < S_w * - \varepsilon \\ R = 1 + (R_{max} - 1)\left(\frac{S_w - S_w^* + \varepsilon}{2\varepsilon}\right) & \text{pour} \quad S_w * - \varepsilon \le S_w \le S_w^* + \varepsilon \\ R = R_{max} & \text{pour les autres cas} \end{cases} \qquad \textbf{(5.1)}$$

où R_{max} (*RFMAX*) est la valeur maximale du paramètre de réduction de mobilité du gaz, S_o^* (*SOSTAR*) est la saturation résiduelle en huile critique au delà de laquelle la mousse ne se forme pas, C_s^* (*CSTAR*) est la concentration de tensioactif minimale pour la formation de mousse et ε (*EPXLO*) est la variation de la saturation de la phase aqueuse. La saturation de la phase aqueuse correspondant à la pression capillaire critique S_w^* dépend de la perméabilité du milieu à travers la pression capillaire.

Le modèle implémenté sur UTCHEM prend en compte les observations d'Osterloh et Jante (1992) sur le comportement rhéologique de la mousse. En effet, quand la mousse est formée (« *strong foam* ») et que l'on se trouve dans le régime « *low quality* » le débit fractionnaire de gaz f_g est plus faible que la valeur critique f_g^* (qui fait que la saturation de liquide soit S_w^*) le comportement de la mousse est de type « *shear-thinning* ». Cela veut dire que le gradient de pression est proportionnel à la vitesse du gaz u_g et indépendant de la vitesse du liquide. Cet effet est pris en compte à travers la relation suivante (5.2) :

$$R' = R\left(\frac{u_g}{u_{g,ref}}\right)^{(\sigma-1)} \qquad \textbf{(5.2)}$$

où $u_{g,ref}$ est la vitesse de référence du gaz (*VELGR*) et σ est l'exposant de la fluidification par cisaillement du gaz (*SHRTN*).

On constate qu'il est possible d'annuler l'influence de la vitesse du gaz sur le paramètre R' si l'exposant $\sigma = 1$. En effet, pour des valeurs du débit fractionnaire de gaz supérieures à la valeur critique f_g^*, Osterloh et Jante (1992) ont identifié un autre régime, appelé « *high quality* » où le comportement rhéologique est de type « *shear-thickening* » (régi par le grossissement de bulles dû à la rupture de lamelles) et le gradient de pression est proportionnel à la vitesse du liquide.

Ensuite le paramètre R' est ensuite intégré dans le modèle à travers l'expression (5.3), qui traduit la réduction de la perméabilité relative au gaz en présence de mousse :

$$k_{rf} = \frac{k_{rg}}{R'} \qquad \textbf{(5.3)}$$

où k_{rg} est la perméabilité relative de la phase gaz et k_{rf} est la nouvelle perméabilité relative de la phase gaz en présence de mousse.

1.2. Données du modèle

Le détail des données d'entrée utilisées est présenté en **Annexe 1** (pour le cas de la *Colonne 1* ou expérience 7, contenant les valeurs des paramètres qui donnent le meilleur calage et qui ont été choisis selon les critères qui seront expliqués par la suite).

Il s'agit d'un modèle utilisant de nombreux paramètres (certains n'étant pas connus, comme les courbes de perméabilité relative par exemple, d'autres ne sont pas utilisés) on modifie donc seulement les paramètres connus ou que l'on a pu mesurer. Les paramètres modifiés sont notés en gras sur la fiche présentée en Annexe 1. Pour le reste, on a conservé les valeurs de l'exemple 18 fourni avec le logiciel.

On travaille dans le système métrique (pour cela on fixe la valeur de la variable *IUNIT = 1*). On utilise *20* cellules pour modéliser les colonnes en longueur (*NX = 20*, *NY = 1*, *NZ = 1*). Comme les cellules sont des parallélépipèdes, c'est-à-dire que l'aire transversale est un rectangle, on utilise une hauteur (*dy1*) et un largeur (*dz1*) identiques de façon à ce que l'aire du carré résultant soit égale à l'aire transversale de nos colonnes ($A = 1{,}52 \cdot 10^{-3} m^2$, *dy1 = dz1 = 0,03899 m*). *dx1* est égale à la longueur de la colonne divisée par *20*. Les valeurs expérimentales de porosité et perméabilité, connues pour chaque expérience, sont utilisées pour la modélisation.

Nous avons 3 composants : eau, tensioactif et gaz. On utilise un puits d'injection et un puits de sortie. La condition initiale est une pression constante dans le milieu poreux égale à la pression atmosphérique (*PRESS1 = 101,325 kPa*) et la saturation en eau initiale égale à 1 (*SWI = 1*). Les conditions à la limite sont : pression dans le puits de sortie constante (*PWF = 101,325 kPa*, égale à la pression atmosphérique) et débit d'injection constant dans le puits d'injection. Pour modéliser chaque expérience on sature d'abord la colonne en solution de tensioactif (on injecte deux volumes de pore de solution de tensioactif). Ensuite on modélise la co-injection : on utilise le débit total obtenu avec la pente de la courbe expérimentale de récupération de liquide (voir tableau récapitulatif dans le Chapitre 4) et le débit liquide imposé par la pompe à piston pour chaque qualité de mousse. Ces débits sont exprimés en $m^3/jour$.

Comme les paramètres relatifs au tensioactif n'ont pas pu être mesurés (l'adsorption par exemple, UTCHEM utilise une isotherme d'adsorption de type Langmuir, contenant plusieurs paramètres) on a décidé de garder les valeurs fournies dans l'exemple 18 de UTCHEM. Les expériences de co-injection se font dans des colonnes présaturées en solution de tensioactif (à partir de laquelle on suppose que la capacité d'adsorption de molécules a été satisfaite), on considère qu'il y aura toujours assez de tensioactif pour générer de la mousse quand le liquide est en présence de gaz si la P_c est inférieure à la valeur critique. Comme saturation de liquide correspondante à la pression capillaire critique $P_c^*(S_w^*)$, on utilise la valeur *0,2* (pour la simulation d'écoulements de mousse il est fréquent de faire l'hypothèse qu'en régime permanent la saturation du milieu est proche de la valeur critique). Le reste des paramètres, concernant les phases alcool, polymère, etc., ne sont pas modifiés car ils ne sont pas présents dans notre simulation. Les courbes de perméabilités relatives fournies dans les données ont été conservées.

1.3. Estimation des paramètres

Pour réaliser les premiers tests avec le logiciel il faut estimer l'ordre de grandeur des paramètres utilisés. On procède à une estimation des paramètres en utilisant les résultats expérimentaux de la *Colonne 1* (expérience 7), dont les propriétés sont : perméabilité k = *8,23 Darcy*, porosité ϕ = *39,11 %*, longueur L = *0,406 m* et aire transversale A = $1{,}52 \cdot 10^{-3}$ m^2. Dans cette expérience on a généré de la mousse à l'aide du Triton® X-100 par co-injection de solution de tensioactif (C_{ta} = *10* fois la CMC) et d'air à un débit total Q_T = *2,694 ml/min* avec une qualité de mousse à l'entrée égale à Q_{mousse} = *95 %*.

1.3.1. Vitesse de référence du gaz $u_{g,ref}$ (VELGR) et coefficient de fluidification par cisaillement σ (SHRTN)

Comme vu précédemment, quand on se situe dans le régime « *low quality* » la mousse se comporte comme un fluide de type « *shear-thinning* », c'est-à-dire que sa viscosité diminue quand la vitesse d'écoulement augmente. Ce phénomène est important quand la vitesse du gaz est variable avec le temps, puisque la résistance à l'écoulement le sera aussi.

Li *et al*. (2004) ont réalisé des expériences sur colonne 1-D pour estimer ces paramètres. Les auteurs ont utilisé une colonne de sable (k = *40 Darcy*) présaturée en solution de tensioactif dans laquelle un débit d'air à une pression élevée (≃ 7psig) est imposé. Quand le régime permanent est atteint (de façon équivalente, les saturations sont constantes) on fait varier le débit de gaz. À l'aide de la perte de charge mesurée et de l'équation de Darcy, on calcule une viscosité pour la phase gaz en présence de mousse μ_f, et on trace la courbe μ_f en fonction de la vitesse de Darcy du gaz u_g (Figure 5.1).

On observe dans la Figure 5.1.que pour leurs expériences, l'effet « *shear- thinning* » a lieu pour des vitesses du gaz supérieures à *2 ft/jour*, valeur que les auteurs ont prise comme vitesse de référence $u_{g,ref}$. L'exposant de la loi exponentielle qui cale les points expérimentaux correspond au coefficient σ. Dans leur cas, σ = *0,2*.

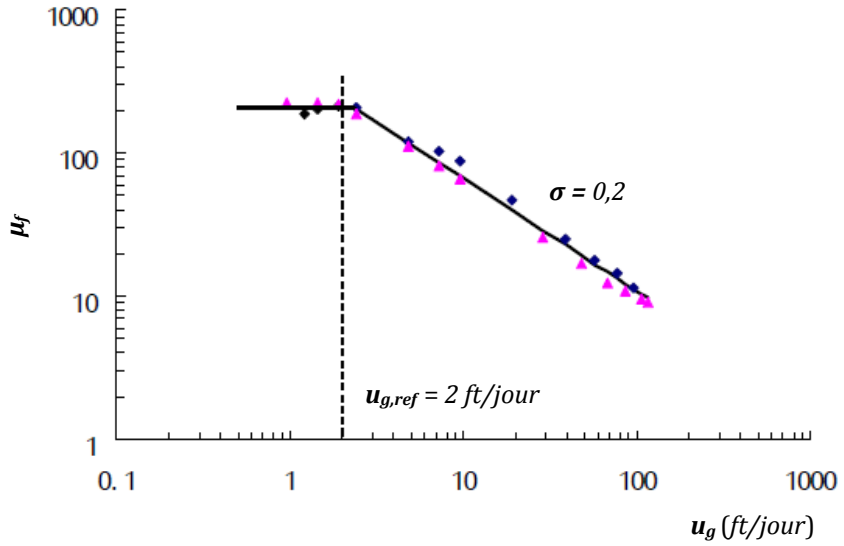


Figure 5.1. Estimation des paramètres σ et $u_{g,ref}$. Courbe μ_f en fonction de la vitesse du gaz u_g (adapté de Li *et al.*, 2004).

Dans notre cas, la vitesse du gaz est constante parce que le débit et l'aire d'écoulement ne varient pas. Ceci implique que l'on n'observe pas l'effet de fluidification du gaz par cisaillement. Cette interprétation est intéressante si notre objectif est de transposer les résultats des tests sur colonne pour des problèmes plus complexes (par exemple 3-D) pour faire de la simulation numérique. Dans les cas réels, le flux est radial et la vitesse des fluides injectés diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne des puits d'injection. Ce comportement rhéologique de la mousse est positif du point de vue de l'injectivité : à proximité des puis d'injection la vitesse est grande et la viscosité du gaz tend à être plus faible.

La vitesse de référence du gaz peut être approximée dans un premier temps à la vitesse réelle moyenne du gaz à l'entrée, en tenant compte de la porosité et de la saturation du milieu, selon l'expression suivante (5.4) :

$$u_{g,ref} \simeq \frac{Q_g}{A\phi S_g} \qquad \textbf{(5.4)}$$

Pour la *Colonne 1*, le débit total est Q_T = *2,694 ml/min*, la qualité de la mousse Q_{mousse} = *95 %* et la saturation en gaz est S_g = *0,8* (c'est-à-dire, 1 - S_w^*) pendant l'expérience de co-injection. À l'aide de l'expression (5.4) on obtient $u_g = 9{,}44 \cdot 10^{-5}$ *m/s*, qui sera prise comme la vitesse de référence, $u_{g,\,ref} = 9{,}44 \cdot 10^{-5}$ *m/s* = *8,15 m/jour*.

Pour le paramètre de fluidification de la mousse par cisaillement on choisit σ = *1*. En effet, le débit fractionnaire de gaz imposé pour nos expériences est assez grand (compris entre *0,85* et *0,99*) et cela signifie que très probablement on est dans le régime « *high quality* », où le gradient de pression ne dépend pas de la vitesse du gaz. En plus, la vitesse du gaz est constante parce que l'aire d'écoulement le débit imposé le sont aussi. Si on choisit σ = *1* dans l'équation (5.2) on a $R' \equiv R$, ce qui nous évite d'utiliser le paramètre $u_{g,ref}$.

1.3.2. R_{max}. Valeur maximale du facteur de réduction de mobilité du gaz R (RFMAX)

De l'équation (5.3), on constate que R' peut être défini comme le rapport des pertes de charge en présence et en absence de mousse (pour la même valeur de la saturation S_w) (5.5) :

$$R' = \frac{\Delta P_{mousse}\,(S_w)}{\Delta P_{gaz}\,(S_w)} \qquad \textbf{(5.5)}$$

Les hypothèses faites au paragraphe précédent ($R' \equiv R$) nous permettent d'utiliser l'équation (5.5) pour calculer la valeur maximale du facteur de réduction de mobilité du gaz R_{max}.

Dans notre expérience, la valeur de la perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne pour un débit total de mousse Q_T = *2,694 ml/min* (Q_{mousse} = *95 %*) est égal à ΔP_{mousse} = *0,32 bar*. On peut évaluer simplement la perte de charge dans le milieu poreux saturé en gaz par l'équation (5.6) :

$$\Delta P_g(S_w) \approx \frac{Q_g}{A}\,\frac{\mu_g\,L}{k} \qquad \textbf{(5.6)}$$

En utilisant l'équation (5.6) avec les caractéristiques de la colonne et μ_g = *2·10^{-5} Pa·s*, on obtient $\Delta P_g \simeq$ *27,95 Pa*. Enfin, avec l'équation (5.5) on obtient un facteur de réduction de mobilité $R \simeq$ *1145*, valeur que l'on utilise comme *RFMAX* dans une première approximation. A partir de cette valeur, on pourra itérer pour obtenir la valeur ΔP mesurée expérimentalement.

1.3.3. S_w^*. Saturation en phase aqueuse correspondante à la pression capillaire limite P_c^*

Pour les écoulements de mousse en milieu poreux, la pression capillaire critique est la valeur maximale (correspondant à la saturation en phase liquide critique S_w^* et qui peut être atteinte en augmentant la qualité de la mousse par exemple) au-dessus de laquelle la mousse devient instable et collapse. La pression capillaire des écoulements de mousse en régime « *high quality* » en régime permanent se situe à des valeurs proches de cette valeur critique, les saturations des phases étant constantes (Schramm, 2000).

Dans un premier temps, on estime ce paramètre S_w^* = *0,2*, correspondant à la saturation moyenne des colonnes de $k \simeq$ *8 Darcy* lors de nos expériences réalisées à l'état stationnaire (saturation comprise entre *0,12* et *0,29*). Une fois S_w^* connue, on utilise la fonction de Leverett (1941) pour calculer la pression capillaire critique $P_c^* = P_c\,(S_w^*)$ (5.7) :

$$J = \frac{P_c}{\sigma}\sqrt{\frac{k}{\phi}} \qquad \textbf{(5.7)}$$

où σ est la tension superficielle eau-gaz, k est la perméabilité, ϕ est la porosité du milieu et J est la fonction de Leverett (adimensionnelle). En substituant avec les valeurs de notre expérience et pour $J = 0,5$, on obtient $P_c^* = 7812\ Pa$. Pour la plupart des expériences sur colonne on est en dessous de cette valeur.

1.4. Étude de sensibilité pour les paramètres du modèle mousse. Influence sur la valeur ΔP en régime permanent

Le point faible de l'utilisation du modèle est la nécessité de réaliser des expériences préalables sur colonne afin de pouvoir estimer la valeur des paramètres. En effet, on constate que les valeurs obtenues avec l'estimation précédente pour la *Colonne 1* donnent une perte de charge un peu inférieure à celle obtenue expérimentalement. Néanmoins, les valeurs des paramètres estimées sont du même ordre de grandeur que celles qui donnent le meilleur calage et que l'on utilisera comme point de départ pour réaliser l'étude de sensibilité : *RFMAX = 1480 ; SHRTN = 1 ; VELGR = 8,15 ; S1RWC = 0,2*.

Dans nos expériences on a mesuré la perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne et la récupération du liquide en sortie (qui nous permet également de calculer la saturation en liquide en régime permanent), et ce sont ces deux courbes que l'on pourra comparer avec celles obtenues par modélisation.

1.4.1. Saturation résiduelle en phase aqueuse (S1RWC)

Ce paramètre a pu être mesuré pendant nos tests sur colonne à l'état stationnaire, à partir d'un bilan de masse. La saturation résiduelle dépend à priori de la perméabilité du milieu et du débit fractionnaire de liquide pendant la co-injection, et elle est un indicateur de l'efficacité de déplacement des fluides initialement présents dans la colonne par la mousse. Pour vérifier l'influence de ce paramètre dans la courbe de perte de charge obtenue par simulation numérique, on fixe les paramètres du modèle mousse (*RFMAX* = *1480* ; *SHRTN* = *1*) et on fait varier la saturation résiduelle de la phase aqueuse déplacée par la phase huile ou gaz (*S1RWC*).

La Figure 5.2 montre les courbes de perte de charge en fonction des volumes de pores injectés obtenues par simulation, pour différentes valeurs de ce paramètre.

On observe que la saturation résiduelle en phase aqueuse n'a aucune influence sur la valeur de la pression en régime permanent. Par contre plus la saturation résiduelle est grande, plus tôt la percée se produit. Cela signifie que pour des temps de percée plus courts, le front de mousse se déplace à une vitesse plus grande et la valeur de la saturation finale S_w est plus forte, ce qui implique un déplacement des fluides initialement présents moins efficace.

Le Tableau 5.1 montre l'effet de la variation du paramètre *S1RWC* sur la saturation en phase aqueuse obtenue par simulation en régime permanent. On observe que la saturation finale de la colonne augmente pour des plus fortes valeurs de *S1RWC*. En effet, la valeur finale de S_w simulée serait proche à la saturation irréductible en eau plus un flux d'eau mobile, qui correspond à la phase aqueuse que l'on injecte.

