Caractérisation multi-échelle de l'écoulement de mousses en milieux poreux en contexte EOR

Chakib Ouali

▶ **To cite this version:**

Chakib Ouali. Caractérisation multi-échelle de l'écoulement de mousses en milieux poreux en contexte EOR. Physique [physics]. Sorbonne Université, 2019. Français. NNT : 2019SORUS001 . tel-02458532

HAL Id: tel-02458532
https://theses.hal.science/tel-02458532

Submitted on 28 Jan 2020

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.

Sorbonne Université

Ecole doctorale Géosciences, ressources naturelles et environnement (ED 398)

Direction physique et analyse IFP Énergies Nouvelles

Caractérisation multi-échelle de l'écoulement de mousses en milieux poreux en contexte EOR

Présentée par **Chakib OUALI**

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de Sorbonne Université

Présentée et soutenue publiquement le 20 mars 2019

Devant un jury composé de :

Pierre LEVITZ	*Directeur de recherche au CNRS*	*Président du Jury*
Élise LORENCEAU	*Directrice de recherche au CNRS*	*Rapporteur*
Fabrice COUSIN	*Ingénieur de recherche au CEA*	*Rapporteur*
Isabelle CANTAT	*Professeur à l'institut physique de Rennes*	*Examinateur*
Mikel MORVAN	*Directeur technique à Solvay*	*Examinateur*
Benoît NŒTINGER	*Ingénieur de recherche à IFPEN*	*Directeur de thèse*
Élisabeth ROSENBERG	*Ingénieur de recherche à IFPEN*	*Promoteur de thèse*
Loïc BARRÉ	*Ingénieur de recherche à IFPEN*	*Co-promoteur de thèse*

Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu mes deux encadrants de thèse, Elisabeth Rosenberg et Loïc Barré pour m'avoir donné la chance de réaliser cette thèse. Leur encouragement, leur suivi régulier de cette thèse ainsi que leur dévouement pour le travail de recherche m'ont beaucoup aidé tout au long de ces trois années passées à l'IFPEN. Elisabeth et Loïc, j'ai vraiment apprécié travailler avec vous, un grand merci à vous !

Je voudrais aussi remercier mon directeur de thèse pour son soutien inconditionnel ainsi que la liberté qu'il m'a donné pour gérer entièrement les travaux de recherche menés dans le cadre de cette thèse. Benoît, je suis entièrement reconnaissant pour ta confiance et je t'en remercie !

Mes remerciements les plus chaleureux vont aussi aux membres du Jury. Je voudrais remercier Élise Lorenceau et Fabrice Cousin de m'avoir fait l'honneur de rapporter mon doctorat. Un grand merci aussi pour les examinateurs qui ont accepté de juger ce travail : Pierre Levitz, Isabelle Cantat et Mikel Morvan.

Ce travail de thèse a fait l'objet d'une collaboration étroite avec plusieurs personnes aussi bien à l'IFPEN que dans des laboratoires de grands instruments. Je tiens à remercier en premier lieu, les ingénieurs ainsi que les techniciens du département de Physique et Analyse à Rueil-Malmaison de m'avoir accueilli au sein de leurs locaux. Un grand merci à Anne Fafet pour son soutien et la confiance qu'elle a accordée à ces travaux de recherche. Je voudrais aussi remercier les techniciens de l'IFPEN pour leur aide précieuse tant pour mener à bien les expériences non seulement au sein de l'IFPEN mais aussi sur grands instruments: Marie-Claude Lynch, Fanny Lutz, Anthony Vanheghe, merci pour ces bons moments passés ensemble. Je voudrais aussi remercier toutes les personnes des différentes directions de l'IFPEN qui ont contribué à la réussite de ma thèse. Je pense notamment à Hervé Failla, Jean-Claude Riondet, Marc Blasin, Sébastien Charmasson, Samy Laabidi, Denis Grosjean, Jean-François Lecomte, François Cokelaer, Souhail Youssef, Joelle Behot, Mario Bellamy, Amel Boukraa et bien d'autres. Je vous dis à toutes et à tous un grand merci.

Cette thèse m'a permis de découvrir et de travailler sur des grands instruments scientifiques et je tiens à remercier les collègues des différents laboratoires, ESRF, LLB et ILL qui ont veillé à ce que cette thèse soit une réussite : Elodie Boller, Jacques Jestin, Frédéric Ott et Isabelle Grillo, je vous remercie énormément pour votre soutien ainsi que pour votre accueil, de jour comme de nuit !

Et bien sûr, que serait cette thèse sans les bons moments passés ensemble avec les doctorants et post-doctorants avec qui j'ai partagé ces trois années de thèse. Je pense notamment à Omar Gassara, Lucas Pedroni, Christopher Yeates, Hamza Tazi, Anouk Beniest, Pauline Lebouteiller, Jean Busson, Imane Guetni, Claire Lix, Anabelle Aboussou, Julie Wolanin, et bien d'autres que je n'ai pas mentionnés. A vous tous je vous dis merci. Je voudrais aussi remercier ma collègue de bureau Ariane Suzzoni pour ces trois années passées ensemble ainsi que pour toutes les courses à pied du midi !