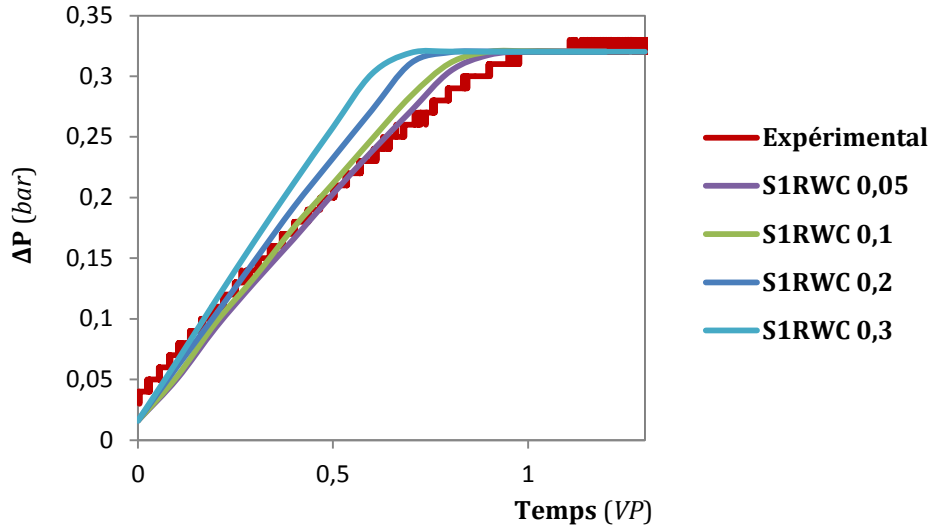


Figure 5.2. Courbes de Δ*P* en fonction des *VP* injectés obtenues par simulation pour différentes valeurs de la saturation résiduelle de la phase aqueuse (*S1RWC*) et courbe expérimentale.

Tableau 5.1. Valeurs de saturation en phase aqueuse en régime permanent obtenues par simulation numérique pour différentes valeurs du paramètre *S1RWC*.

S1RWC	S_w *stationnaire*
0,05	*0,2*
0,1	*0,25*
0,2	*0,32*
0,3	*0,4*

Ainsi, on est plus proches des données expérimentales de S_w avec une valeur de *S1RWC* égale à *0,05*. Néanmoins il existe toujours un léger décalage entre les percées de la courbe de pression expérimentale et simulée.

Comme on s'intéresse au régime permanent et que les valeurs de la saturation en phase aqueuse à l'état stationnaire varient entre *0,15* et *0,3* pour la plupart des tests, on fixe la valeur *S1RWC* = *0,2* pour le reste de simulations. Des valeurs très faibles de saturation résiduelle en phase aqueuse ne seraient pas représentatives de la réalité. Des expériences

1.4.2. Facteur de réduction de mobilité du gaz R (RFMAX)

Pour étudier l'influence de *RFMAX* sur la courbe de perte de charge, on fixe les autres paramètres et on réalise la simulation numérique pour différentes valeurs de *RFMAX*. La Figure 5.3 présente les résultats obtenus.

On observe que quand la valeur du paramètre *RFMAX* augmente, on obtient une plus forte perte de charge en régime permanent. Par contre ce paramètre n'a aucune

influence sur le temps de percée. En effet, pendant les expériences sur colonne on a constaté qu'il existe un décalage entre la percée des courbes de perte de charge et de récupération de liquide en sortie. Ce décalage temporel met en évidence les effets de bord, et il est dû aux réarrangements de bulles avant d'arriver à l'état stationnaire en terme de pression. Ainsi la perte de charge continue à augmenter une fois le gaz arrivé à la sortie de la colonne.

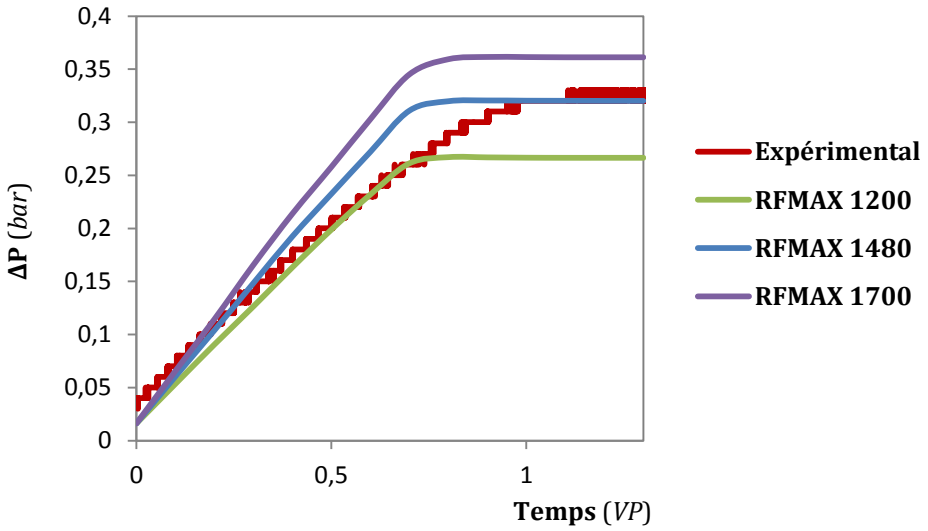


Figure 5.3. Courbes de perte de charge en fonction des volumes de pores injectés obtenues par simulation pour différentes valeurs du paramètre *RFMAX* et courbe expérimentale.

1.4.3. Paramètre de fluidification par cisaillement σ (SHRTN)

Comme vu précédemment, on considère que les expériences sur colonne sont proches du régime « *high quality* », où la vitesse de la phase gaz n'a pas d'influence sur le gradient de pression. On peut donc fixer la valeur $\boldsymbol{\sigma} = 1$.

Néanmoins, on peut réaliser une étude de sensibilité pour quantifier l'influence de ce paramètre sur la courbe de perte de charge. Pour cela, on utilise les valeurs *RFMAX = 1480* ; *VELGR = 8,15* ; *S1RWC = 0,2* et on fait varier la valeur du paramètre *SHRTN*. La Figure 5.4 montre les résultats obtenus par simulation numérique pour des différentes valeurs du paramètre de fluidification du gaz par cisaillement.

On observe que la variation de la valeur du paramètre *SHRTN* ne modifie pas le temps de percée pour la courbe de perte de charge. Quand la valeur de ce paramètre est inférieure à l'unité, la perte de charge en régime stationnaire augmente, et quand sa valeur est supérieure à l'unité, la perte de charge diminue. Des très faibles variations de ce paramètre modifient énormément la valeur de perte de charge. Néanmoins, la mousse se comportant comme un fluide de type « *shear-thinning* » (Li *et al.*, 2006), la valeur de $\boldsymbol{\sigma}$ doit respecter ce comportement. Ainsi, seules les valeurs de *SHRTN* inférieures à l'unité sont cohérentes avec ce phénomène, comme on expliquera dans la section 1.4.4 de ce Chapitre.

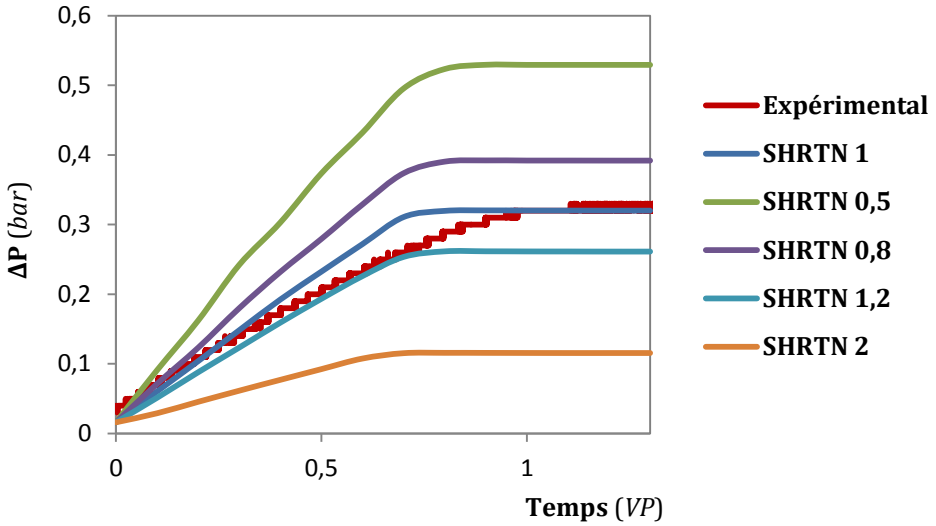


Figure 5.4. Courbes de perte de charge en fonction des volumes de pores injectés obtenues par simulation pour des différentes valeurs du paramètre *SHRTN* et courbe expérimentale.

1.4.4. Vitesse de référence pour le gaz $u_{g,ref}$ (VELGR)

Pour étudier l'influence de la vitesse de référence du gaz sur la courbe de perte de charge il faut d'abord fixer une valeur du coefficient de fluidification par cisaillement du gaz différent de l'unité. Si l'on combine la loi de Darcy généralisée pour la phase non mouillante (2.23) et les expressions (5.2) et (5.3) des paramètres du modèle, on arrive à la relation (5.8) :

$$\Delta P_f = \frac{\mu_g \, L \, R \, u_g^{\sigma}}{k \, k_{rg} \, u_{g,ref}^{\sigma-1}} \qquad \textbf{(5.8)}$$

où ΔP_f est la perte de charge pour la phase gaz en présence de mousse, μ_g est la viscosité du gaz, R est le paramètre de réduction de la mobilité du gaz, L est la longueur du milieu poreux, u_g est la vitesse du gaz, k est la perméabilité intrinsèque du milieu, k_{rg} est la perméabilité relative à la phase gaz, $u_{g,ref}$ est la vitesse de référence du gaz et σ est le paramètre de fluidification par cisaillement du gaz. La mousse se comportant comme un fluide de type « *shear-thinning* », on en déduit facilement à travers l'expression (5.8) que la valeur de σ doit être inférieure à l'unité.

Li *et al*. (2004) ont réalisé des tests sur colonnes poreuses pour estimer la valeur de ce paramètre. Ils ont trouvé $\sigma = 0{,}2$ pour une perméabilité $k = 40$ *Darcy* et $\sigma = 0{,}4$ pour $k = 200$ *Darcy*. La *Colonne 1* (expérience 7) ayant une perméabilité $k = 8{,}23$ *Darcy*, on fixe la valeur $\sigma = 0{,}2$ pour réaliser l'étude de sensibilité de $u_{g,ref}$. Ainsi, on utilise les valeurs *RFMAX = 1480* ; *SHRTN = 0,2* ; *S1RWC = 0,2* et on fait varier la valeur du paramètre *VELGR*. La Figure 5.5 montre les résultats obtenus par simulation numérique pour différentes valeurs du paramètre de vitesse de référence pour le gaz.

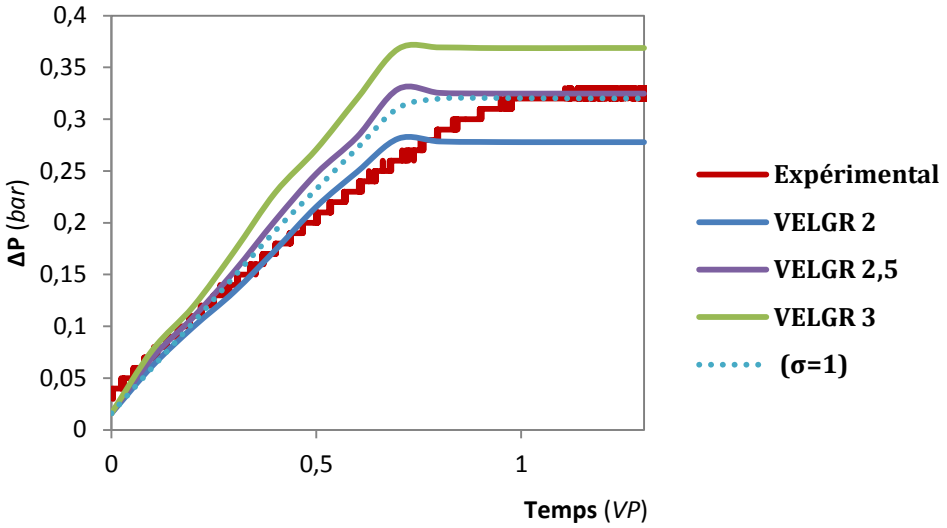


Figure 5.5. Courbes de perte de charge en fonction des volumes de pores injectés obtenues par simulation pour des différentes valeurs du paramètre *VELGR* et courbe expérimentale. La courbe pointillée correspond à celle obtenue par simulation avec *SHRTN = 1*.

On observe que la variation de la valeur du paramètre *VELGR* ne modifie pas le temps de percée pour la courbe de perte de charge et que de plus fortes valeurs de perte de charge sont obtenues quand *VELGR* augmente. Dans la Figure 5.5 on a tracé également la courbe de perte de charge obtenue pour le meilleur calage (courbe bleue pointillée, *S1WRC = 0,2* ; *RFMAX = 1480* ; *SHRTN = 1*). On constate que la forme des courbes obtenues avec *SHRTN = 0,2* est un peu différente de celles obtenues avec *SHRTN = 1*. La pression augmente de façon quasi-linéaire jusqu'à la percée, et ensuite sa valeur diminue légèrement pour atteindre le régime permanent. On note également qu'il est possible d'obtenir presque les mêmes courbes de perte de charge pour différents groupes de valeurs des paramètres du modèle mousse (par exemple on peut comparer la courbe VELGR 2,5 de la Figure 5.5, obtenue avec *RFMAX = 1480* ; *SHRTN = 0,2* ; *S1RWC = 0,2 et VELGR = 2,5* et la courbe pointillée de la même figure, obtenue avec *S1WRC = 0,2* ; *RFMAX = 1480* et *SHRTN = 1*)

1.4.5. Conclusion

Les résultats présentés ont montré l'influence des différents paramètres du modèle mousse utilisé par UTCHEM sur la courbe de perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne. En effet, on constate que *RFMAX*, *SHRTN* et *VELGR* modifient la valeur de la perte de charge en régime permanent mais n'ont aucune influence sur le temps de percée. On peut obtenir la même courbe de pression pour différents groupes de valeurs des paramètres *SHRTN*, *RFMAX* et *VELGR*. Ainsi, par simplicité, on a choisi d'utiliser une valeur du facteur de fluidification par cisaillement de la mousse égale à l'unité pour caler le reste des tests sur colonne. De cette façon, le paramètre *VELGR* n'est pas utilisé et il ne reste qu'à caler *RFMAX* pour obtenir la valeur expérimentale de **ΔP**. Comme on l'a déjà vu, la forme de la courbe (c'est-à-dire, le temps de percée) peut être ajustée à l'aide de la saturation résiduelle en eau (*S1WRC*).

Une faiblesse du modèle est qu'il ne représente pas correctement le décalage entre les percées de la courbe de pression et de récupération de liquide, liées aux phénomènes de réarrangement de bulles.

1.5. *RFMAX* pour les tests sur colonne

Le Tableau 5.2 présente les valeurs des paramètres utilisés pour modéliser les expériences sur colonne et le *RFMAX* qui donne le meilleur calage (avec *SHRTN = 1*).

Tableau 5.2. Paramètres utilisés et *RFMAX* qui donne le meilleur calage pour les expériences sur colonne (avec *SHRTN = 1*).

Exp.	k (*millidarcy*)	ϕ	dx1 (*m*)	$Q_{w.}$ ($m^3/jour$)	Q_g ($m^3/jour$)	ΔP (*kPa*)	*RFMAX*	*RF exp.*
1	252	0,33	0,01615	0,0002160	0,0023328	102	240	*3,92*
2	360	0,33	0,01940	0,0000432	0,0023674	142	550	*6,51*
3	309	0,33	0,01910	0,0000432	0,0024624	91,6	257	*3,69*
4	231	0,34	0,01890	0,0000432	0,0024451	111,5	242	*3,09*
5	306	0,34	0,01930	0,0006480	0,0020650	98,5	194	*3,72*
6	8040	0,40	0,02110	0,0002160	0,00335232	34	1620	*22,26*
7	**8230**	**0,39**	**0,0203**	**0,000216**	**0,0036633**	**32**	**1480**	***22,06***
8	7520	0,39	0,02095	0,0002160	0,00335232	34	1516	*20,73*
9	6890	0,38	0,02075	0,0000432	0,00353376	36	1583	*20,69*
10	8090	0,40	0,02105	0,0000432	0,00337824	29	1520	*19,68*
11	9220	0,41	0,02105	0,0006480	0,00299808	29	1520	*19,31*
12	7310	0,38	0,02100	0,0006480	0,00311904	32	1260	*19,16*
13	17100	0,36	0,02110	0,0002160	0,00376704	14	1200	*16,97*
14	16400	0,36	0,02100	0,0002160	0,00363744	15,5	1350	*18,73*
15	15300	0,35	0,02100	0,0000432	0,00389664	16,1	1350	*17,68*
16	17700	0,36	0,02110	0,0000432	0,00394848	15,9	1535	*20,26*
17	17800	0,36	0,02115	0,0006480	0,00334368	13,5	1170	*16,65*
18	18400	0,36	0,02100	0,0006480	0,00331776	15	1390	*19,78*
19	76700	0,33	0,02100	0,0006480	0,00349920	2	675	*13,09*
20	75600	0,32	0,02070	0,0006480	0,00343008	2,8	990	*15,63*
21	114000	0,34	0,02085	0,0002160	0,00403488	1,9	1000	*14,84*
22	89400	0,32	0,02040	0,0002160	0,00404352	2,1	875	*14,43*
23	92000	0,32	0,02105	0,0000432	0,00432864	2	900	*14,10*
24	75200	0,33	0,02060	0,0000432	0,00423360	3	1120	*15,14*

La Figure 5.6 présente les valeurs de *RFMAX* en fonction de la perméabilité des colonnes. On constate que la distribution des valeurs calées en fonction de la perméabilité est la même que celle du paramètre expérimental ***RF*** (voir Figure 4.24) : les points sont regroupés en quatre groupes principaux en fonction de la perméabilité.