Enfin, merci à mes amis et à ma famille que j'ai quelque peu délaissés ces derniers mois et dont le soutien permanent a été un vrai levier pour moi pour arriver à terme de ce parcours. J'éprouve une immense gratitude à mes parents qui m'ont toujours poussé à aller plus loin et m'ont inculqué la valeur du travail. Un grand merci à ma sœur Fadwa et mon frère Nabil qui m'ont soutenu durant toutes mes années d'études et particulièrement dans ce parcours de doctorat malgré la distance qui nous sépare. Enfin, je voudrais remercier celle qui partage ma vie de tous les jours, ma chère femme Yosr, pour son soutien infaillible et ses encouragements quotidiens. Merci à vous tous d'être là à mes côtés.

À mes chers parents

Nadia BOUCHTAT et El Mostafa OUALI

REMERCIEMENTS i

LISTE DES SYMBOLES viii

LISTE DES ACRONYMES xivv

INTRODUCTION 1

I. Motivations industrielles 2

II. Motivations scientifiques 5

CHAPITRE I : GENERALITES SUR LES MOUSSES 9

I. Description multi-échelle de la mousse hors milieu poreux 10

A. Définition de la mousse 10

B. Structure de la mousse à différentes échelles 11

II. Écoulement des mousses en milieux poreux (Aspects microscopiques) 13

A. Définition de la mousse en milieu poreux 13

B. Les méthodes d'injection 13

C. Texture et qualité de la mousse 14

D. Mécanismes de formation et de déstabilisation de la mousse 16

III. Écoulement des mousses en milieux poreux (Aspects macroscopiques) 23

A. Comportements transitoire et stationnaire 23

B. Paramètres influençant l'écoulement de la mousse 28

IV. Réduction de la mobilité du gaz par la mousse 32

A. Viscosité effective du gaz 33

B. Perméabilité relative du gaz 34

V. Conclusion du premier chapitre 37

CHAPITRE II : CARACTERISATION MACROSCOPIQUE DE L'ECOULEMENT DES MOUSSES EN MILIEU CONSOLIDE PAR TOMOGRAPHIE X 38

I. Introduction 40

A. Introduction à la tomographie X 40

B. Description du Scanner de l'IFPEN 42

II. Matériels et expériences 45

A. Caractérisation du système fluide-roche 45

B. Développement d'un montage d'injection de fluides dans les milieux poreux 53

C. Expériences d'écoulement de mousses sous Scanner X 60

III. Caractérisation macroscopique de la mousse en écoulement 63

A. Écoulement diphasique gaz-saumure 63

B. Formation de la mousse 65

C. Rhéologie de la mousse à l'état stationnaire 73

D. Coalescence de la mousse en milieu poreux 80

IV. Conclusion du deuxième chapitre 84

CHAPITRE III : CARACTERISATION DE L'ECOULEMENT DES MOUSSES DANS UN MILIEU GRANULAIRE PAR DIFFUSION DES NEUTRONS AUX PETITS ANGLES 86

I. Introduction 88

A. Généralités sur la diffusion des neutrons aux petits angles 88

B. Caractérisation des mousses « Bulk » par SANS 97

II. Matériels et méthodes 102

A. Travail préparatoire 102

B. Expériences d'écoulement de mousses sous acquisitions SANS 119

III. Texture de la mousse en écoulement 126

A. Analyse des spectres de diffusion 126

B. Influence de la qualité de la mousse sur son écoulement (Expérience LLB) 140

C. Comportement de la mousse le long du milieu poreux (Expérience ILL) 148

IV. Relation entre la géométrie du réseau poreux et la structure de la mousse 158

A. Évolution de la taille de bulle moyenne 159

B. Densités volumiques des bulles et des lamelles 162

C. Nombre de lamelles par bulle 166

V. Conclusion du troisième chapitre 168

CHAPITRE IV : ÉCOULEMENT DE LA MOUSSE A L'ECHELLE DU PORE EN 3D 171

I. Introduction 172

II. Matériels et expérience 173

A. Présentation de la ligne ID19 de l'ESRF 173

B. Expérience 174

C. Acquisition des images 177

III. Résultats 180

A. Caractéristiques microscopiques de la mousse 180

B. Traitement des images 182

IV. Discussion 199

V. Conclusion du quatrième chapitre 204

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES 206

ANNEXES 214

Annexe A : Loi de Darcy 215

Annexe B : Perméabilités effectives et relatives 217

Annexe C : Tension de surface et pression capillaire 219

Annexe D : Utilisation des débitmètres Brooks 221

Annexe E : Validation de l'hypothèse d'une compressibilité isotherme 223

Annexe F : Mesure de la densité de la silice 224

Annexe G : Analyse d'images 3D des grains 225

Annexe I : Diagramme de phase des micelles de SDS 231

Annexe J : Tests de validation des écoulements de mousse dans les milieux granulaires 233

Annexe K : Modélisation de la distribution des rayons hydrauliques équivalents des seuils de pores 236

Annexe L : Extraction de la géométrie du milieu poreux par PNA 238

Annexe M : Coupes axiales d'images 3D de mousses à différentes fg et positions 245

Annexe N : Images d'une mousse piégée dans un milieu poreux 253

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 255

Liste des symboles

A

θ_c	Angle de contact
θ	Angle de diffusion

C

$\mu(x, E_r)$	Coefficient d'atténuation à la position x et pour l'énergie E_r
$\mu_m(x, y, z)$	Coefficient d'atténuation mesuré pour le voxel de coordonnées (x,y,z)
$\mu_{m,e}$	Coefficient d'atténuation linéaire de l'eau
$\mu_{m,g}$	Coefficient d'atténuation linéaire du gaz
$\mu_{H/D}$	Coefficient d'atténuation linéaire de l'eau pour un faisceau de neutrons
g	Constante de gravité
C_m	Courbure interfaciale moyenne du film liquide

D

Q_l	Débit de liquide
Q_g	Débit de gaz
Q_t	Débit total
$Q_{g_{am}}$	Débit de gaz en amont du milieu poreux
$Q_{g_{av}}$	Débit de gaz en aval du milieu poreux
Q_{H_2O}	Débit volumique de H_2O
Q_{D_2O}	Débit volumique de D_2O
ρ	Densité volumique
d_g	Densité des grains
SLD_{mel}	Densité de longueur de diffusion d'un mélange
SLD_{SiO_2}	Densité de longueur de diffusion de la silice
SLD_H	Densité de longueur de diffusion de H_2O
SLD_D	Densité de longueur de diffusion de D_2O
$\overline{SLD}$	Densité de longueur de diffusion neutronique moyenne
ρ_e	Densité de la saumure

D	Diamètre de la carotte
d_s	Diamètre de la sphère équivalente au grain
D_{int}	Diamètre interne de la cellule SANS
ΔP	Différence de pression entre l'amont et l'aval du milieu poreux
$\Delta(\overline{SLD})$	Différence de densité de longueur de diffusion
$\Delta(\overline{SLD})_{g/l}$	Différence de densité de longueur de diffusion entre le gaz et le liquide
$\frac{\delta S_g}{\delta CT}$	Différentielle de S_g par rapport au nombre de CT
$\frac{\delta S_g}{\delta CT_{sat}}$	Différentielle de S_g par rapport au nombre de CT moyen de la carotte saturée en saumure
$\frac{\delta S_g}{\delta CT_{air}}$	Différentielle de S_g par rapport au nombre de CT moyen de la carotte sèche

E

E_{fr}	Efficacité de fragmentation des bulles
$d\Omega$	Élément d'angle solide
h	Épaisseur de lamelle
$\frac{dS_g}{S_g}$	Erreur relative sur S_g

F

$P(q)$	Facteur de forme
$S(q)$	Facteur de structure
A	Facteur de Porod
$P(q, R_b)$	Facteur de forme d'une bulle sphérique
$P(q, a, h)$	Facteur de forme d'une lamelle cylindrique
F	Force capillaire
Φ_p	Fraction volumique de particule
Φ_{po}	Fraction volumique des pores
ϕ_l	Fraction liquide dans la mousse Bulk
ϕ_l^*	Fraction liquide critique de la mousse Bulk
Φ_H	Fraction volumique de H_2O
Φ_D	Fraction volumique de D_2O
η	Fraction volumique de micelles
Φ_v	Fraction volumique des bulles

X_f	Fraction de gaz mobile

G

∇P	Gradient de pression
∇P_g	Gradient de pression de la phase gazeuse
∇P^{min}	Gradient de pression minimum de génération de la mousse forte

I

I	Intensité du rayon X transmis
$I(q)$	Intensité diffusée en q
$I(q)_{coh}$	Intensité de diffusion cohérente
I_{inc}	Intensité de diffusion incohérente
I_0	Intensité transmise par le faisceau vide
$I_b(q)$	Intensité de diffusion des bulles
$I_l(q)$	Intensité de diffusion des lamelles
$I_m(q)$	Intensité de diffusion des micelles

L

L	Longueur de la carotte
λ	Longueur d'onde
b_i	Longueur de diffusion de l'atome de type i
l_{lim}	Longueur d'eau limite à ne pas dépasser pour éviter les phénomènes de multidiffusion

M

m_{sat}	Masse de la carotte saturée
m_{sec}	Masse de la carotte sèche
m_g	Masse des grains
λ_g^f	Mobilité du gaz dans la mousse
M_g^f	Mobilité relative de la phase gaz de la mousse
Λ_g^f	Mobilité absolue du gaz