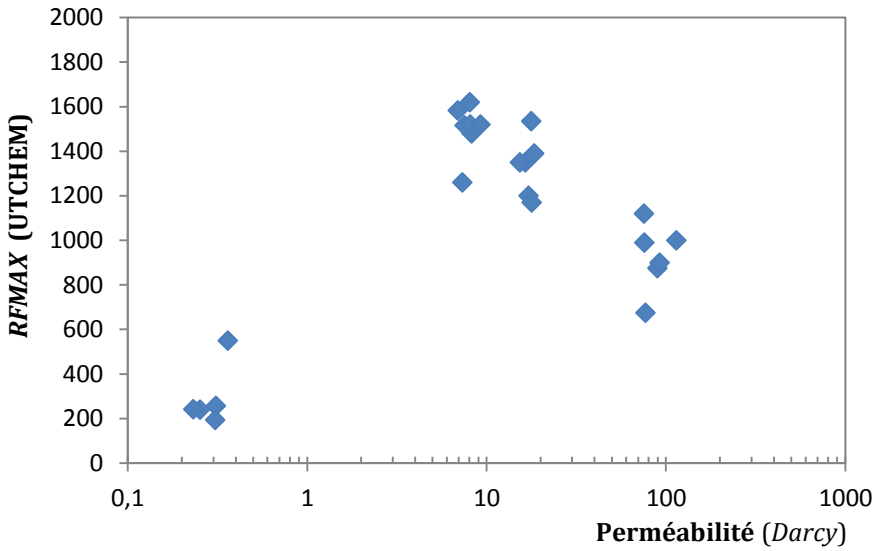


Figure 5.6. Valeur du paramètre *RFMAX* donnant le meilleur calage pour les expériences sur colonne en fonction de la perméabilité.

La Figure 5.7 présente les valeurs du coefficient ***RF*** expérimental en fonction du paramètre *RFMAX* utilisé par UTCHEM.

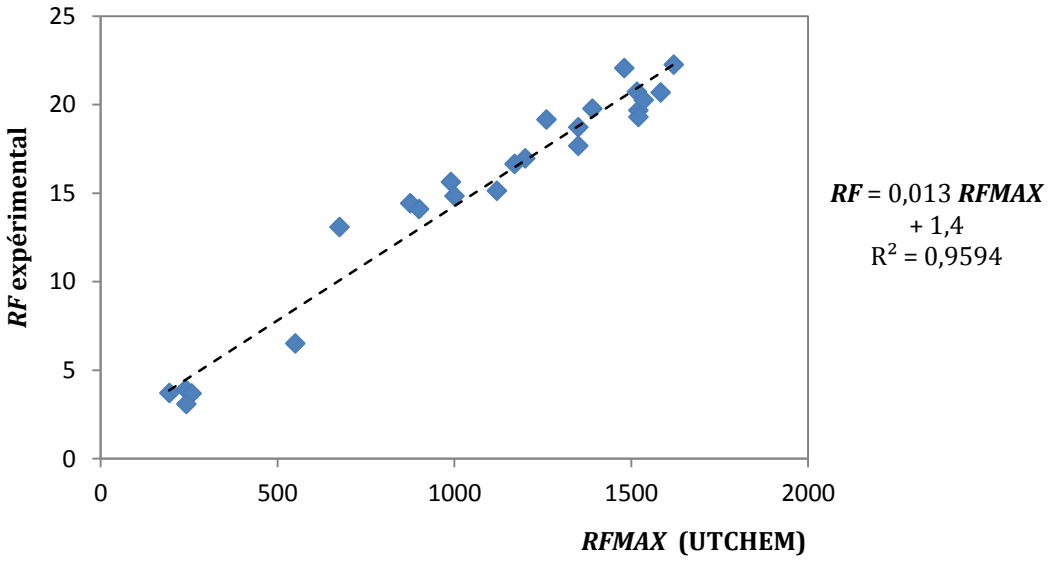


Figure 5.7. Valeur de *RFMAX* donnant le meilleur calage avec UTCHEM vs. le paramètre *RF* mesuré expérimentalement sur colonnes.

On observe dans la Figure 5.7 qu'il y a une bonne relation linéaire entre les valeurs de ***RF*** (obtenues expérimentalement) et celles du paramètre *RFMAX* donnant le meilleur calage pour les tests sur colonne. En effet, une fois connu le paramètre ***RF*** (qui est plus facile à obtenir expérimentalement que le ***MRF***) on peut utiliser cette correspondance linéaire pour prédire la bonne valeur du paramètre *RFMAX* utilisé par UTCHEM.

1.6. Résultats obtenus avec UTCHEM

On présente maintenant les résultats obtenus avec le meilleur calage par simulation numérique de l'**expérience 7**. Les paramètres utilisés pour la simulation sont : *S1WRC = 0,2* ; *RFMAX = 1480* ; *SHRTN = 1* ; *SWSTAR = 0,2*. (Il s'agit du fichier présenté en **Annexe 1**).

1.6.1. Courbe de perte de charge avant percée

La Figure 5.8 présente les courbes de perte de charge entre l'entrée et la sortie de la colonne obtenues par simulation numérique et expérimentalement pour l'expérience 7.

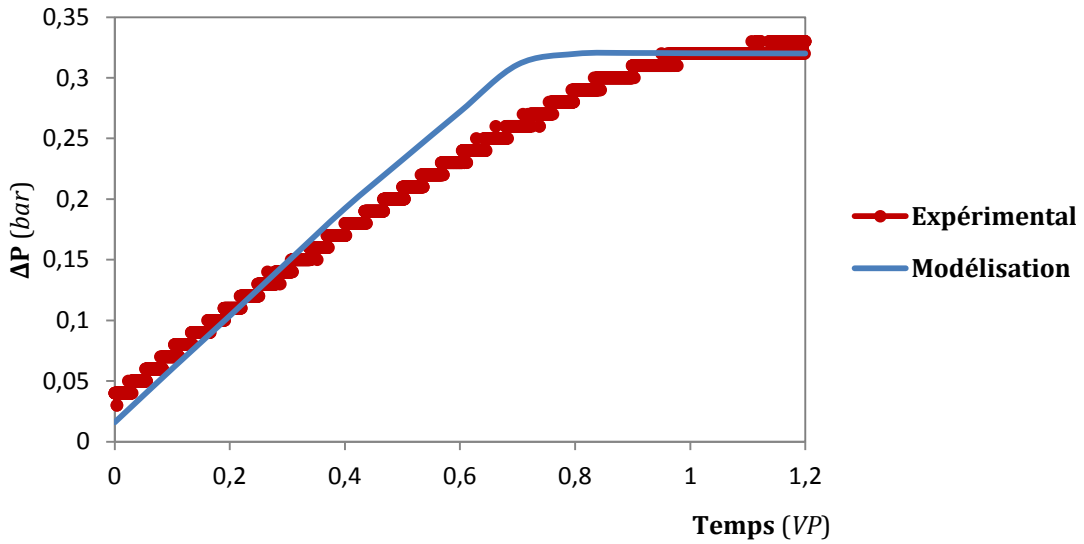


Figure 5.8. Perte de charge en fonction des volumes de pores injectés obtenues expérimentalement (en rouge) et par simulation (en bleu) pour l'expérience 7.

On constate deux différences. La première au niveau de la valeur de perte de charge au temps $t = 0$. Cette différence peut être attribuée à la procédure expérimentale : en effet on débute par l'injection de gaz afin de protéger l'appareil de régulation de débit massique, et ensuite on démarre l'injection de liquide (de cette façon on évite une possible entrée de liquide dans l'appareil). La valeur de la perte de charge obtenue par modélisation pour $t = 0$ correspond à la perte de charge produite par l'écoulement de liquide.

La deuxième différence est liée au début du régime permanent. Comme on a vu précédemment avec l'analyse des différents paramètres du modèle, le paramètre de saturation résiduelle en phase liquide joue un rôle sur le temps auquel on atteint le régime permanent. En effet, les expériences de laboratoire ont montré que la perte de charge continue à augmenter après la percée (probablement à cause des réarrangements des bulles de gaz, aux effets de bout, etc.), le modèle ne prend pas en compte ces phénomènes en régime transitoire. Ainsi, on observe ces différences avant percée, qui ne peuvent être décrites avec précision par le modèle numérique.

1.6.2. Distribution de pression dans la colonne

Le modèle nous permet de connaître la distribution de pression dans la colonne pour différents temps avant la percée. La Figure 5.9 présente les courbes de distribution de pression obtenues par simulation pour l'expérience 7. On observe que le gradient de pression est constant dans la partie de la colonne contenant de la mousse pour un temps donné (la pente de la courbe est constante) et que ce gradient de pression ne varie pas avec le temps (les droites sont parallèles). Ceci est cohérent avec l'interprétation que nous avons donnée des expériences de laboratoire dans la section 2.4 du Chapitre 4. En effet, le modèle utilisé par UTCHEM considère que la texture de la mousse générée est constante au cours du temps (le gradient de pression pour un débit donné est fixe).

Le modèle reproduit bien les expériences à forte ***k***, où le gradient de pression dans la zone occupée par de la mousse est constant, mais il peut rencontrer de difficultés pour reproduire les expériences à faible ***k***, où on observe une variation de régime de texture de mousse. Cela se traduit par un changement de gradient de pression. On peut également noter que les courbes de pression le long de la colonne en fonction des volumes de pores injectés varient selon la valeur de la saturation en phase aqueuse (*S1WRC*) que l'on utilise. En effet, c'est ce paramètre qui contrôle le temps où la percée a lieu (en d'autres termes, la vitesse d'avancement du front de mousse).

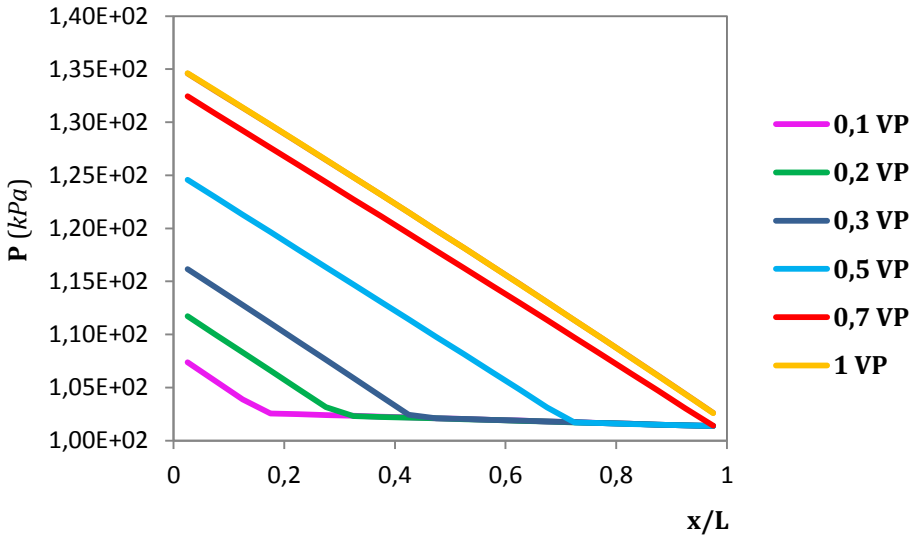


Figure 5.9. Distribution de la pression dans la colonne pour différents temps avant la percée obtenue par simulation numérique de l'expérience 7 avec UTCHEM.

1.6.3. Récupération de liquide à la sortie de la colonne

La Figure 5.10 présente les courbes de récupération de liquide en sortie obtenues par simulation numérique et expérimentalement.

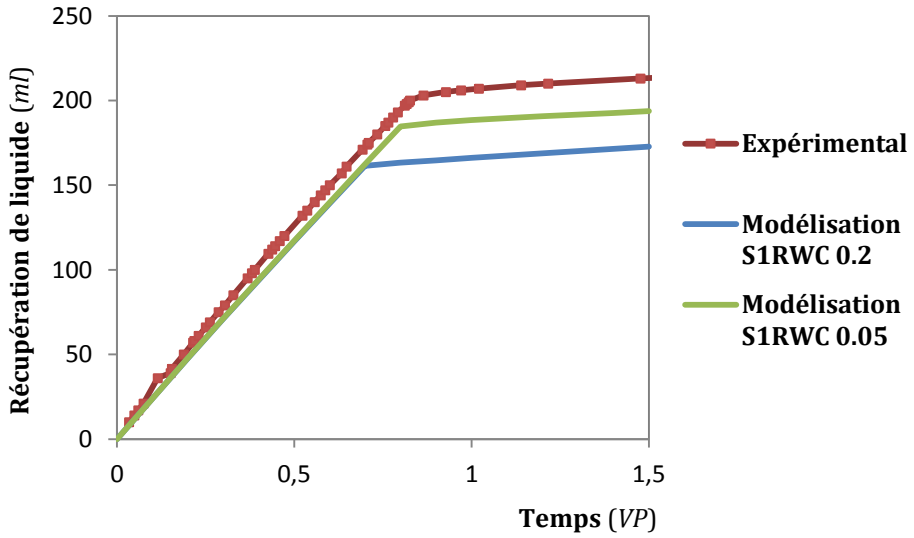


Figure 5.10. Productions de liquide, expérimentale et simulées, pour différentes valeurs de la saturation résiduelle en phase liquide (*S1RWC*) pour l'expérience 7.

On observe que le modèle prédit une récupération de liquide linéaire avec le temps, tel qu'obtenu pendant les expériences de laboratoire. En plus, la pente des deux zones (avant et après percée) coïncide avec les pentes de la courbe expérimentale.

La percée se produit avant ou après en fonction de la saturation résiduelle en phase liquide. On observe dans la Figure 5.10 que si on diminue la valeur de la saturation résiduelle en phase liquide (*S1WRC = 0,05*) la percée se produit logiquement plus tard et on obtient une courbe de récupération de liquide plus proche de la valeur expérimentale.

La colonne de laboratoire a une saturation en phase liquide à l'état stationnaire égale à *0,2*. La première simulation (courbe bleue) a été obtenue pour une valeur de la saturation résiduelle égale à *0,2*, mais on observe que la percée a lieu à *0,7* ***VP*** et dans l'expérience la percée a lieu à $\simeq$ *0,8* ***VP***. Si l'on s'intéresse à l'état transitoire, il faudra modifier ce paramètre pour obtenir des résultats plus proches de l'expérience.

1.7. Discussion

L'objectif majeur de cette partie de la thèse est d'arriver à modéliser les écoulements de mousse en régime permanent à l'aide du logiciel UTCHEM. Ainsi, on a identifié les paramètres du modèle les plus pertinents et on a réalisé une étude pour vérifier leur influence sur la courbe de perte de charge. On a déterminé que l'on peut caler les expériences sur colonne pour obtenir la perte de charge en régime permanent à l'aide d'un seul paramètre, *RFMAX*. Il faut noter également que le modèle reproduit correctement les expériences à forte ***k***, mais ne prend pas en compte le changement de texture de la mousse en régime transitoire que l'on a observé pour les tests sur colonne à faible ***k***.

On a obtenu une relation linéaire entre *RFMAX* et ***RF***, paramètre mesuré expérimentalement. Cette correspondance peut être utile si on connaît le ***RF*** d'un écoulement de mousse (***RF*** étant plus facile à obtenir en laboratoire que ***MRF***) et que l'on veut faire de la simulation numérique avec UTCHEM. Ainsi, une fois connus les paramètres qui reproduisent de façon correcte le comportement d'un type de mousse (sa qualité et le débit total) dans un milieu poreux en 1-D, on peut faire le lien et les utiliser pour simuler son comportement en 2-D ou en 3-D.

Cependant, certains auteurs (Li *et al*., 2006) ont rapporté que les propriétés de la mousse en 3-D sont très différentes de celles de la mousse en 1-D. En effet, Tanzil (2001) a observé que la valeur de la viscosité apparente est plus grande en 3-D qu'en 1-D. Cette affirmation étant très qualitative (basée sur une comparaison d'un test à l'échelle du terrain et des expériences de laboratoire), des tests supplémentaires sont nécessaires pour renforcer cette théorie. Li *et al*. (2006) ont développée un nouveau modèle pour les écoulements de mousse avec UTCHEM. Un nouveau paramètre, $\boldsymbol{F_G}$, appelé facteur géométrique, a été introduit. Celui-ci sert à quantifier l'influence du changement d'échelle sur le comportement de la mousse, et sa valeur est ajustée par la méthode de calage de données (« *history matching* »).

2. Modélisation des expériences sur pilotes 2-D. MODFLOW et MT3D

2.1. Description des logiciels

2.1.1. MODFLOW

MODFLOW est un modèle d'écoulement en milieux poreux développé par l'USGS (« *US Geological Survey* ») dans les années 1980. Jusqu'à nos jours, quatre versions majeures ont été publiées : MODFLOW-88, MODFLOW-96, MODFLOW-2000 et MODFLOW-2005. C'est le logiciel de base pour la simulation des aquifères. Le code est libre et a été écrit en Fortran, pouvant être compilé et fonctionner dans des environnements Windows et Unix.

Le logiciel résout l'équation d'écoulement des eaux souterraines pour un aquifère confiné (5.9) :

$$\frac{\partial}{\partial x}\left[K_{xx}\frac{\partial h}{\partial x}\right]+\frac{\partial}{\partial y}\left[K_{yy}\frac{\partial h}{\partial y}\right]+\frac{\partial}{\partial z}\left[K_{zz}\frac{\partial h}{\partial z}\right]+W=s_s\frac{\partial h}{\partial t} \qquad \textbf{(5.9)}$$

où K_{xx}, K_{yy}, K_{zz}, sont les valeurs de la conductivité hydraulique dans les axes x, y et z respectivement, h est la charge hydraulique, W est le flux volumétrique représentant les apports (valeur positives) ou les extractions (valeurs négatives) d'eau du système, s_s est le coefficient d'emmagasinement spécifique du matériel poreux et t est le temps.

L'équation (5.9) peut être discrétisée par différences finies, pour l'appliquer à un aquifère en utilisant des lignes, des colonnes et des couches (5.10) :

$$\begin{aligned}&CR_{i,j-\frac{1}{2},k}\left(h^m_{i,j-1,k}-h^m_{i,j,k}\right)+CR_{i,j+\frac{1}{2},k}\left(h^m_{i,j+1,k}-h^m_{i,j,k}\right)\\&\quad+CC_{i-\frac{1}{2},j,k}\left(h^m_{i-1,j,k}-h^m_{i,j,k}\right)+CC_{i+\frac{1}{2},j,k}\left(h^m_{i+1,j,k}-h^m_{i,j,k}\right)\\&\quad+CV_{i,j,k-\frac{1}{2}}\left(h^m_{i,j,k-1}-h^m_{i,j,k}\right)+CV_{i,j,k+\frac{1}{2}}\left(h^m_{i,j,k+1}-h^m_{i,j,k}\right)\\&\quad+P_{i,j,k}h^m_{i,j,k}+Q_{i,j,k}=s_{s_{i,j,k}}(\Delta r_j\Delta c_i\Delta v_k)\frac{h^m_{i,j,k}-h^{m-1}_{i,j,k}}{t^m-t^{m-1}}\end{aligned} \qquad \textbf{(5.10)}$$

où $h^m_{i,j,k}$ est la charge hydraulique dans la cellule i, j, k au pas de temps m ; CV, CR et CC sont les conductances hydrauliques entre le nœud i, j, k et un nœud voisin, $P_{i,j,k}$ est la somme des coefficients de charge hydraulique des termes source et puits, $Q_{i,j,k}$ est la somme d'éléments constants du terme source/puits (une valeur positive signifie que de

l'eau entre dans le système), $s_{s_{i,j,k}}$ est l'emmagasinement spécifique $\Delta r_j \Delta c_i \Delta v_k$ sont les dimensions de la cellule ***i, j, k*** et leur produit donne le volume de la cellule et t^m est le temps dans le pas *m*.