N

NG	Niveau de gris
$CT(x,y,z)$	Nombre de CT

CT_{air}^{m}	Nombre de CT moyen pour la carotte sèche
CT_{sat}^{m}	Nombre de CT moyen pour la carotte saturée
CT^{i}	Nombre de CT sur la tranche i à un état de saturation donné
CT_{air}^{i}	Nombre de CT sur la tranche i à l'état sec
CT_{sat}^{i}	Nombre de CT sur la tranche i à l'état saturé
$\frac{N}{V}$	Nombre d'éléments diffuseurs par unité de volume
N_b	Nombre de bulles par unité de volume
N_l	Nombre de lamelles par unité de volume
N_{mic}	Nombre de micelles par unité de volume
N_{po}	Nombre de pores par unité de volume poreux
N_s	Nombre de seuils par unité de volume poreux
$\bar{b}_p$	Nombre moyen de bulles par pore
$\bar{b}_s$	Nombre moyen de bulles par seuils
$\bar{l}_p$	Nombre moyen de lamelles par pore
$\bar{l}_p$	Nombre moyen de lamelles par seuil
$\bar{f}$	Nombre de lamelles par bulle
$\Omega_i(E_r)$	Nombre de photons incidents (d'énergie E_r) par unité de volume
$\Omega_d(E_r)$	Nombre de photons (d'énergieE_r) détectés par unité de volume
q	Norme du vecteur d'onde
n	Numéro de la position angulaire

P

$\Delta\theta$	Pas angulaire
k_{rg}^{f}	Perméabilité relative du gaz dans la mousse
K	Perméabilité absolue
k_{ri}	Perméabilité relative de la phase i
k_i	Perméabilité effective de la phase i
Φ_s	Porosité calculée à partir de l'histogramme de niveaux de gris
Φ	Porosité moyenne
π_{disj}	Pression de disjonction
P_c^{*}	Pression capillaire critique
P_{am}	Pression amont
P_{av}	Pression avale
P_c	Pression capillaire

$P_{c_{Hg}}$	Pression capillaire d'intrusion du mercure

Q

$f_g{}^*$	Qualité de mousse critique
f_g	Qualité de mousse

R

r_c	Rayon capillaire
R_g	Rayon de Guinier
a_0	Rayon de Porod des bulles à l'entrée du milieu poreux
a_f	Rayon de Porod des bulles en sortie du milieu poreux
a_l	Rayon de Porod des bulles à très grande distance du point d'injection
R_b	Rayon de la bulle
R_{po}	Rayon de Porod
R_{eq}	Rayon équivalent de pore
r_h	Rayon hydraulique équivalent au seuil de pore
dS_g	Racine carré de l'erreur absolu sur S_g

S

S_g^f	Saturation de gaz mobile
S_g^t	Saturation de gaz piégé ou immobile
S_l^f	Saturation de liquide mobile
S_l^t	Saturation de liquide immobile
S_g	Saturation de gaz
S_l	Saturation de liquide
$\overline{S_g}$	Saturation de gaz moyenne
$S_g{}^*$	Saturation de gaz critique
$S_l{}^*$	Saturation de liquide critique
σ_s	Section efficace totale
$\frac{d\sigma_s}{d\Omega}$	Section efficace différentielle de diffusion
Σ_s	Section efficace macroscopique
S	Section de la carotte
φ_A	Sphéricité
$\frac{S}{V}$	Surface spécifique

T

F	Taux moyen de fragmentation des bulles
σ_{Hg}	Tension de surface du mercure
σ_{TA}	Tension de surface de la solution de tensioactifs
n_f	Texture de la mousse
T	Transmission de l'échantillon
$\langle R_{eq} \rangle$	Troisième moment sur le deuxième moment de la distribution des rayons équivalents de pores
$\langle r_h \rangle$	Troisième moment sur le deuxième moment de la distribution des rayons hydrauliques équivalents des seuils de pore

V

$\vec{q}$	Vecteur d'onde de diffusion
$\overrightarrow{k_i}$	Vecteur d'onde incident
$\overrightarrow{k_d}$	Vecteur d'onde diffusé
μ_{app}	Viscosité apparente
μ_e	Viscosité de la saumure
μ_g	Viscosité du gaz
μ_g^f	Viscosité effective du gaz dans la mousse
v_g	Vitesse de darcy du gaz
v_l	Vitesse de darcy du liquide
v_t	Vitesse de darcy totale
u_g^f	Vitesse de darcy du gaz moussant
v_{int}	Vitesse interstitielle
v_{int_g}	Vitesse interstitielle de gaz
v_{int_t}	Vitesse interstitielle totale
V_l	Volume liquide
V_g	Volume de gaz
V_{mousse}	Volume de mousse
V_p	Volume poreux
V_t	Volume total
V_s	Volume solide
v_p	Volume d'une particule diffusante

Liste des acronymes

EOR	Enhanced Oil Recovery (Récupération assistée du pétrole)
2D	Deux dimensions
3D	Trois dimensions
AOS	Alpha Olefin Sulfonate
BP	Back pressure
BPR	Back pressure regulator
CAHS	Cocamido propyl hydroxysultaine
CEA	Commissariat d'énergie atomique
CMC	Concentration micellaire critique
CMOS	Complementary Metal Oxide Semiconductor
coh	Cohérent
Config	Configuration
CT	Computerized tomography
Disj	Disjonction
Edf	ESRF data format
ESRF	European synchrotron radiation facility
FEP	Éthylène propylène fluoré
GE	General Electric
H/D	Mélange d'eau et d'eau lourde
ID19	Ligne de micro-tomographie X à l'ESRF
IFPEN	IFP Énergies Nouvelles
ILL	Institut Laue Langevin
inc	Incohérent
LLB	Laboratoire de Léon Brilloin
LuAG	Lutétium Aluminium Garnet
mel	Mélange
MVI	Maximum variance interclass
MG	Milieu granulaire
NaCl	Chlorure de Sodium
PCO	Pioneers in Cameras and Optoelectronics
PEEK	Polyether ether ketone

PNA	Porous network analysis
RAM	Random-access memory
RUN	Acquisitions
SAG	Surfactant Alternate Gas
SANS	Small Angle Neutron Scattering
SDS	Sodium Dodecyl Sulfate
TOMO	Tomographie
VDW	Van Der Walls
VP	Vindum Pump
SLD	Scattering length density
wt	Weight

Introduction

I. Motivations industrielles

La demande énergétique mondiale augmente de manière significative. En revanche, les ressources énergétiques de la terre restent limitées. Face à cette contrainte, plusieurs pays tentent de sécuriser leurs apports énergétiques en matières fossiles et de développer le secteur des énergies renouvelables. Le pétrole reste tout de même la source numéro un de l'approvisionnement en énergie de la plupart des pays du monde. Cette ressource représente 32% de la consommation énergétique mondiale en 2017 [1].

Face au déclin des découvertes de gisements pétroliers ces dernières années, d'autres voies plus technologiques sont proposées pour augmenter la production des réservoirs pétroliers existants. La récupération assistée du pétrole connue sous le nom de EOR ou *Enhanced Oil Recovery* consiste à utiliser différentes techniques physico-chimiques, thermiques ou biologiques afin d'accroître la production des huiles pétrolières après les récupérations dites primaire et secondaire. Dans la récupération primaire, l'énergie naturelle du réservoir est utilisée avec un système de pompes pour faciliter la remontée des huiles à la surface. Cette méthode permet de récupérer en moyenne entre 5% et 15% des réserves en place [2]. La récupération secondaire nécessite l'injection d'eau ou de gaz (généralement un gaz d'hydrocarbures liquéfié) comme fluide déplaçant, ce qui permet de récupérer quelques 30% en plus [3].

L'utilisation du gaz permet de maintenir la pression du réservoir suffisamment élevée pour prolonger la récupération. Cette technique peut comprendre plusieurs méthodes selon la miscibilité du gaz avec l'huile ou la technologie déployée, ce qui permet de la classifier tantôt en récupération secondaire tantôt en technique EOR. Mise à part la classification, l'injection de gaz est l'une des techniques les plus répandues parmi toutes les autres techniques aussi bien en on-shore qu'en off-shore (cf. Figure 1) [4].

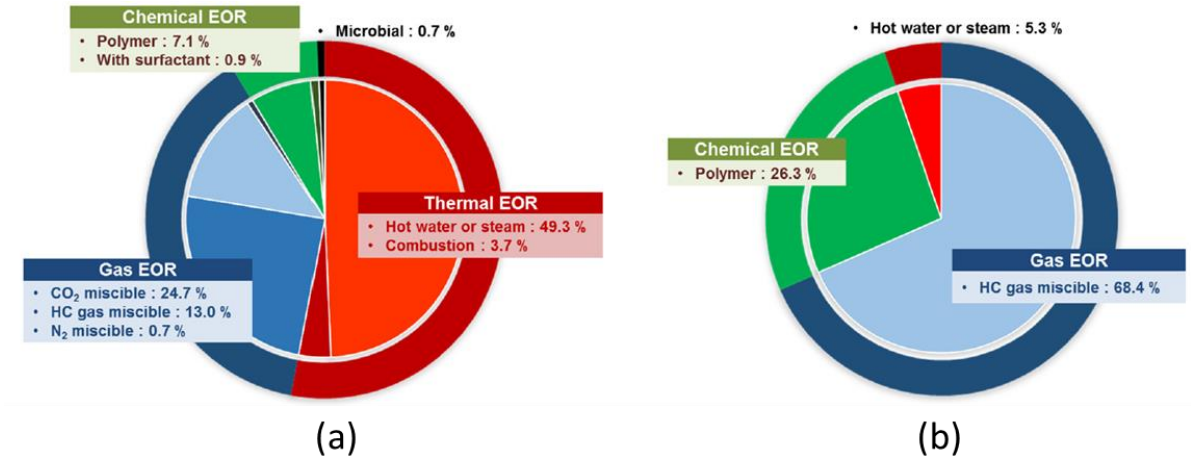


Figure 1 : Utilisation des différentes techniques de récupération assistée du pétrole en (a) on-shore et en (b) « off-shore » [4].

Mais la clé de la réussite d'une injection de gaz repose sur un déplacement stable à l'interface gaz-huile ayant une forme de piston à l'échelle du réservoir. L'efficacité du balayage se mesure par le ratio de mobilité entre la phase déplacée (l'huile) et la phase déplaçante suivant l'expression :

$$M = \frac{\lambda_{déplaçant}}{\lambda_{déplacé}} \tag{0.1}$$

Avec

$$\lambda = \frac{k}{\mu} \tag{0.2}$$

Où k est la perméabilité effective et μ la viscosité du fluide. Si $M \leq 1$, le déplacement est favorable (front net) alors que si $M \geq 1$, le déplacement est défavorable et des instabilités apparaissent.