On peut écrire une équation (5.10) pour chaque cellule, en obtenant un système d'équations qui peut être exprimé de façon matricielle comme $\overline{\overline{A}}\overline{h} = \overline{q}$, où $\overline{\overline{A}}$ représente la matrice de coefficients de charge hydraulique des cellules actives du système, $\overline{h}$ est le vecteur de charge hydraulique à la fin du pas de temps m pour tous les nœuds et $\overline{q}$ est le vecteur de termes constants des nœuds de la maille.

Les principales limitations de MODFLOW sont dues au fait que l'eau doit avoir une masse volumique, viscosité dynamique et température constantes (une version modifiée de MODFLOW appelée SEAWAT permet de simuler des écoulements d'eau avec une densité variable). En plus, les anisotropies non orthogonales du tenseur de conductivité hydraulique ne sont pas permises, (comme c'est le cas des milieux poreux fracturés).

2.1.2. MT3D

Il s'agit d'un modèle de transport de soluté en 3-D développé en 1990 par Chunmiao Zheng avec une partie du financement issue de l'USEPA. Le modèle permet la simulation de la convection, la dispersion et les réactions chimiques des constituants dissous dans le système eau-sol. Le logiciel utilise une approche Euler-Lagrange pour résoudre l'équation d'advection-dispersion réactive en trois dimensions avec trois options : la méthode des caractéristiques, la méthode modifiée des caractéristiques et un hybride des deux dernières méthodes. MT3D peut être utilisé avec tous modèles de flux de différences finies (bloc centré) comme MODFLOW et se base sur l'hypothèse que les changements dans le domaine de la concentration n'affecteront pas le champ d'écoulement. Ainsi, MODFLOW calcule le champ d'écoulement et MT3D récupère les charges hydrauliques et les termes de source/puits enregistrés, en intégrant les conditions aux limites.

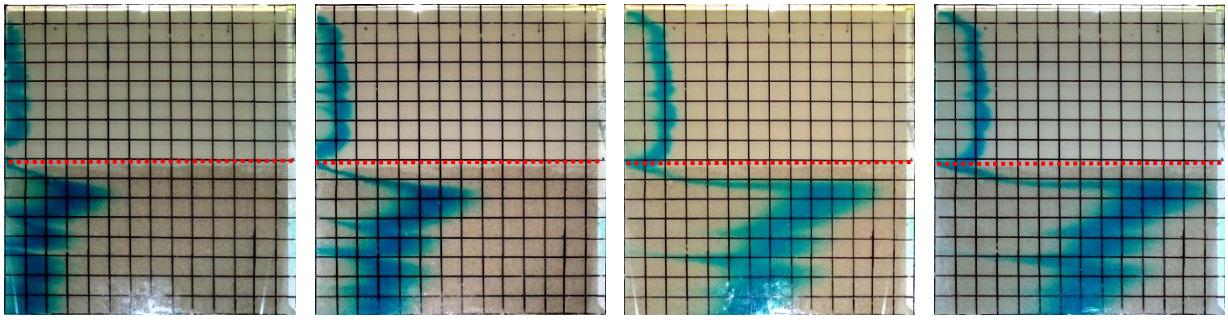
Ainsi, la combinaison de MODFLOW et MT3D nous permettra de modéliser les tests de traçage et d'estimer les perméabilités pour chaque situation.

2.2. Modélisation du *Pilote 1*

2.2.1. Modélisation du premier test de traçage. Calcul de la perméabilité

Un test de traçage avec du colorant bleu (erioglaucine A) a été réalisé (voir détails dans le Chapitre 3). Le but de la modélisation de ce test avec MODFLOW et MT3D est d'obtenir la perméabilité de chaque couche. Pour cela on utilise les données expérimentales disponibles : les dimensions de chaque couche et leur porosité (ϕ = *39,18 %* pour la couche supérieure et ϕ = *27,9 %* pour la couche inférieure), la position des piquages d'injection et d'aspiration, le débit total (Q_T = *11 ml/min* réparti en 7 piquages, le piquage 5 est utilisé pour mesurer la perte de charge), la perte de charge (ΔP = *3,25 cm d'eau*), les fronts d'avancement du traceur pour des différents temps

durant le test (Figure 5.11) et la dispersivité (on prend $\alpha = 0{,}05$ *cm*, valeur obtenue avec le test de traçage dans la section 2.1.2a du Chapitre 4).



a) $t = 0$ *min* b) $t = 12$ *min* c) $t = 32$ *min* d) $t = 37$ *min*

Figure 5.11. Front d'avancement du liquide pendant le test de traçage pour le *Pilote 1.*

On cale la perméabilité de chaque couche pour faire coïncider les fronts d'avancement expérimentaux (Figure 5.12) avec ceux simulés par le modèle. La Figure 5.13 montre les fronts d'avancement obtenus par modélisation pour le meilleur calage, qui nous donne des perméabilités $k = 11{,}3$ *Darcy* pour la couche supérieure et $k = 61{,}6$ *Darcy* pour la couche inférieure ($K = 0{,}68$ *cm/min* et $K = 3{,}7$ *cm/min* respectivement).

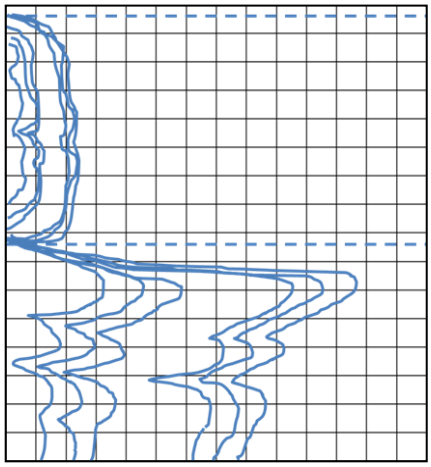
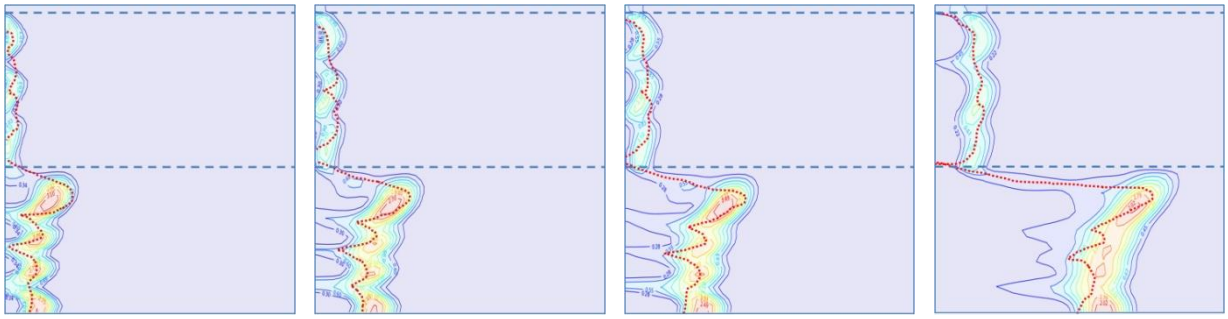


Figure 5.12. Fronts d'avancement utilisés pour la simulation numérique du test de traçage pour le *Pilote 1*. Les six fronts d'avancement correspondent aux temps $t = 0, 7, 12, 32, 37$ et *42 minutes* respectivement.

On observe dans la Figure 5.13 que, suite au calage, le modèle reproduit parfaitement la forme du front d'avancement du traceur. L'avancée plus rapide du traceur à l'interface entre les deux couches provient du flux d'eau injecté dans la couche du haut qui est dévié vers le bas en raison de la différence de perméabilité.

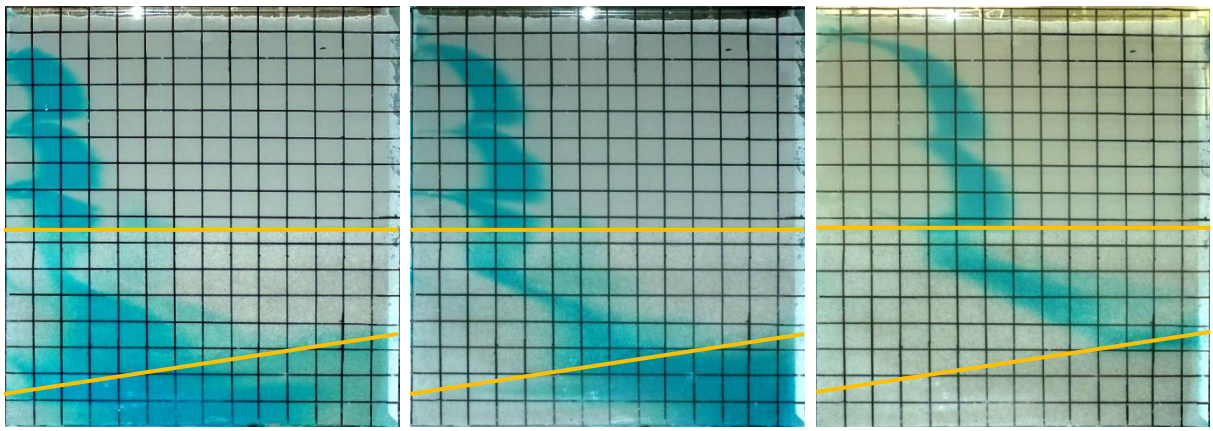


a) t_{exp} = *0 min* t_{sim} = *0 min* b) t_{exp} = *7 min* t_{sim} = *7 min* c) t_{exp} = *12 min* t_{sim} = *12 min* d) t_{exp} = *37 min* t_{sim} = *34,5 min*

Figure 5.13. Modélisation du premier test de traçage pour le *Pilote 1*. Les fronts d'avancement expérimentaux sont représentés par des lignes rouges pointillées.

2.2.2. Modélisation du deuxième test de traçage. Calcul de RF

Après l'expérience de co-injection et la génération de mousse *in situ* dans la partie inférieure du pilote, on reprend l'injection de solution de tensioactif à travers les 7 piquages (numérotés 1, 2, 3, 4, 5, 6 et 7 dans la Figure 3.24). Cette fois ci on ferme le piquage numéro 8 pour éviter le développement d'une couche d'eau libre superficielle. On utilise un pulse de traceur (colorant bleu, Erioglaucine A) pour visualiser la forme du nouveau front d'avancement. Les résultats sont présentés dans la Figure 5.14.



a) t = *0 min* b) t = *22 min* c) t = *65 min*

Figure 5.14. Fronts d'avancement expérimentaux pendant le test de traçage après la co-injection de solution de tensioactif et gaz pour le *Pilote 1*. La zone occupée par de la mousse est limitée par des lignes jaunes.

Les données disponibles sont : les dimensions de chaque couche, leur porosité ($\boldsymbol{\phi}$ = *39,18 %* pour la couche supérieure et $\boldsymbol{\phi}$ = *27,9 %* pour la couche inférieure) les perméabilités obtenues avec le premier test de traçage ($\boldsymbol{k}$ = *11,3 Darcy* pour la couche supérieure et $\boldsymbol{k}$ = *61,6 Darcy* pour la couche inférieure), la position des piquages d'injection et d'aspiration, le débit total ($\boldsymbol{Q_T}$ = *10 ml/min* réparti en 7 piquages), et les fronts d'avancement du traceur pour des différents temps durant le test, présentés dans la Figure 5.15.

On crée une nouvelle zone dans la couche à forte perméabilité là où la mousse est présente (appelée « *zone mousse* » et déterminée visuellement), colorée en bleu dans la Figure 5.15. On ne connaît pas la position du front d'avancement dans la partie de la couche très perméable qui ne contient pas de mousse, du fait qu'il y avait du traceur présent lors du test de co-injection. Cela n'est pas un problème pour la modélisation parce que les propriétés des régions où l'on n'a pas généré de la mousse *in situ* conservent leurs propriétés originales (perméabilité et porosité).

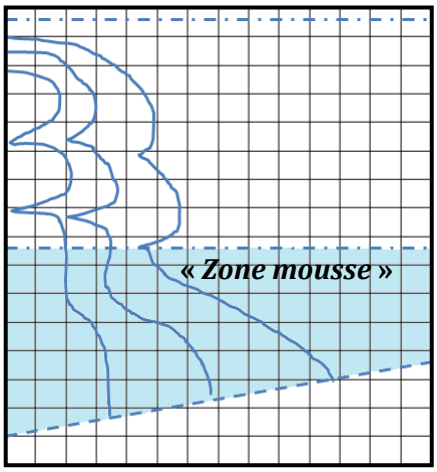


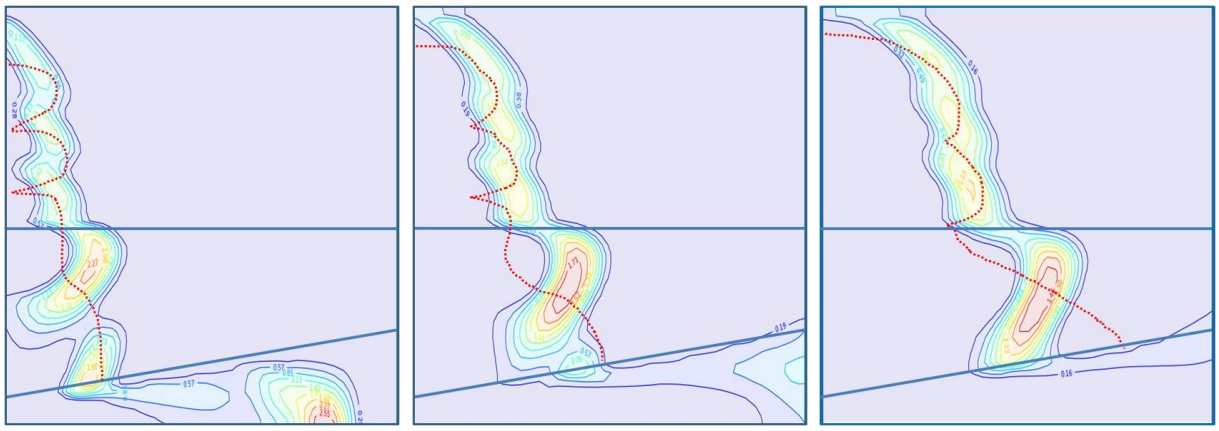
Figure 5.15. Fronts d'avancement expérimentaux utilisés pour la simulation numérique du test de traçage après co-injection pour le *Pilote 1*. Les trois fronts d'avancement correspondent aux temps *t = 0, 22* et *65 minutes* respectivement. La « *zone mousse* » utilisée est coloriée en bleu.

La présence de mousse dans le milieu poreux modifie la saturation du liquide, et par conséquent sa perméabilité relative. Quand on réinjecte du liquide, la quasi-totalité s'écoule à travers son propre réseau de petits pores, en considérant que la quantité de liquide transportée sous forme de lamelles est négligeable. C'est-à-dire que le comportement de l'eau ne dépend pas de la présence de tensioactif. Ainsi, la fonction de perméabilité relative du liquide est la même avec ou sans tensioactif et dépend seulement de la saturation. Dans le cas du gaz : sa mobilité diminue avec la présence du tensioactif dans le liquide et par conséquent sa perméabilité relative dépend aussi de ce paramètre.

On considère cette hypothèse pour modéliser ce deuxième test de traçage. MODFLOW peut seulement modéliser des écoulements dans des milieux poreux totalement saturés en liquide. Ainsi, pour tenir compte de l'espace occupé par le gaz dans la zone bloquée par de la mousse, on considère que l'eau peut s'écouler seulement à travers le volume de pore contenant du liquide. En fait dans MODFLOW on n'utilise que la modification de

perméabilité, c'est MT3D qui utilise la porosité. En d'autres termes, on modifie la porosité de la « *zone mousse* ». Ainsi, on fixe une valeur de la porosité dans cette région égale à la porosité initiale ($\boldsymbol{\phi}$ = *27,9* %) multipliée par la saturation du liquide (c'est-à-dire, la porosité de la « *zone mousse* » est égale à la fraction volumique du milieu poreux contenant du liquide). Cette saturation n'a pas pu être mesurée expérimentalement, mais les résultats pour les expériences sur colonne indiquent que, pour les écoulements de mousse en régime stationnaire, la valeur de la saturation en liquide est comprise entre *0,15* et *0,35*. Une valeur de la saturation en liquide égale à *0,3* est proposée, en considérant que la récupération du liquide est plus efficace dans les colonnes que dans le pilote, où le gaz a beaucoup plus de liberté de déplacement. On impose donc une porosité égale à *0,1* dans cette « *zone mousse* » du pilote. Avec cette condition, on cale la perméabilité de cette zone (il s'agit donc d'une perméabilité relative à la phase aqueuse) à l'aide des fronts d'avancement du traceur pour différents temps. Le meilleur calage donne une perméabilité pour la « *zone mousse* » égale à $\boldsymbol{k}$ = *4,16 Darcy* ($\boldsymbol{K}$ = *0,25 cm/min*).

La Figure 5.16 présente les fronts d'avancement du traceur obtenus par simulation pour différents temps. On observe que le profil d'écoulement obtenu avec le modèle ne ressemble pas trop au profil expérimental. Cela est peut être dû au fait que la région occupée par de la mousse n'est pas homogène, probablement à cause des effets gravitaires. En plus, les temps expérimentaux et de simulation pour le calage des deux premiers fronts d'avancement (a et b dans la Figure 5.16) coïncident, mais ce n'est pas le cas pour le troisième front d'avancement. En effet, on ajuste le front d'avancement avec un temps de simulation de *55 min* au lieu de *65 min*. C'est-à-dire, dans le modèle on atteint la position *10 min* avant que prévu. Il est possible d'expliquer ce résultat par une diminution du débit injecté qui ne pouvait pas être contrôlé précisément lors de cette phase.



a) t_{exp} = *0 min*, t_{sim} = *0 min* b) t_{exp} = *22 min*, t_{sim} = *22 min* c) t_{exp} = *65 min*, t_{sim} = *55 min**

Figure 5.16. Modélisation du test de réinjection de liquide après la co-injection pour le *Pilote 1*, avec une « *zone mousse* ». Les fronts d'avancement expérimentaux du liquide sont représentés par des lignes rouges pointillées.