Malheureusement, dans la plupart des champs pétroliers, cette efficacité de balayage est faible en raison des phénomènes de ségrégation gravitaire (densité de gaz faible par rapport à l'huile), des phénomènes de digitation visqueuse (viscosité de gaz faible par rapport à celle de l'huile) et des hétérogénéités du réservoir. L'utilisation d'une mousse, composée majoritairement de gaz, permet de remédier à ces différents problèmes (cf. Figure 2). La mousse réduit la mobilité du gaz en augmentant sa viscosité et/ou en réduisant sa perméabilité relative. Son efficacité de balayage a été prouvée sur différents pilotes [5–8]. Elle a été utilisée pour la première fois comme technique EOR en 1958 grâce au brevet de Boud, D. C.

et Holbrook, O. C [9]. Depuis, plusieurs études, principalement issues de l'industrie du pétrole, ont vu le jour, mais plusieurs zones d'ombre persistent, notamment la compréhension des phénomènes physiques qui contrôlent les écoulements et leur mise à l'échelle entre les études au laboratoire et la dynamique de la mousse à l'échelle du réservoir.

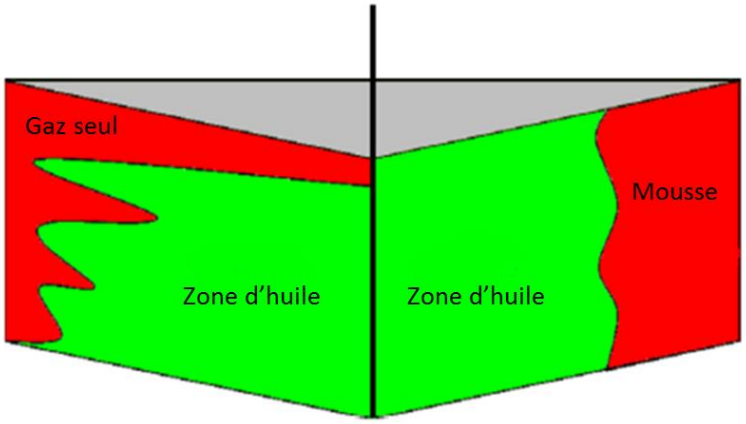


Figure 2 : Balayage avec du gaz et balayage avec de la mousse. Le front de déplacement du gaz est instable et inefficace. Réduction de la mobilité du gaz dans la mousse et déplacement d'un front net.(Modifié de [10]).

II. Motivations scientifiques

En dépit d'un nombre important de recherches actives sur le sujet, beaucoup d'incertitudes voire des divergences demeurent quant à la physique décrivant la propagation des mousses dans les milieux poreux. Par souci de simplicité et de rapidité d'application, les industriels s'attachent à décrire la rhéologie de la mousse par des mesures de pression et de débits et d'en déduire indirectement des paramètres pétro-physiques qui seront utilisés dans les modèles physiques d'écoulement. Or la précision de ces modèles reposent sur l'interprétation de ces mesures d'une part et sur le grand nombre d'expériences à effectuer pour adapter les modèles au cas du réservoir d'autre part. La mesure du gradient de pression le long du milieu poreux rend compte globalement de phénomènes à différentes échelles, et pour décrire l'échelle microscopique, elle s'appuie sur une physique principalement basée sur des observations, en une ou deux dimensions, d'écoulements de mousses dans des milieux modèles ou des canaux micro-fluidiques. Peu de travaux sont dédiés à la caractérisation des mousses in situ dans des milieux poreux réels avec des réseaux poreux complexes et tridimensionnels.

L'un des défis de cette thèse est de relier les mesures pétro-physiques macroscopiques à des mesures locales in situ pendant l'écoulement de la mousse dans des milieux poreux en trois dimensions. L'opacité du milieu est le premier obstacle pour rendre compte des phénomènes observés aux différentes échelles. Le deuxième est de sélectionner des techniques ayant une résolution spatiale et temporelle appropriée pour mesurer in situ les caractéristiques fines de la mousse en conditions d'écoulement. En effet, ce n'est pas tant l'utilisation de la technique la plus résolue en temps et dans l'espace qui permettra de rendre compte des phénomènes observés (surtout à l'échelle industrielle) mais plutôt la combinaison de différentes techniques offrant une grande diversité de résolutions spatiales et temporelles (cf. Figure 3). Enfin, l'écoulement des mousses en milieux poreux nécessite une bonne maîtrise des conditions expérimentales et des conditions d'injection à haute pression, ce qui requiert une compétence en pétro-physique.

Ce manuscrit présente les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse, en suivant une logique de résolutions spatiales et temporelles, pour sonder la structure de la mousse et son écoulement (cf. Figure 3). Il s'organise de la manière suivante :

- **Le premier chapitre** reprend l'état de l'art de la littérature sur l'écoulement des mousses dans les milieux poreux. Une brève description de la mousse et de sa structure est présentée au début de ce chapitre.
- **Le deuxième chapitre** présente une étude expérimentale à l'échelle « macroscopique » qui s'attache à visualiser l'écoulement d'une mousse dans une carotte de grès à l'aide d'un scanner X médical. Le scanner X permet de suivre quantitativement les saturations locales en fluide (gaz ou liquide) avec une très bonne résolution temporelle (une image 3D de la carotte de roche est obtenue en quelques secondes). Dans cette partie, les mesures de pression et de saturation de gaz permettent de décrire la dynamique de la mousse dans les régimes transitoire et stationnaire à différents débits fractionnaires de gaz et d'eau. Les effets d'injection, de la qualité de la mousse et des vitesses des fluides seront discutés, notamment à l'état stationnaire où la rhéologie de la mousse est étudiée en termes de viscosité apparente. Enfin, les effets de la coalescence en régime haute qualité seront étudiés en prenant en compte l'effet de la pression capillaire induite par le confinement du milieu poreux.
- **Le troisième chapitre** est dédié à la caractérisation in situ de la texture de la mousse en utilisant la technique de diffusion des neutrons aux petits angles. Par texture, on désigne ici une taille de bulle moyenne. Les mesures sont réalisées dans un milieu granulaire bien identifié qui représente le milieu poreux. Si la diffusion aux petits angles est une technique quelque fois utilisée pour la caractérisation de mousses bulk ou de solutions de tensio-actifs, son application à des milieux poreux et *a fortiori* à des écoulements en milieux poreux est réalisée pour la première fois dans le cadre de cette thèse. Nous présentons le développement expérimental réalisé et décrivons les précautions nécessaires pour réussir ce genre d'expérience *in situ*. En particulier, nous décrirons l'étape de « *contrast matching* » nécessaire pour «isoler» les interfaces liquide-gaz de la mousse. Les mesures de texture de la mousse sont réalisées en fonction de la qualité de la mousse d'une part et en fonction de la propagation de la mousse et de son évolution le long du milieu poreux d'autre part. La comparaison avec les caractéristiques géométriques du milieu poreux extraites par micro-tomographie X permettra de valider la méthode et d'interpréter les résultats sur la base de la structure de la matrice poreuse.
- **Le quatrième chapitre** est consacré à l'étude des écoulements de la mousse à l'échelle du pore en utilisant la technique de micro-tomographie X rapide, haute résolution sous rayonnement synchrotron. Une cellule à joints tournants a été

développée pour cette étude. Elle permet de travailler dans des conditions de haute pression sous écoulement continu. Les expériences réalisées ont permis d'obtenir pour la première fois des images *in situ* de la structure de la mousse en écoulement dans un espace poreux tridimensionnel. Elles permettent de visualiser les zones de piégeage et les zones mobiles de la mousse et de montrer le caractère intermittent du piégeage. Un traitement d'images est réalisé afin d'extraire des informations quantitatives sur l'évolution de la saturation de liquide « immobile ». Enfin des interprétations, en lien avec la littérature, sont discutées pour expliquer l'origine microscopique du piégeage de la mousse et son écoulement intermittent à l'échelle du pore.

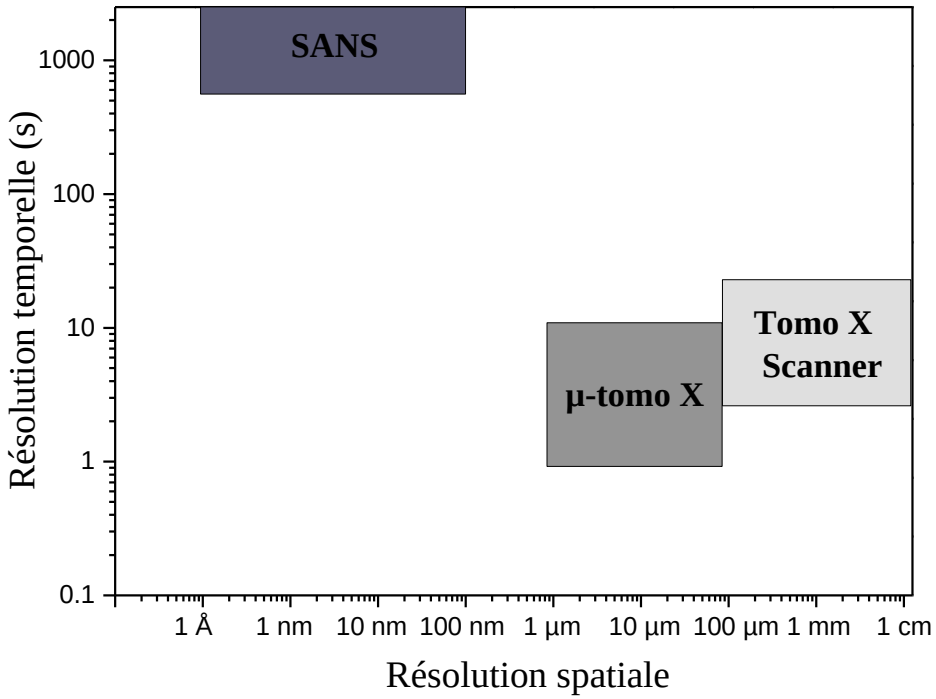


Figure 3 : Récapitulatif des résolutions spatiales et temporelles atteintes avec les instruments utilisés dans cette thèse.