Pour résoudre le problème de la forme du front d'avancement, un autre modèle comportant deux sous régions de mousse (***a*** et ***b***) est proposé (Figure 5.17). On conserve la même porosité ($\phi = 0,1$) pour les deux « *zones mousse* », et on cale leurs perméabilités. La Figure 5.18 montre les profils d'écoulement obtenus par simulation avec cette nouvelle configuration.

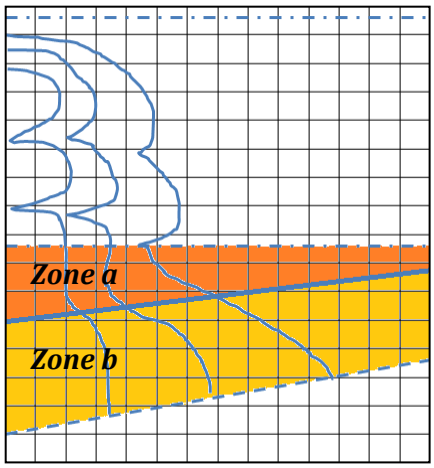
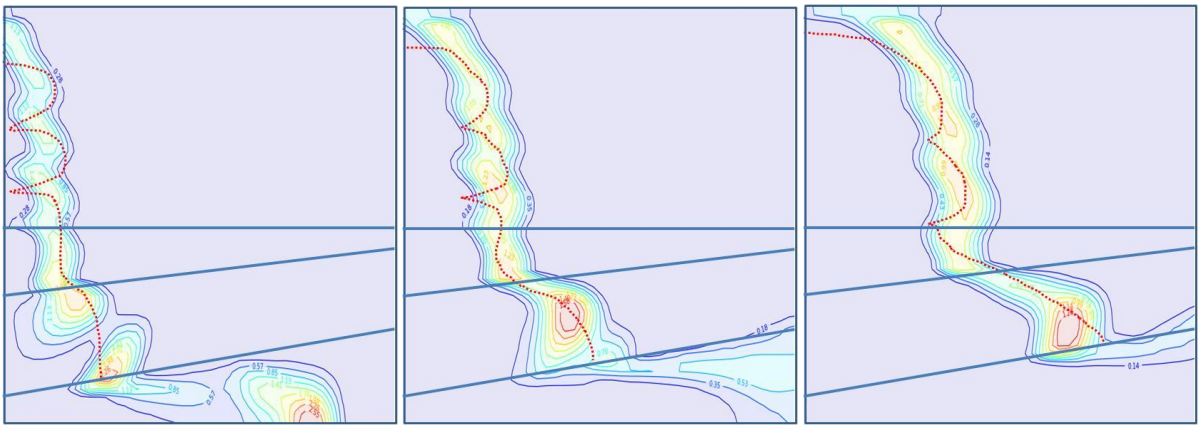


Figure 5.17. Fronts d'avancement expérimentaux utilisés pour la simulation numérique du test de traçage après co-injection pour le *Pilote 1*. Les trois fronts d'avancement correspondent aux temps *t = 0, 22* et *65 minutes* respectivement. Les deux « *zones mousses* », « *a* » et « *b* » sont coloriées orange et jaune respectivement.



a) $t_{exp} = 0$ *min*, $t_{sim} = 0$ *min*

b) $t_{exp} = 22$ *min*, $t_{sim} = 22$ *min*

c) $t_{exp} = 65$ *min*, $t_{sim} = 52$ *min**

Figure 5.18. Modélisation du test de réinjection de liquide après la co-injection pour le *Pilote 1*, avec deux « *zones mousse* ». Les fronts d'avancement expérimentaux sont représentés par des lignes rouges pointillées.

Par rapport au modèle avec une seule « *zone mousse* », on constate que la forme du front d'avancement obtenu par simulation est beaucoup plus proche de celle du front expérimental. Par contre, on observe le même problème que dans le cas précédent : les

temps de simulation coïncident avec les temps expérimentaux pour les deux premiers fronts d'avancement mais pas pour le troisième. On ajuste ce front d'avancement avec un temps de simulation de *52 min* au lieu de *65 min*. Comme la forme du front d'avancement obtenu par simulation est très proche de celle du profil expérimental, on peut conclure que cette différence de temps n'est pas une conséquence d'un changement de porosité ou de perméabilité mais cela veut dire que le débit donné par la pompe péristaltique a diminué au cours de l'expérience. Le meilleur calage donne une perméabilité $\boldsymbol{k}$ = *2,49 Darcy* pour la zone $\boldsymbol{a}$ et $\boldsymbol{k}$ = *5,83 Darcy* pour la zone $\boldsymbol{b}$. Cela représente une réduction de perméabilités d'environ *24* fois pour la zone $\boldsymbol{a}$ et de *10* fois pour la zone $\boldsymbol{b}$.

2.3. Modélisation du *Pilote 2*

2.3.1. Modélisation du premier test de traçage. Calcul de la perméabilité

Un test de traçage avec du colorant bleu (erioglaucine A) a été réalisé (voir détails dans le Chapitre 3, section 3.3.2). Les données expérimentales disponibles pour estimer la perméabilité de chaque couche à l'aide de la modélisation numérique sont : les dimensions de chaque partie et leur porosité ($\boldsymbol{\phi}$ = *0,35* pour la couche supérieure et $\boldsymbol{\phi}$ = *0,33* pour la couche inférieure), la position des piquages d'injection et d'aspiration, le débit total ($\boldsymbol{Q_T}$ = *11,6 ml/min* réparti en 8 piquages), la perte de charge, $\boldsymbol{\Delta P}$ = *5,4 cm d'eau* ou *529,2 Pa* pour la couche à faible $\boldsymbol{k}$ (piquages a et a') et $\boldsymbol{\Delta P}$ = *2,8 cm d'eau* ou *274,4 Pa* (piquages b et b') pour la couche à forte $\boldsymbol{k}$, les fronts d'avancement du traceur pour différents temps durant le test (Figure 5.19) et la valeur de la dispersivité $\boldsymbol{\alpha}$ = *0,05 cm*.

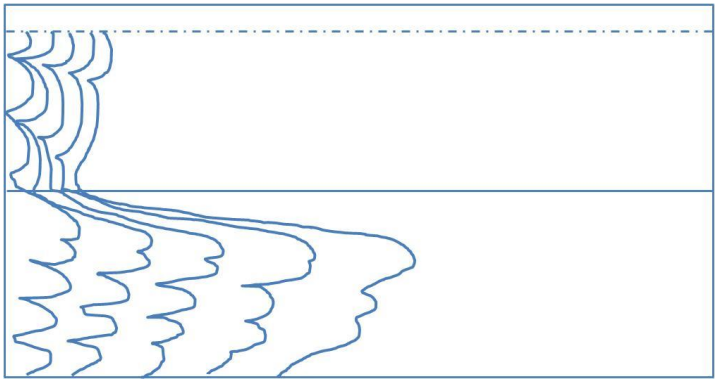
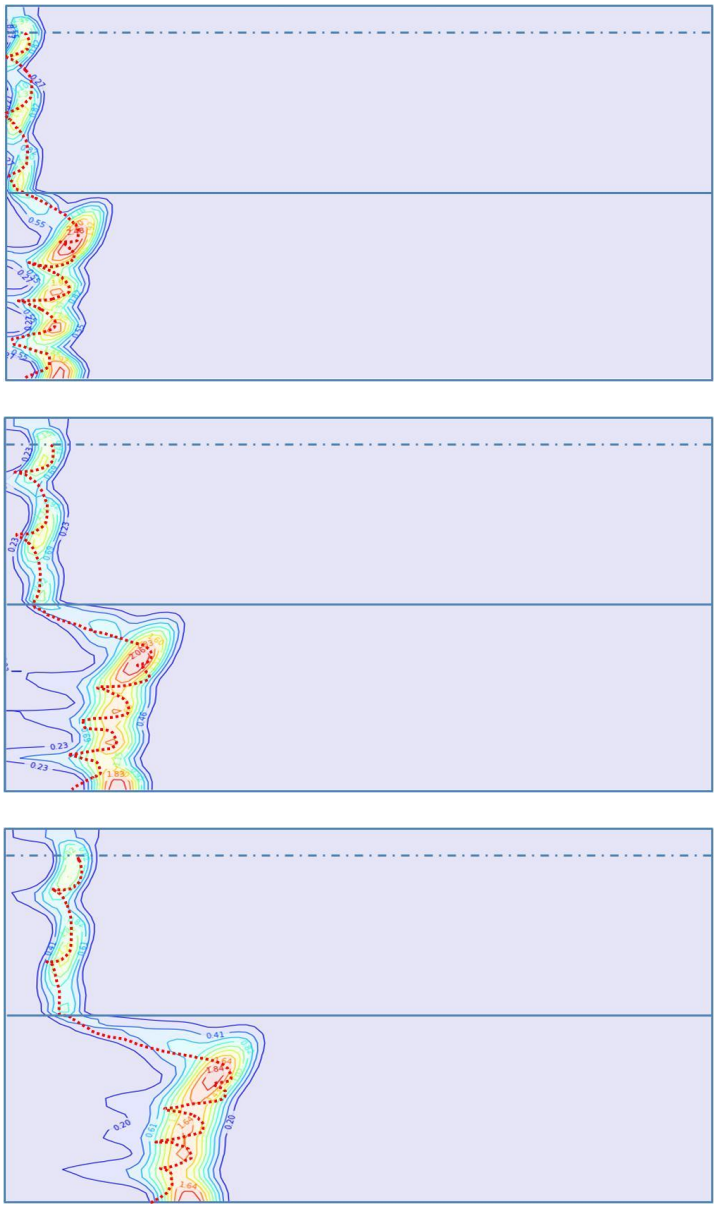


Figure 5.19. Fronts d'avancement expérimentaux utilisés pour la simulation numérique du test de traçage du *Pilote 2*. Les fronts d'avancement correspondent aux temps t = *0*, *16*, *32*, *52* et *74 minutes* respectivement. La ligne pointillée limite la zone qui n'est pas visible dans les photos.

On ajuste la perméabilité de chaque couche pour faire coïncider les fronts d'avancement expérimentaux avec ceux donnés par le modèle. La Figure 5.20 montre les fronts d'avancement obtenus par modélisation pour le meilleur calage, qui nous donne des

perméabilités ***k*** = *13,31 Darcy* pour la couche supérieure et ***k*** = *61,6 Darcy* pour la couche inférieure (***K*** = *0,8 cm/min* et ***K*** = *3,7 cm/min* respectivement). On observe que les temps de simulation et les temps expérimentaux sont très proches. Par rapport au *Pilote 1*, qui a été fabriqué avec les mêmes types de sable, on constate que l'on a obtenu par calage des perméabilités assez proches (***k*** = *11,3 Darcy* pour la couche supérieure et ***k*** = *61,6 Darcy* pour la couche inférieure). La légère variation de perméabilité dans la couche peu perméable pourrait être attribuée au tassage du sable.

Le front d'avancement expérimental est un peu différent du front obtenu par simulation dans la partie inférieure de la couche à forte ***k***. On constate que cette partie du front expérimental avance plus vite que celui obtenu numériquement. Cela peut être dû à un effet de bout ou à des hétérogénéités présentes dans le milieu poreux réel.



a) t_{exp} = *0 min*
t_{sim} = *0 min*

b) t_{exp} = *16 min*
t_{sim} = *15 min*

c) t_{exp} = *32 min*
t_{sim} = *31,5 min*

Figure 5.20. Modélisation du premier test de traçage pour le *Pilote 2*. Les fronts d'avancement expérimentaux sont représentés par des lignes rouges pointillées.

2.3.2. Modélisation du deuxième test de traçage. Calcul du RF

Après l'expérience de co-injection et la génération de mousse *in situ* dans la partie inférieure du pilote, on reprend l'injection de solution de tensioactif à travers les 8 piquages. On utilise un pulse de colorant bleu pour visualiser la forme du front d'avancement. Les fronts d'avancement obtenus sont présentés dans la Figure 5.21.

Les données disponibles sont : les dimensions de chaque couche, leur porosité ($\phi = 0,35$ pour la couche supérieure et $\phi = 0,33$ pour la couche inférieure) les perméabilités obtenues avec le premier test de traçage ($k = 13,31$ *Darcy* pour la couche supérieure et $k = 61,6$ *Darcy* pour la couche inférieure), la position des piquages d'injection et d'aspiration, le débit total ($Q_T = 11,6$ *ml/min* réparti en 8 piquages), et les fronts d'avancement du traceur pour différents temps durant le test. Pour modéliser ce test de traçage, on utilise les hypothèses présentées dans la section 2.2.2 de ce chapitre. On crée une « *zone mousse* » dans la couche à forte k là où la mousse est présente (marquée en bleu dans la Figure 5.21). La porosité et perméabilité des zones où il n'y a pas de mousse restent inchangées. On considère que la saturation en eau de la zone bloquée par de la mousse est égale à 0,3. Ainsi, la porosité fixée pour la « *zone mousse* » est $\phi = 0,1$.

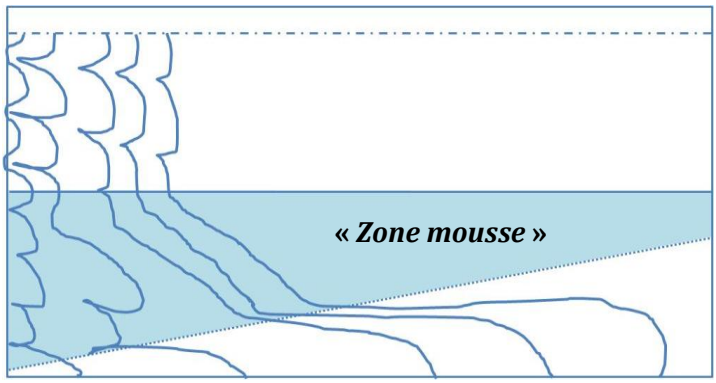
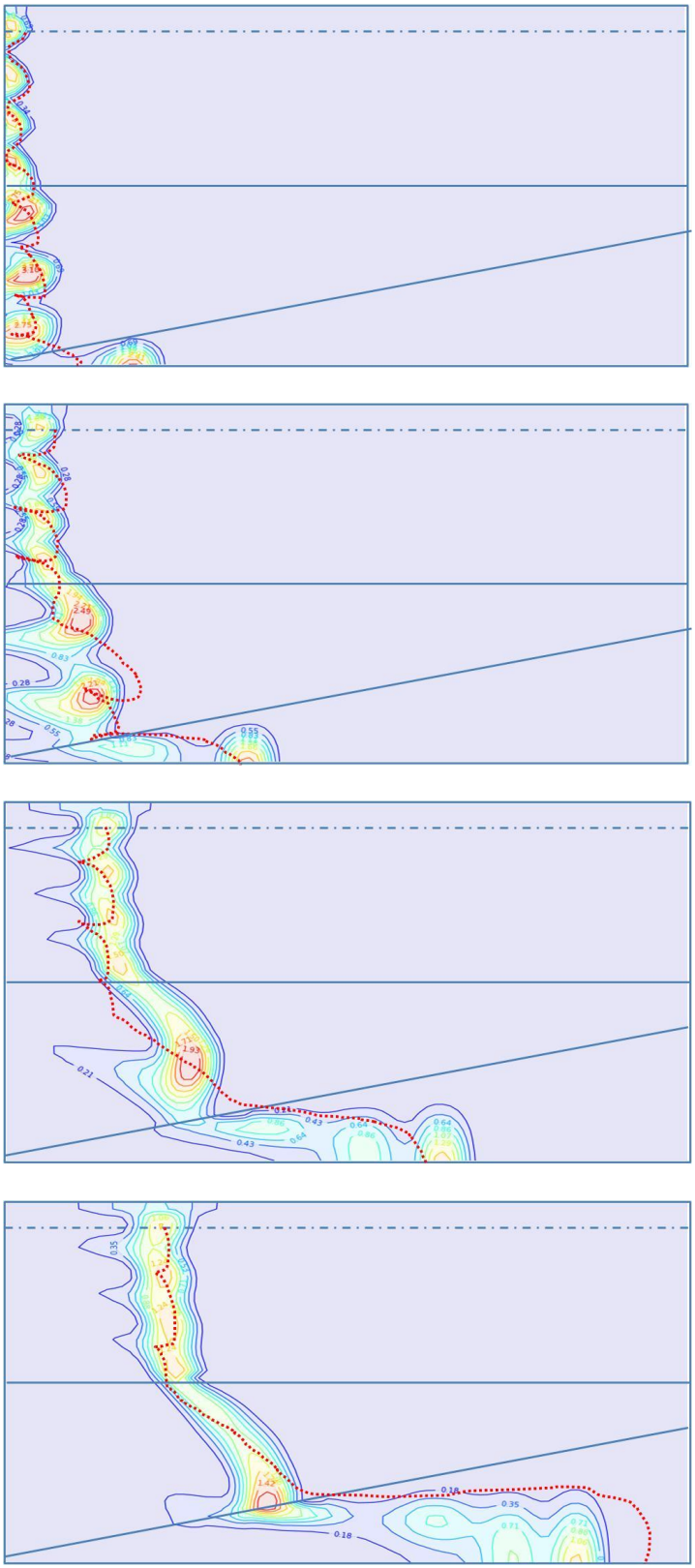


Figure 5.21. Fronts d'avancement expérimentaux utilisés pour la simulation numérique du test de traçage après la co-injection pour le *Pilote 2*. Les fronts d'avancement correspondent aux temps $t = 0, 35, 62, 94$ et *115 minutes* respectivement. La ligne pointillée limite la zone qui n'est pas visible dans les photos. La « *zone mousse* » est colorée en bleu.

On cale ensuite la perméabilité de cette zone afin de faire coïncider les fronts d'avancement expérimentaux avec ceux obtenus par simulation. La Figure 5.22 montre les fronts d'avancement obtenus par simulation numérique pour le meilleur calage, qui nous donne une perméabilité pour la « *zone mousse* » $k = 5,82$ *Darcy* ($K = 0,35$ *cm/min*), ce qui représente une réduction de perméabilité de $\simeq 11$ fois.

La modélisation de ce test présente plus de difficultés que celle du *Pilote 1*. D'abord on constate que les temps de simulation t_{sim} et expérimentaux t_{exp} sont très différents. Cela est certainement dû à l'apport d'eau que l'on fait quand la partie supérieure s'assèche. En effet, ces apports risquent d'être du même ordre de grandeur que le débit d'injection. Ce fait provoquerait un retard de l'avancement du front coloré.



a) t_{exp} = *0 min*
t_{sim} = *0 min*

b) t_{exp} = *35 min*
t_{sim} = *12 min**

c) t_{exp} = *62 min*
t_{sim} = *31,5 min**

d) t_{exp} = *115 min*
t_{sim} = *60 min**

Figure 5.22. Modélisation du test de traçage après co-injection pour le *Pilote 2* avec une *« zone mousse »*. Les fronts d'avancement expérimentaux sont représentés par des lignes rouges pointillées.

Afin d'améliorer le calage de cette expérience, on réalisé plusieurs tests avec des différentes valeurs de la porosité (c'est-à-dire, la proportion de liquide présente dans la région occupée par de la mousse). Les résultats en termes de temps et de forme du front d'avancement ne sont pas très différentes de ceux que l'on a obtenus précédemment. On continue donc avec la même valeur de porosité 0,1 pour la zone mousse.

Une deuxième difficulté réside dans le fait que le gaz n'est pas immobile dans la zone bloquée par de la mousse, comme l'on a expliqué dans la section 3.2.4 du Chapitre 4. Par conséquent, la saturation en liquide de cette zone augmente avec le temps, et cela n'a pas pu être quantifié expérimentalement ni pris en compte dans la simulation numérique.

Comme dans le cas du *Pilote 1*, on observe que la forme des profils expérimentaux est légèrement différente de celle des profils obtenus par simulation au niveau de la zone contenant de la mousse, probablement parce que la distribution de gaz dans cette partie n'est pas homogène.

Ainsi, un autre modèle comportant deux sous régions (zone ***a*** et zone ***b***) dans la zone occupée par de la mousse est proposé (Figure 5.23). On impose la même porosité pour les deux zones et on cale leurs perméabilités.

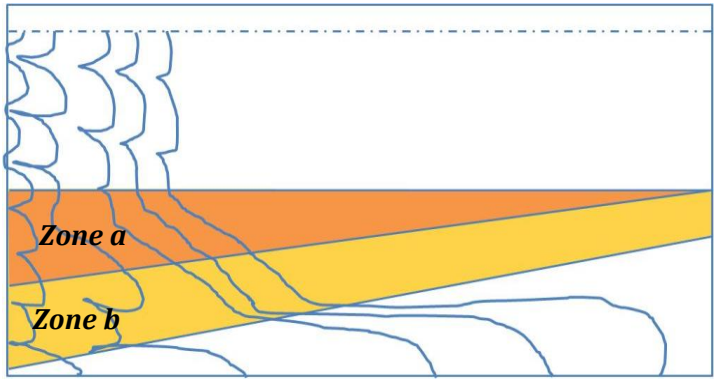
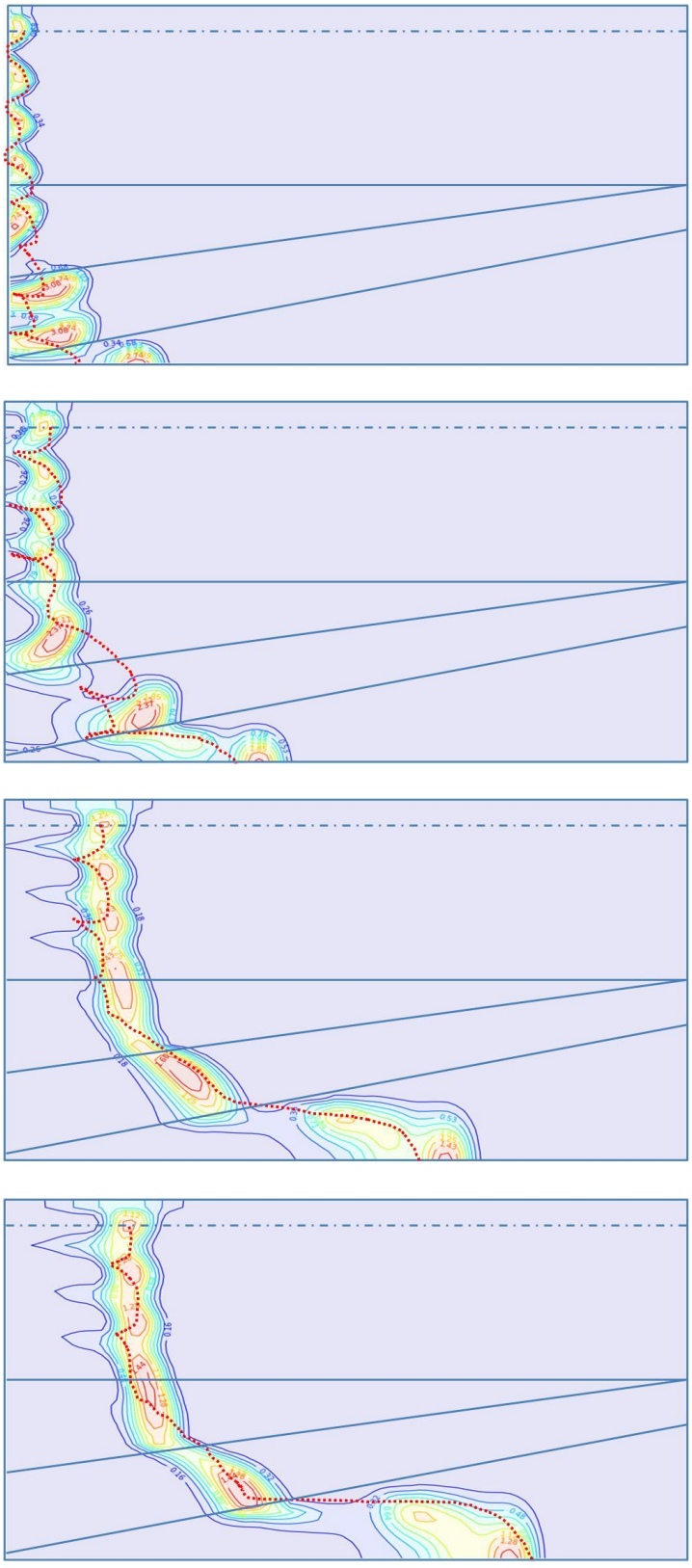


Figure 5.23. Fronts d'avancement expérimentaux utilisés pour la simulation numérique du test de traçage après la co-injection pour le *Pilote 2*. Les fronts d'avancement correspondent aux temps *t = 0, 35, 62, 94* et *115 minutes* respectivement. La ligne pointillée limite la zone qui n'est pas visible dans les photos. Les deux « *zones mousse* », *a* et *b*, sont coloriées en orange et jaune respectivement.

La Figure 5.24 présente les fronts d'avancement obtenus par simulation numérique avec cette nouvelle configuration pour le meilleur calage, qui donne une perméabilité pour la zone ***a*** égale à ***k*** = *4,16 Darcy* (***K*** = *0,25 cm/min*) et pour la zone ***b*** égale à ***k*** = *10 Darcy* (***K*** = *0,6 cm/min),* ce qui représente une réduction de perméabilité de $\simeq$ *15* et $\simeq$ *6* fois respectivement. On observe que cette nouvelle configuration améliore légèrement le calage des positions des fronts d'avancement, même si les premiers instants du test sont difficiles à ajuster. Comme dans le cas précédent, on constate que les temps de simulation sont très différents des temps expérimentaux.



a) t_{exp} = *0 min*
t_{sim} = *0 min*

b) t_{exp} = *35 min*
t_{sim} = *13 min**

c) t_{exp} = *62 min*
t_{sim} = *38 min**

d) t_{exp} = *94 min*
t_{sim} = *48 min**

Figure 5.24. Modélisation du test de traçage après co-injection pour le *Pilote 2* avec deux « *zones mousse* ». Les fronts d'avancement expérimentaux sont représentés par des lignes rouges pointillées.

2.4. Conclusions

La modélisation des tests de traçage avec MODFLOW et MT3D ont permis d'abord d'estimer la perméabilité initiale de chaque couche du milieu poreux, obtenant des temps simulés très proches des temps expérimentaux. Les valeurs de perméabilité obtenues sont du même ordre de grandeur que celles mesurées sur colonne (pour le même type de sable). Les variations peuvent être attribuées à l'utilisation d'une technique différente pour la mise en place du milieu poreux (tassage, etc.).

On s'est ensuite proposé d'estimer la perméabilité relative à la phase aqueuse dans la zone occupée par de la mousse, à l'aide des fronts d'avancement obtenus pendant le deuxième test de traçage. Même si la forme des fronts d'avancement expérimentaux rassemble à celle des fronts obtenus par simulation numérique, leur position dans le temps est différente. En effet cela est dû principalement aux variations de débit. La pompe travaillant en circuit ouvert, les débits d'aspiration et d'injection ne sont pas identiques et un apport de liquide à travers la surface était nécessaire pour maintenir le pilote saturé. Cet apport n'a pas été comptabilisé et il est possible que son effet sur le mouvement du front d'avancement soit plus important que prévu. En plus, la sortie du gaz provenant de la région bloquée par de la mousse fait que la saturation en phase aqueuse de cette partie varie avec le temps. Ce phénomène a été constaté visuellement (spécialement pour le cas du pilote de plus grandes dimensions) mais ce paramètre n'a pas pu être mesuré ni intégré dans le modèle numérique.

Concernant la réduction de perméabilité relative, on constate que les valeurs obtenues par simulation numérique pour le *Pilote 1* sont plus grandes que pour le cas du *Pilote 2*. Cela veut dire que le blocage de la couche à forte $\boldsymbol{k}$ a été plus efficace dans le *Pilote 1* (de plus petite dimension). Ce fait peut être attribué dans un premier temps à que le liquide s'écoule plus facilement à travers la zone occupée par de la mousse quand celle-ci devient plus humide, ce qui est le cas du *Pilote 2*. Une autre cause pourrait être liée aux difficultés rencontrées pendant l'étape de co-injection de gaz et de solution de tensioactif dans le cas du *Pilote 2*. La présence d'un chemin préférentiel et la conséquente remontée du gaz injecté directement en surface signifient des conditions d'injection différentes et celles qui pourraient avoir générée une mousse de texture différente, et donc de propriétés différentes.

Tandis que la modélisation du test de traçage sans présence de mousse est très satisfaisante et donne des résultats très proches de la réalité, celle du deuxième test de traçage présente plus de difficultés (principalement à cause des paramètres qui varient avec le temps et qui n'ont pas pu être quantifiés). Néanmoins il reste un outil simple et intéressant pour obtenir une première approximation de l'efficacité du blocage par de la mousse.

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

1. Conclusions

Les **tests de moussabilité hors milieu poreux** ont permis de comparer, à l'aide d'un dispositif expérimental simple, les caractéristiques de la mousse générée à partir de différentes solutions de tensioactif. L'objectif de cette étude était de trouver un produit respectueux de l'environnement avec des bonnes propriétés moussantes. Deux candidats (laurate de saccharose et rhamnolipide) ont été choisis et ensuite comparés avec un tensioactif dit classique, le Triton® X-100. Le laurate de saccharose, qui génère une mousse très stable avec un temps de demi-vie presque cinq fois supérieur à celui de la mousse de Triton® X-100, a été retenu pour la réalisation des expériences sur colonne poreuse. Bien que les résultats de ces expériences ne soient pas directement transposables aux situations en milieu poreux (où les phénomènes gouvernant la génération et destruction de lamelles sont d'une autre nature) ils sont un moyen rapide de comparer les propriétés des mousses générées à partir de différents agents tensioactifs.

Les résultats des **expériences sur colonne 1-D**, présentés sous forme de facteur de résistance à la mobilité ***RF***, suggèrent l'existence de deux régimes répondant aux deux textures de mousse : « *weak foam* » et « *strong foam* ».

Le premier comportement, observé pour les colonnes à faible perméabilité ($\boldsymbol{k} \simeq 250$ *millidarcy*) donne des valeurs faibles de ***RF*** en régime permanent, révélant une faible réduction de la mobilité du gaz, typique des « *weak foams* ». En régime transitoire on constate que les deux types de texture de mousse coexistent dans la colonne. En effet on génère d'abord de la « *strong foam* », et quand la saturation en phase aqueuse diminue, la pression capillaire augmente et atteint la valeur critique, qui produit des lamelles instables générant de la « *weak foam* ». Ce phénomène se manifeste visuellement par le déplacement d'un double front à travers la colonne, de différente couleur (saturation), et à travers la courbe de perte de charge, par un changement de pente.

Pour les expériences à forte perméabilité ($\boldsymbol{k} > 8$ *Darcy*), la valeur de ***RF*** est grande, typique de la « *strong foam* ». On observe que la valeur de ***RF*** diminue quand la perméabilité augmente. La pression capillaire étant plus faible pour des perméabilités plus fortes, de plus faibles pressions sont nécessaires pour déplacer les lamelles et la mobilité du gaz augmente.

En terme de qualité de mousse, ce paramètre ne semble pas avoir une grande influence sur le ***RF*** (pour la gamme de valeurs utilisée dans cette étude, comprise entre *85* et *99 %*). Ceci induit qu'il est possible de générer de la mousse stable avec un faible débit fractionnaire de liquide. Ainsi, la quantité de tensioactif requise est faible et le coût du processus de remédiation diminue.

Le type de tensioactif ne semble pas avoir un effet important sur la valeur de ***RF***. Cela suggère donc que le sucroester pourrait se substituer au Triton® X-100 dans cette application.

Les expériences sur **pilotes 2-D hétérogènes** ont permis de visualiser les différentes phases du processus de lavage des sols combiné avec la génération de mousse *in situ*. La comparaison des fronts d'avancement du liquide obtenus pendant le premier test de traçage (sans mousse) avec ceux du traçage après co-injection montre que la présence d'une région bloquée par de la mousse améliore l'efficacité de balayage de la couche à faible perméabilité. Ainsi, le front d'avancement est plus net et la quantité de liquide nécessaire pour balayer toute la surface du pilote est plus faible, ce qui permettrait de réduire le coût global du processus.

Ces tests ont mis en évidence les avantages de la technique et aussi les éléments clefs pour sa mise en place à l'échelle du terrain. Par exemple, le design du système d'injection est une étape cruciale pour éviter que l'air monte directement en surface à travers les fissures ou des chemins préférentiels. Un autre aspect important est la persistance de la mousse. Si les lamelles se déstabilisent ou que le gaz est très mobile, la région bloquée par de la mousse devient plus humide avec le temps pendant la réinjection de liquide. Ainsi, une plus grande fraction d'eau pourrait s'écouler à travers cette zone et l'efficacité du blocage diminuerait avec le temps. Une possible solution serait d'alterner des étapes de co-injection et de réinjection de liquide pour régénérer la mousse de façon périodique.

La **modélisation des expériences sur colonne** à l'aide de UTCHEM a permis de comprendre les équations du modèle et d'identifier les paramètres les plus importants. Pour simuler des expériences 1-D, où la vitesse du gaz est constante, on arrive à caler le régime permanent en terme de pression à l'aide d'un seul paramètre, RFMAX. Néanmoins le modèle présente plus de difficultés pour simuler l'état transitoire (où les phénomènes ayant lieu sont plus complexes).

La **modélisation des tests de traçage sur pilote 2-D** hétérogène a d'abord permis d'estimer la perméabilité initiale de chaque couche et ensuite d'obtenir une approximation de la valeur de perméabilité relative à la phase aqueuse de la zone bloquée par de la mousse. En effet, la variation de la saturation en phase liquide de cette zone avec le temps et le manque de précision des débits représentent une difficulté pour la modélisation du deuxième test de traçage. Néanmoins, les valeurs de réduction de perméabilité présentées peuvent être utilisés comme première approximation pour connaître l'efficacité du blocage de la région très perméable par de la mousse.

2. Perspectives

La sélection du tensioactif étant une étape cruciale dans le design du processus de remédiation, il serait très souhaitable de tester l'effet de l'huile sur la stabilité de la mousse produite hors et en milieu poreux. En effet, les propriétés de la mousse peuvent varier drastiquement en présence du polluant, et cela pour chaque type de tensioactif. Ainsi, avant de passer à l'échelle du terrain, il faut étudier le couple polluant-tensioactif afin de choisir un produit adapté et de vérifier si le processus est viable d'un point de vue économique. Concernant la simulation numérique avec UTCHEM, l'estimation des paramètres reste compliquée et des expériences de laboratoire supplémentaires sont nécessaires si l'on veut connaître ceux liées à l'effet « *shear-thining* ». Cela permettrait de

simuler des environnements plus complexes (par exemple en 3-D) où la vitesse du gaz varie dans le temps et l'espace (et par conséquent les propriétés rhéologiques de la mousse).

En ce qui concerne les expériences sur pilote 2-D, la stratégie SAG pourrait être testée pour améliorer la persistance de la mousse. Il serait envisageable de réaliser des tests avec un pilote complètement fermé pour éviter les problèmes de différence de débit et l'assèchement de la surface libre, ainsi que la sortie du gaz injectée du système. D'autres dispositions des milieux poreux pourraient être testées (comme par exemple la couche à faible $\boldsymbol{k}$ en position inférieure) afin de vérifier si la disposition des strates joue un rôle important. La réalisation d'une expérience en présence d'huile permettrait de simuler un cas réel de pollution et d'adapter et développer la technique avant de passer à l'échelle du terrain. Enfin, la mesure de la saturation de la phase aqueuse dans la zone bloquée par la mousse (et son évolution temporelle) et un contrôle minutieux des débits permettraient de simuler de façon plus précise ce test à l'aide de MODFLOW.

Références

Afsharpoor, A., G. S. Lee and S. I. Kam. "Mechanistic simulation of gas injection during surfactant-alternating-gas (SAG) processes using foam catastrophe theory". *Chemical Engineering Science*, 65: 3615‑31, 2010.

Alvarez, J. M. "Foam flow behavior in porous media: effects of flow regime and porous medium heterogeneity". Doctoral thesis, University of Texas at Austin, 1998.

Alvarez, J. M., H. J. Rivas and W.R. Rossen. "Unified Model for Steady-State Foam Behavior at High and Low Foam Qualities". *Society of Petroleum Engineers Journal*, 325‑333, September 2001.

Apaydin, O. G. and A. R. Kovscek. "Surfactant concentration and end effects on foam flow in porous media". *Transport in Porous Media,* 43 (3): 511‑36, 2001.

Atteia, O., E. Del Campo Estrada and H. J. Bertin. "Soil flushing: a review of the origin of efficiency variability". *Reviews in Environmental Sciences and Biotechnology* 12 (4): 379‑389, 2013.

Baker, I. J. A., B. Matthews, H. Suares, I. Krodkiewska, D. N. Furlong, F. Grieser and C. J. Drummond. "Sugar fatty acid ester surfactants: Structure and ultimate aerobic biodegradability". *Journal of Surfactants and Detergents,* 3 (1), 2000.

Bear, J. "Hydraulics of Groundwater". McGraw-Hill, Inc., New York, 1979.

Bergeron, V., M. E. Fagan and C. J. Radke. "Generalized entering coefficients: a criterion for foam stability against oil in porous media". *Langmuir,* 9 (7): 1704‑13, 1993.

Bertin, H. J., O. Apaydin, L. Castanier and A. R. Kovscek. "Foam flow in heterogeneous porous media: Effect of cross flow". *Society of Petroleum Engineers Journal,* 4 (2): 75‑82, 1999.

Bhuyan, D., G. A. Pope and L. W. Lake. "Mathematical Modeling of High-pH Chemical Flooding". SPE Reservoir Engineering, 5(2) : 213-220, 1990.

Brooks, R. J. and A. T. Corey. "Hydraulic properties of porous media". *Hydrology Papers*, Colorado State University 3, 1964.

Buckley, S. E. and M. C. Leverett. "Mechanism of fluid displacement in sands". *Trans AIME,* 146 : 107‑116, 1942.

Burdine, N. T. "Relative permeability calculations from pore-size distribution data". *Trans AIME*, 198 : 71‑77, 1953.

Casteel, J. F. and N. F. Djabbarah. “Sweep improvement in CO_2 flooding by use of foaming agents”. *SPE Reservoir Engineering,* 3: 1186‑1192, 1988.

Chambers, K. T. and C. J. Radke. “Capillary phenomena in foam flow through porous media” in Interfacial Phenomena in Petroleum Recovery. Vol. 36. Surfactant Science Series. New York: Morrow, N.R., 1991.

Charbeneau, R. J. “Groundwater hydraulics and pollutant transport“. Prentice Hall, 2000.

Chatzis, I., N. R. Morrow and H. T. Lim. “Magnitude and detailed structure of residual oil saturation“. *Society of Petroleum Engineers Journal,* 23 (2) : 311‑325, 1983.

Chou, S. I. “Conditions for generating foam in porous media”. Annual Technical Conference of Society of Petroleum Engineers, October 1991.

De Lalaing, J. “Evaluation of the possibility of using ultrasound for the remediation of a sandy aquifer polluted by light nonaqueous phase (LNAPL)”. Master thesis, Masachusets Institut of Technology, 1997.

Ducret, A., A. Giroux, M. Trani and R. Lortie. “Enzymatic preparation of biosurfactants from sugars or sugar alcohols and fatty acids in organic media under reduced pressure”. *Biotechnology Bioengineering*, 48: 214‑221, 1995.

Ducret, A., A. Giroux, M. Trani and R. Lortie. “Characterization of enzymatically prepared biosurfactants”. *Journal of the American Oil Chemists’ Society*, 73: 109‑113, 1996

EPA. “Monitored natural attenuation of petroleum hydrocarbons. U.S. EPA Remedial Technology Fact Sheet, EPA/600/F-98/021”, May 1999.

Gauglitz, P., F. Friedmann, S. I. Kam and W. R. Rossen. “Foam generation in homogeneous porous media”. *Chemical Engineering Science,* 57 (19): 4037‑52, 2002.

Ettinger, R. A. and C. J. Radke. “Influence of foam texture on steady foam flow in Berea sandstone”. *SPE Reservoir Engineering*, 7 (1): 83‑90, 1992.

Exerowa, D., T. Kolarov and K. Khristov. “Direct measurement of disjoining pressure in black foam films. I. Films from an ionic surfactant”. *Colloids and Surfaces*, 22 : 171‑185, 1987.

Falls, A. H., G. J. Hirasaki, T. W. Patzek, P. A. Gauglitz, D. D. Miller and T. Ratulowski. “Development of a mechanistic foam simulator: The population balance and generation by snap-off”. *SPE Reservoir Engineering,* 3 (3) : 884‑892, 1988.

Farajzadeh, R., A. Andrianov, R. Krastev, G. J. Hirasaki and W. R. Rossen. “Foam–oil interaction in porous media: Implications for foam assisted enhanced oil recovery”. *Advances in Colloid and Interface Science,* 183-184 : 1‑13, November 2012.

Fergui, O. « Écoulements instationnaires de mousses en milieu poreux ». Thèse de doctorat: Université Bordeaux 1, 1995.

Fried, A. N. "The foam-drive process for increasing the recovery of oil". Volume 5866 Report of Investigations, U.S. Department of the Interior, Bureau of Mines (Ed.), 1961.

Fried, J. J. and M. A. Combarnous. "Dispersion in porous media". *Advances in Hydroscience,* 7: 169‑282, 1971.

Gaudin, A. M., and D. W. Fuerstenau. "Quartz Flotation with Cationic Collectors". *Mining Engineering, Trans AIME* 202: 958‑62, 1955.

Gauglitz, P. A., A. I. Friedmann, S.I. Kam and W.R. Rossen. "Foam generation in homogeneous porous media". *Society of Petroleum Engineers Journal*, no 38837 presented at the SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium, Tulsa, OK, April 2002.

Griffin, W. C. "Classification of surface-active agents by HLB". *Journal of the Society of Cosmetic Chemists,* 1 (5): 311‑326, 1949.

Griffin, W. C. "Calculation of HLB values of non-ionic surfactants". *Journal of the Society of Cosmetic Chemists,* 5 (4): 249‑256, 1954.

Harkins, W. D. and A. J. Feldman. "Films: the spreading of liquids and the spreading coefficient." *American Chemical Society*, 44: 2665, 1922.

Hernández, C. "Formación de nanoemulsiones O/W mediante el cambio en la composición/formulación por dilución con agua de sistemas próximos a la formulación óptima". Proyecto de Grado, Universidad de Los Andes, Mérida, 2004.

Hirasaki, G. J. "The steam foam process". *Journal of Petroleum Technology* 41: 449‑456, 1989.

Hirasaki, G. J., C. A. Miller, R. Szafranski, J. B. Lawson and N. Akiya. "Surfactant/foam process for aquifer remediation". *Society of Petroleum Engineers Journal,* 37257, 1997.

Hirasaki, G. J., R. E. Jackson, M. Jin, J. B. Lawson, J. Londergan, H. Meinardus, C. A. Miller, G. A. Pope, R. Szafranski, D. Tanzil, M. D. Annable, J. W. Jawitz, P. S. C. Rao, R. D. Rhue and T. J. Simpkin. "NAPL removal: surfactants, foams and microemulsions", Fiorenza, S., C.A. Miller, C.L. Oubre and C.H. Ward. (Ed.), Lewis Publishers, 2000.

Kam, S. I. "Improved mechanistic foam simulation with foam catastrophe theory". *Colloids and Surfaces. A-physicochemical and Engineering Aspects,* 318: 62‑77, 2008.

Kam, S. I. and W. R. Rossen. "A model for foam generation in homogeneous media". *Society of Petroleum Engineers Journal,* 8, 417‑425, December 2003.

Khatib, Z. I., G. J. Hirasaki and A. H. Falls. "Effects of capillary pressure on coalescence and phase mobilities in foams flowing through porous media" *SPE Reservoir Engineering*, 1988.

Kovscek, A. R. “Foam displacement in porous media: experiment and mechanistic prediction by the population balance method”. Doctoral thesis, University of California, 1993.

Kovscek, A. R. “Reservoir simulation of foam displacement processes”. The 7th UNITAR International Conference on Heavy Crude and Tar Sands in Beijing, China, October, 1998.

Kovscek, A. R. and H. J. Bertin. “Foam mobility in heterogeneous porous media (I. Scaling Concepts)”. *Transport in Porous Media*, 52 : 17‑35, 2003.

Kovscek, A. R. and C. J. Radke. “Fundamentals of foam transport in porous media”. LL. Schramm (Ed.), Foam: Fundamentals and Applications in the Petroleum Industry. American Chemical Society, Washington, D.C., 1994.

Kular, G., K. Lowe and D. A. Coombe. “Foam application in an oil sands steam flood process”. Proceedings of the 64th Annual Technical Conf. of SPE, San Antonio, Texas, no SPE 19690, 1989.

Lake, L. W. “Enhanced Oil Recovery”. Prentice Hall Inc., January 1989.

Larpent, C. « Tensioactifs ». *Techniques de l’Ingénieur, Constantes Physico-chimiques,* (K-342) : 1-14, 1995.

Lefebvre, R. « Écoulement multiphase en milieu poreux ». Université Laval/INRS, Centre –Eau Terre Environnement, Notes de cours, septième édition, automne 2010.

Levenspiel, O. “Chemical Reaction Engineering”. John Wiley & Sons, Inc., Third Edition, 1999.

Leverett, M. C. “Capillary behavior in porous solids”. *Trans AIME*, 142 (1): 152‑169, 1941.

Li, B., G. J. Hirasaki and C.A. Miller. “Upscaling of foam mobility control to three dimensions”. SPE 99719, SPE/DOE Symposium on Improved Oil Recovery, Tulsa OK, 2006.

Liu, J., M. Delshad, G. A. Pope and K. Sepehrnoori. “Application of higher order flux limited methods in compositional simulations”. *Transport in Porous Media* 16: 1‑29, 1994.

Maini, B. B. “Laboratory evaluation of foaming agents for high temperature applications: II. Measurements of thermal stability and foam mobility in porous media”. Annual Technical Meeting, Edmonton, Alberta, no 85-36-30, June 1985.

Marfoe, C. H., H. Kazemi and W. F. Ramirez. “Numerical simulation of foam flow in porous media”. Proceedings of the 62nd SPE Annual Meeting, Dallas, Texas, no SPE 16709, September 1987.

McCray, J. E., G.R. Tick, J. W. Jawitz, J. S. Gierke, M. L. Brusseau, R. W. Falta, R. C. Knox, D. A. Sabatini, M. D. Annable, J. H. Harwell and A. L. Wood. "Remediation of NAPL source zones: lessons learned from field studies at Hill and Dover Air Force Bases". *Ground Water,* 49 (5): 727‑744, September 2011.

Mualem, Y. 1976. "A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media". *Water Resources Research*, 12 (3): 513‑522.

Mulligan, C. N. "Environmental applications for biosurfactants". *Environmental Pollution,* 133 (2): 183‑198, 2005.

Mulligan, C. N. and F. Eftekhari. "Remediation with surfactant foam of PCP-contaminated soil". Third British Geotechnical Society Geoenvironmental Engineering Conference, 70 (3–4): 269‑279, 2003.

Myers, Drew. "Surfactant science and technology". Wiley Interscience, Wiley & sons Inc.,3rd edition, 2006.

Ogata, A. and R. B. Banks. "A solution for the differential equation of longitudinal dispersion in porous media", *US Geological Survey Professional Papers*, 34: p 411, 1961.

Osterloh, W. T. and M. J. Jante. "Effects of gas and liquid velocity on steady-state foam flow at high temperature". SPE/DOE Enhanced Oil Recovery Symposium, 22-24 April, Tulsa, OK, 1992.

Parker, J. C. "Multiphase flow and transport in porous media". *Reviews in Geophysics,* 27 (3): 311‑328, 1989.

Patzek, T. W. "Description of foam flow in porous media by the population balance approach". Surfactant-based mobility control: progress in miscible-flood enhanced oil recovery, D.H. Smith (Ed), *American Chemical Society*, Washington, D.C., p. 326–341, 1988.

Piccicuto, S., C. Blecker, J. C. Brohée, A. Mbampara, G. Lognay, C. Deroanne, M. Paquot and M. Marlier. « Les esters de sucres: voies de synthèse and potentialités d'utilisation ». *Biotechnologie, Agronomie, Société et Environnement*, 5 (4) : 209‑20, 2001.

Pope, G. A. and R. C. Nelson. "A chemical flooding compositional simulator". *SPE of AIME* 6725, 339‑354, 1978.

Pope, G. A., K. Sepehrnoori and M. Delshad. "Development of an improved simulator for chemical and microbial IOR methods" Annual Report (DOE/BC/15109-1), Contract No DE–AC26-98BC15109**,** US DOE, 2000.

Ransohoff, T. C. and C. J. Radke. "Mechanisms of foam generation in glass bead pack". Society of Petroleum Engineers and Research Engineers, *SPE Reservoir Engineering*, 573‑585, 1988.

Reynolds, O. “Fluid film lubrication”. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, A177: 157-324, 1886.

Rossen, W. R., S. C. Zeilenger, J. X. Shi and M. T. Lim. “Mechanistic simulation of foam processes in porous media”. Proceedings of the 69th Annual Technical Conference and Exhibition of the SPE, New Orleans, Louisiana, no SPE 28940, September 1994.

Rossen, W. R. and Z. H. Zhou. “Modeling foam mobility at the limiting capillary pressure”. *SPE Advanced Technology*, 3 (1): 146‑153, 1995.

Rossen, W. R. and P. A. Gauglitz. “Percolation theory of creation and mobilization of foams in porous media”. *American Institute of Chemical Engineers Journal*, 36 (8): 1176‑1188, 1990.

Rossen, W. R. and M.-W. Wang. “Modeling foams for acid diversion”. *Society of Petroleum Engineers Journal,* 4: 92‑100, 1999.

Salager, J.-L. and L. Choplin. « Mousses. Formation, formulation et propriétés ». *Techniques de l’Ingénieur, Génie des Procédés* (J2-200) : 1‑14, 2008.

Scamehorn, J. F., R. S. Schecter and W. H. Wade. “Adsorption of surfactants on mineral oxide surfaces from aqueous solutions. Part 3. Binary mixtures of anionic and nonionic surfactants”. *Journal of Colloid and Interface Science*, 85, 463‑78, 1982.

Schramm, L. L. “Surfactants. Fundamentals and applications in the petroleum industry”. Cambridge University Press, 2000.

Schramm, L. L. and J. J. Novosad. “Micro-visualization of foam interactions with a crude oil”. *Colloids and Surfaces*, 46: 21‑43, 1990.

Schramm, L. L. and J. J. Novosad. “The destabilization of foams for improved oil recovery by crude oils: effect of the nature of the oil”. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 7: 77‑90, 1992.

Seright, R. S. “Improved techniques for fluid diversion in oil recovery”. Final Report (DOE/BC/14880-15), Contract No. DE-AC22-92BC14880, US DOE, 1995.

Sheng, J. J. “Enhanced oil recovery. Field case studies”. Gulf Professional Publishing, 2013.

Shi, J. X. and W. R. Rossen. “Simulation and dimensional analysis of foam processes in porous media”. Proceedings of the Permian Basin Oil and Gas Conference, Midland, Texas, no SPE 35166, March 1996.

Shiau, B.-J., D. A. Sabatini and J. Harwell. “Chlorinated solvent removal using food grade surfactants: column studies (ASCE)”. *Journal of Environmental Engineering*, 126: 611‑621, 2000.

Siddiqui, S., S. Talabani, S. T. Saleh and M. R. Islam. "Foam flow in low-permeability Berea sandstone cores: a laboratory investigation". *Journal of Petroleum Science and Engineering* 36: 133‑148, 2002.

Somasundaran, P., T. W. Healy and D. W. Fuerstenau. "Surfactant adsorption at solid-liquid interface. Dependence of mechanism on chain length". *Journal of Physical Chemistry*, 68 : 3562‑6, 1964.

Talmage, S. S. "Environmental and Human Safety of Major Surfactants. Alcohol Ethoxylates and Alkylphenol Ethoxylates". Lewis Publishers, 1994.

Tanzil, D., G. J. Hirasaki and C. A. Miller. "Conditions for foam generation in homogeneous porous media". SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium, Tulsa, OK, no SPE 75176, 2002.

Tanzil, D. "Foam generation and propagation in heterogeneous porous media". Doctoral thesis, Rice University, 2001.

Van Genuchten, M. Th. "A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils". *Soil Science Society of America Journal*, 44: 892‑898, 1980.

Vrij, A. "Possible mechanisms for the spontaneous rupture of thin, free liquid films". *Discussions of the Faraday Society* 42: 23‑33, 1966.

Yra, A. « Dispersion active en milieux poreux hétérogènes contaminés par des produits hydrocarbonés ». Thèse de doctorat : Université Bordeaux 1, 2006.

Zhang, Z. F., V. L. Freedman and L. Zhong. "Foam transport in porous media - A review". US Department of Energy, November 2009.

Autres sources

http://basol.developpement-durable.gouv.fr/
http://www.epa.gov/ada/csmos/models/mt3d.html
http://www.physics.ucla.edu/~dws/foam.html
http://www.sigmaaldrich.com
http://www.teclis-instruments.com/index.php/en/gallery/products/tensiometer
Jeneil Biosurfactant Product Datasheet JBR425

Annexes

Annexe 1. Fichier UTCHEM, expérience 7

```
CC*************************************************************************
CC                                      *
CC    BRIEF DESCRIPTION OF DATA SET : UTCHEM (VERSION 9.0  )      *
CC                                      *
CC*************************************************************************
CC                                      *
CC  SURFACTANT/gas  FLOOD TEST                          *
CC                                      *
CC  LENGTH (m) :              PROCESS : SURFACTANT/FOAM      *
CC  THICKNESS (m) :             INJ. RATE (M3/DAY) :         *
CC  WIDTH (m) :               COORDINATES : CARTeSIAN       *
CC  POROSITY :                                  *
CC  GRID BLOCKS :                                 *
CC  DATE :                                *
CC                                      *
CC*************************************************************************
CC
CC*************************************************************************
CC                                      *
CC   RESERVOIR DESCRIPTION                          *
CC                                      *
CC*************************************************************************
CC
CC Run number
*---- RUNNO
UTEX18
CC
CC Title and run description
*---- title(i)
EX18
swi=1.0, inject slug of surf. and gas
utchem version 9.0
CC
CC SIMULATION FLAGS
*---- IMODE IMES IDISPC ICWM ICAP IREACT IBIO ICOORD ITREAC ITC  IGAS  IENG
         1      3       0       0       0       0       0       1         0       0    2       0
CC
CC no. of gridblocks, flag specifies constant or variable grid size, unit (IUNIT = 1 pour le système métrique)
*---- NX    NY    NZ  IDXYZ  IUNIT
       20    1      1      0         1
CC
CC constant grid block size in x,y,and z (en metres)
*---- dx1          dy1          dz1
    0.0203   0.038990   0.038990
CC
CC total no. of components,no. of tracers,no. of gel components
*----n    no    ntw    nta    ngc    ng    noth
      8    0      0      0      0      0      0
CC
CC Name of the components
*----spname(i) for i=1 to n
Water
```

```
Oil
Surf.
Polymer
Chloride
Calcium
Alcohol 1
gas
CC
CC flag indicating if the component is included in calculations or not
*----icf(kc) for kc=1,n
    1 0 1 0 1 0 0 1
CC
CC*************************************************************
CC                                    *
CC   OUTPUT OPTIONS                              *
CC                                    *
CC*************************************************************
CC
CC
CC FLAG TO WRITE TO UNIT 3,FLAG FOR PV OR DAYS TO PRINT OR TO STOP THE RUN
*---- ICUMTM  ISTOP  IOUTGMS (ISTOP=1 signifie que TMAX and TINJ sont exprimés en volumes de pore)
         1         1       0
CC
CC FLAG INDICATING IF THE PROFILE OF KCTH COMPONENT SHOULD BE WRITTEN
*---- IPRFLG(KC),KC=1,N
     1 0 1 0 1 0 0 1
CC
CC FLAG FOR PRES.,SAT.,TOTAL CONC.,TRACER CONC.,CAP.,GEL, ALKALINE PROFILES
*---- IPPRES IPSAT IPCTOT IPBIO IPCAP IPGEL IPALK IPTEMP IPOBS
          1     1       1       0       0       0       0       0       0
CC
CC FLAG FOR WRITING SEVERAL PROPERTIES TO UNIT 4 (Prof)
*---- ICKL IVIS IPER ICNM ICSE IHYSTP IFOAMP INONEQ
        0   1     0     0      0      0         1         0
CC
CC FLAG  for variables to PROF output file
*---- IADS IVEL IRKF IPHSE
       0     0     0      0
CC
CC*************************************************************
CC                                    *
CC   RESERVOIR PROPERTIES                              *
CC                                    *
CC*************************************************************
CC
CC
CC MAX. SIMULATION TIME (en volumes de pore)
*---- TMAX
         8
CC
CC ROCK COMPRESSIBILITY (1/KPa), STAND. PRESSURE (KPa)
*---- COMPR             PSTAND
          0                   0
CC
CC FLAGS INDICATING CONSTANT OR VARIABLE POROSITY, X, Y, AND Z PERMEABILITY
*---- IPOR1  IPERMX IPERMY IPERMZ IMOD
         0         0         0         0         0
CC
CC CONSTANT POROSITY FOR WHOLE RESERVOIR
*---- PORC1
     0.3911
CC
CC CONSTANT X-PERMEABILITY FOR WHOLE RESERVOIR (en millidarcy)
```

```
*---- PERMXC
      8230
CC
CC CONSTANT Y-PERMEABILITY FOR WHOLE RESERVOIR (en millidarcy)
*---- PERMYC
      8230
CC
CC CONSTANT Z-PERMEABILITY FOR WHOLE RESERVOIR (en millidarcy)
*---- PERMZC
      8230
CC
CC FLAG FOR CONSTANT OR VARIABLE DEPTH, PRESSURE, WATER SATURATION, INITIAL AQUEOUS PHASE COMPOSITIONS
*----IDEPTH  IPRESS  ISWI  ICWI
       0       0       0     -1
CC
CC CONSTANT DEPTH (m)
*---- D111
       0
CC
CC CONSTANT PRESSURE (KPa) (La pression initiale)
*---- PRESS1
     101.325
CC
CC CONSTANT INITIAL WATER SATURATION
*---- SWI
      1
CC
CC FLAG INDICATING TYPE OF INITIAL GAS SATURATION
*---- ISGI
       0
CC
CC CONSTANT INITIAL GAS SATURATION FOR WHOLE RESERVOIR
*---- SGI
      0
CC
CC BRINE SALINITY AND DIVALENT CATION CONCENTRATION (MEQ/ML)
*---- C50      C60
    0.002      0
CC
CC*********************************************************************
CC                                    *
CC   PHYSICAL PROPERTY DATA                        *
CC                                    *
CC*********************************************************************
CC
CC
CC OIL CONC. AT PLAIT POINT FOR TYPE II(+)AND TYPE II(-), CMC
*---- c2plc  c2prc   epsme   ihand
       0       1    0.002       0
CC
CC flag indicating type of phase behavior parameters
*---- ifghbn
        0
CC SLOPE AND INTERCEPT OF BINODAL CURVE AT ZERO, OPT., AND 2XOPT SALINITY
CC FOR ALCOHOL 1
*---- hbns70   hbnc70   hbns71   hbnc71   hbns72   hbnc72
         0       0.147       0         0.03       0          0.13
CC SLOPE AND INTERCEPT OF BINODAL CURVE AT ZERO, OPT., AND 2XOPT SALINITY
CC FOR ALCOHOL 2
*---- hbns80  hbnc80  hbns81  hbnc81  hbns82  hbnc82
       0        0        0         0        0          0
CC
```

```
CC LOWER AND UPPER EFFECTIVE SALINITY FOR ALCOHOL 1 AND ALCOHOL 2
*---- csel7   cseu7   csel8   cseu8
     0.2053    0.2053    0      0
CC
CC THE CSE SLOPE PARAMETER FOR CALCIUM AND ALCOHOL 1 AND ALCOHOL 2
*---- beta6    beta7    beta8
       0.8      -2         0
CC
CC FLAG FOR ALCOHOL PART. MODEL AND PARTITION COEFFICIENTS
*---- ialc   opsk7o   opsk7s   opsk8o   opsk8s
      0       0          0          0          0
CC
CC NO. OF ITERATIONS, AND TOLERANCE
*---- nalmax     epsalc
        20        0.0001
CC
CC ALCOHOL 1 PARTITIONING PARAMETERS IF IALC=1
*---- akwc7     akws7    akm7     ak7      pt7
      4.671      1.79      48       35.31    0.222
CC
CC ALCOHOL 2 PARTITIONING PARAMETERS IF IALC=1
*---- akwc8     akws8    akm8    ak8     pt8
        0          0          0        0       0
CC
CC ift model flag
*----  ift
      1
CC
CC INTERFACIAL TENSION PARAMETERS
*---- chuh     ahuh
      0.3        5
CC
CC LOG10 OF OIL/WATER INTERFACIAL TENSION
*---- xiftw
      1.3
CC
CC ORGANIC MASS TRANSFER FLAG
*---- imass icor
       0      0
CC
CC CAPILLARY DESATURATION PARAMETERS FOR PHASE 1, 2, AND 3
*---- itrap     t11     t22     t33
       1         0       0        0
CC
CC  FLAG FOR RELATIVE PERMEABILITY AND CAPILLARY PRESSURE MODEL
*---- iperm
        0
CC
CC FLAG FOR CONSTANT OR VARIABLE REL. PERM. PARAMETERS
*---- isrw    iprw    iew
      0        0       0
CC
CC CONSTANT RES. SATURATION OF PHASES 1, 2, AND 3 AT LOW CAPILLARY NO.
*---- s1rwc    s2rwc     s3rwc
       0.2       0.05       0.2
CC
CC CONSTANT ENDPOINT REL. PERM. OF PHASES 1, 2, AND 3 AT LOW CAPILLARY NO.
*---- p1rwc     p2rwc    p3rwc
      0.2         0.95       0.2
CC
CC CONSTANT REL. PERM. EXPONENT OF PHASES 1, 2, AND 3 AT LOW CAPILLARY NO.
*---- e1wc     e2wc     e3wc
```

```
     4.2       2.16       4.2
CC
CC RES. SATURATION OF PHASES 1, 2, AND 3 AT HIGH CAPILLARY NO.
*---- s1rc   s2rc   s3rc
       0       0       0
CC
CC ENDPOINT REL. PERM. OF PHASES 1, 2, AND 3 AT HIGH CAPILLARY NO.
*---- p1rc   p2rc   p3rc
      1       1       1
CC
CC REL. PERM. EXPONENT OF PHASES 1, 2, AND 3 AT HIGH CAPILLARY NO.
*---- e13c   e23c   e31c
     4.2     2.16     4.2
CC
CC WATER AND OIL VISCOSITY, RESERVOIR TEMPERATURE
*---- VIS1    VIS2   TSTAND
      1.0      4          0
CC
CC GAS VISCOSITY AT REF. TEMPERATURE AND PRESSURE, SLOPE OF GAS VISCOSITY
*---- VIS4      VSLOPG
    0.01840       0
CC
CC CONSTANT RESIDUAL OIL/GAS SATURATION FOR ENTIRE RESERVOIR
*---- S2RWC4     S4RWC
       0.05          0.2
CC
CC CONSTANT GAS ENDPOINT RELATIVE PERMEABILITY FOR ENTIRE RESERVOIR
*--- P4RWC
      0.94
CC
CC CONSTANT GAS RELATIVE PERMEABILITY EXPONENT FOR ENTIRE RESERVOIR
*---- E4WC
       1.3
CC
CC Gas Properties at High Capillary
*--- S4rC   P4rc   E4C   T44
       0     1      1.3     0
CC
CC LOG OF INTERFACIAL TENSION BETWEEN GAS AND OIL (AND WATER)
*----  XIFTG   XIFTGW
      1.477     1.477
CC
CC COMPOSITIONAL PHASE VISCOSITY PARAMETERS
*----   ALPHAV1   ALPHAV2   ALPHAV3   ALPHAV4  ALPHAV5
       0       0       0       1       1
CC
CC PARAMETERS TO CALCULATE POLYMER VISCOSITY AT ZERO SHEAR RATE
*---- AP1      AP2      AP3
      81     2700     2500
CC
CC PARAMETER TO COMPUTE CSEP, MIN. CSEP, AND SLOPE OF LOG VIS. VS. LOG CSEP
*---- BETAP    CSE1     SSLOPE
        10       0.01       0.17
CC
CC PARAMETER FOR SHEAR RATE DEPENDENCE OF POLYMER VISCOSITY
*---- GAMMAC   GAMHF   POWN
        20           10         1.8
CC
CC CC FLAG FOR POLYMER PARTITIONING, PERM. REDUCTION PARAMETERS
*---- IPOLYM    EPHI3    EPHI4    BRK     CRK
       1          1          0.8     1000    0.0186
CC
CC SPECIFIC WEIGHT FOR COMPONENTS 1,2,3,7,8 ,Coefficient of oil and GRAVITY FLAG
```

```
*---- DEN1    DEN2    DEN23    DEN3    DEN7    DEN8    IDEN
      0.433    0.368    0.368    0.42    0.346  0.0056    2
CC
CC FLAG FOR CHOICE OF UNITS ( 0:BOTTOMHOLE CONDITION , 1: STOCK TANK)
*----- ISTB
      0
CC
CC COMPRESSIBILITY FOR VOL. OCCUPYING COMPONENTS 1,2,3,7,AND 8
*---- COMPC(1)  COMPC(2)  COMPC(3)  COMPC(7)  COMPC(8)
           0           0           0           0         0.00494
CC
CC CONSTANT OR VARIABLE PC PARAM., WATER-WET OR OIL-WET PC CURVE FLAG
*---- ICPC   IEPC   IOW
       0      0      0
CC
CC CAPILLARY PRESSURE PARAMETER, CPC0
*---- CPC0
      0.15
CC
CC CAPILLARY PRESSURE PARAMETER, EPC0
*---- EPC0
       2
CC
CC MOLECULAR DIFFUSION COEF. KCTH COMPONENT IN PHASE 1
*---- D(KC,1),KC=1,N
      0      0      0      0      0      0      0      0
CC
CC MOLECULAR DIFFUSION COEF. KCTH COMPONENT IN PHASE 2
*---- D(KC,2),KC=1,N
      0      0      0      0      0      0      0      0
CC
CC MOLECULAR DIFFUSION COEF. KCTH COMPONENT IN PHASE 3
*---- D(KC,3),KC=1,N
      0      0      0      0      0      0      0      0
CC
CC MOLECULAR DIFFUSION COEF. KCTH COMPONENT IN PHASE 4
*---- D(KC,4),KC=1,N
      0      0      0      0      0      0      0      0
CC
CC LONGITUDINAL AND TRANSVERSE DISPERSIVITY OF PHASE 1
*---- ALPHAL(1)    ALPHAT(1)
      0.0005             0
CC
CC LONGITUDINAL AND TRANSVERSE DISPERSIVITY OF PHASE 2
*---- ALPHAL(2)    ALPHAT(2)
      0.0005             0
CC
CC LONGITUDINAL AND TRANSVERSE DISPERSIVITY OF PHASE 3
*---- ALPHAL(3)    ALPHAT(3)
      0.0005             0
CC
CC LONGITUDINAL AND TRANSVERSE DISPERSIVITY OF PHASE 4
*---- ALPHAL(4)    ALPHAT(4)
      0.0005             0
CC
CC flag to specify organic adsorption calculation
*---- iadso
       0
CC
CC SURFACTANT AND POLYMER ADSORPTION PARAMETERS
*---- AD31   AD32   B3D   AD41   AD42   B4D   IADK  IADS1   FADS   REFK
       0      0    1000     0      0    100     0     0       0      0
CC
```

```
CC PARAMETERS FOR CATION EXCHANGE OF CLAY AND SURFACTANT
*---- QV     XKC    XKS    EQW
      0      0      0      419
CC


CC FOAM MODEL DATA
*---- RFMAX     SOSTAR     CSTAR     EPXLO     SHRTN     VELGR
     1480        0.15       0.015     0.01       1         8.15
CC
CC WATER SATURATION AT CRITICAL CAPILLARY PRESSURE
*---- SWSTAR (I) ,I=1 TO NBL
      0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20
      0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20    0.20
CC
CC*****************************************************************
CC                                    *
CC   WELL DATA                              *
CC                                    *
CC*****************************************************************
CC
CC FLAG FOR SPECIFIED BOUNDARY AND ZONE IS MODELED
*---- IBOUND    IZONE
        0          0
CC
CC TOTAL NUMBER OF WELLS, WELL RADIUS FLAG, FLAG FOR TIME OR COURANT NO.
*---- NWELL   IRO   ITIME   NWREL
       2       2      1         2
CC
CC WELL ID,LOCATIONS,AND FLAG FOR SPECIFYING WELL TYPE, WELL RADIUS, SKIN
*---- IDW   IW   JW   IFLAG   RW    SWELL   IDIR   IFIRST   ILAST   IPRF
      1     1    1       1     0.5       0       3       1        1       0
CC
CC WELL NAME
*----  WELNAM
INJ
CC
CC ICHEK , MAX. AND MIN. ALLOWABLE BOTTOMHOLE PRESSURE AND RATE
*---- ICHEK    PWFMIN    PWFMAX   QTMIN   QTMAX
       0          0          5000        0       1000
CC
CC WELL ID, LOCATIONS, AND FLAG FOR SPECIFYING WELL TYPE, WELL RADIUS, SKIN
*---- IDW   IW   JW   IFLAG   RW    SWELL   IDIR   IFIRST   ILAST   IPRF
      2     20    1      2      0.5       0       3       1        1       0
CC
CC WELL NAME
*----  WELNAM
PROD
CC
CC ICHEK , MAX. AND MIN. ALLOWABLE BOTTOMHOLE PRESSURE AND RATE
*---- ICHEK    PWFMIN    PWFMAX   QTMIN   QTMAX
       0          0          5000        0       50000
CC
CC  ID,INJ. RATE AND INJ. COMP. FOR RATE CONS. WELLS FOR EACH PHASE (L=1,3) (saturation en tensioactif, 2 VP,3 ml/min)
*----  ID    QI(M,L)    C(M,KC,L)
    1    0.00432    0.97    0    0.03    0    0.1    0    0    0
    1    0              0      0     0      0     0      0    0    0
    1    0              0      0     0      0     0      0    0    0
    1    0              0      0     0      0     0      0    0    0
CC
CC ID, BOTTOM HOLE PRESSURE FOR PRESSURE CONSTRAINT WELL (IFLAG=2 OR 3) (Pression au puits de sortie égale à P_atm)
*----  ID    PWF
       2    101.325
```

```
CC
CC CUM. INJ. TIME , AND INTERVALS (PV OR DAY) FOR WRITING TO OUTPUT FILES
*---- TINJ    CUMPR1    CUMHI1    WRHPV    WRPRF    RSTC
       2.0       0.2          0.2          0.2         0.2         0.2
CC
CC THE INI. TIME STEP,CONC. TOLERANCE,MAX.,MIN. time steps
*----  DT    DELC(I)          CNMAX          CNMIN
     0.000001       0.003    0.003    0.003    0.003    0.003    0.003    0.003    0.001    0.0001    0.00005
CC
CC FLAG FOR INDICATING BOUNDARY CHANGE
*---- IBMOD
         0
CC
CC IRO, ITIME, NEW FLAGS FOR ALL THE WELLS
*----  IRO   ITIME    IFLAG
       2       1          1    2
CC
CC NUMBER OF WELLS CHANGES IN LOCATION OR SKIN OR PWF
*----  NWEL1
         0
CC
CC NUMBER OF WELLS WITH RATE CHANGES, ID
*---- NWEL2    ID
         1         1
CC
CC ID,INJ. RATE AND INJ. COMP. FOR RATE CONS. WELLS FOR EACH PHASE (L=1,3) (co-injection de solution de tensioactif et
gaz)
*----  ID     QI(M,L)     C(M,KC,L)
     1      2.16E-04       0.97    0    0.03    0    0.1    0    0    0
     1      0                  0      0      0      0    0      0    0    0
     1      0                  0      0      0      0    0      0    0    0
     1      3.66336E-03    0      0      0      0    0      0    0    1
CC
CC CUM. INJ. TIME , AND INTERVALS (PV) FOR WRITING TO OUTPUT FILES
*---- TINJ     CUMPR1     CUMHI1     WRHPV     WRPRF    RSTC
      6          0.1          0.1          0.1          0.1         0.1
CC
CC THE INI. TIME STEP,CONC. TOLERANCE,MAX.,MIN. time steps
*----  DT    DELC(I)          CNMAX          CNMIN
     0.000001       0.003    0.003    0.003    0.003    0.003    0.003    0.003    0.001    0.0001    0.00005
CC
```