Chapitre I : Généralités sur les mousses

I. Description multi-échelle de la mousse hors milieu poreux 10
A. Définition de la mousse 10
B. Structure de la mousse à différentes échelles 11

II. Écoulement des mousses en milieux poreux (Aspects microscopiques) 13
A. Définition de la mousse en milieu poreux 13
B. Les méthodes d'injection 13
C. Texture et qualité de la mousse 14
D. Mécanismes de formation et de déstabilisation de la mousse 16
1. Mécanismes de génération de la mousse 16
a) Snap-off 16
b) Division lamellaire 17
c) Leave-behind 17
d) Pinch-off 18
2. Mécanismes de destruction de la mousse 19
a) Equilibre entre pression capillaire et pression de disjonction 19
b) Diffusion gazeuse à travers les films 21
c) Effet de l'huile 21

III. Écoulement des mousses en milieux poreux (Aspects macroscopiques) 23
A. Comportements transitoire et stationnaire 23
1. Le régime transitoire 23
2. Les régimes d'écoulement stationnaire 26
3. Le concept de « pression capillaire limite » 27
B. Paramètres influençant l'écoulement de la mousse 28
1. Effets d'injection des fluides 28
2. Effets d'entrée 29
3. Perméabilité de la roche 29
4. Type de gaz 30
5. Concentration de tensioactifs 31

IV. Réduction de la mobilité du gaz par la mousse 32
A. Viscosité effective du gaz 33
B. Perméabilité relative du gaz 34

V. Conclusion du premier chapitre 37

I. Description multi-échelle de la mousse hors milieu poreux

A. Définition de la mousse

La mousse liquide est un système colloïdal composé d'une phase liquide contenant des molécules de tensioactifs et d'une phase gazeuse. La phase liquide est continue tandis que la phase gazeuse est dispersée sous forme de bulles dans la phase liquide. La mousse d'apparence fragile, arrive à créer un grand ensemble d'interfaces liquides/gaz stabilisées par les tensioactifs (voir Figure 4 à gauche). Ceci confère à la mousse des propriétés physico-chimiques intéressantes utilisées dans des domaines industriels très variés (voir Figure 4 à droite) : produit détergent en cosmétique, fluides extincteurs pour les incendies ou agent isolant dans le traitement de surface, etc.

Figure 4 : Images de mousse *Bulk* (à gauche) et extinction d'incendie à l'aide de la mousse (à droite).

Le rapport entre le volume liquide contenu dans la mousse et le volume total de la mousse définit sa fraction liquide :

$$\phi_l = \frac{V_l}{V_{mousse}} = \frac{V_l}{V_l + V_g} \qquad \text{(I.1)}$$

Ce paramètre permet de mesurer l'humidité de la mousse, et sa variation influence la structure de la mousse à différentes échelles (Figure 5). Lorsque $\phi_l \geq \phi_l^*$, les bulles sont sphériques et ne se touchent pas, on parle alors de liquide bulleux ou émulsion gazeuse. Lorsque $0.05 \leq \phi_l < \phi_l^*$, les bulles sont au contact sous formes de sphères écrasées, on

parle alors de mousse humide. Quand ϕ_l est plus petite que 0.05, on est dans le cas d'une mousse sèche avec des bulles sous la forme de polyèdres. La transition entre le liquide bulleux et la mousse humide a lieu en $\phi_l{}^*$, (proche de 0.3), qui correspond à peu-près à un empilement compact de sphères dures[11].

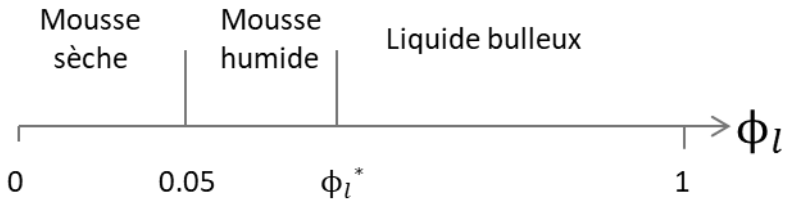


Figure 5 : Différents types de structure de la mousse en fonction de la fraction liquide.

B. Structure de la mousse à différentes échelles

La mousse est aussi un système métastable, qui évolue dans le temps et dans l'espace en fonction des contraintes physico-chimiques appliquées (température, pH, pesanteur, adhésion aux parois, etc.). Cette évolution affecte les éléments qui forment sa structure, qui s'étale sur plusieurs échelles du nanomètre au micromètre [12], voire au millimètre.

A l'échelle nanométrique on trouve les tensioactifs. Ce sont des molécules nécessaires pour stabiliser les films liquides (appelés aussi « lamelles ») entourant les bulles [13]. Les tensioactifs s'organisent souvent sous forme de monocouches avec la tête hydrophile dans la phase liquide et la queue hydrophobe dans la phase gazeuse. Les propriétés d'élasticité de surface et de viscosité des films liquides sont influencées par la nature, l'organisation et la concentration des tensioactifs.

A L'échelle micrométrique, la mousse est décrite par les « bords de Plateau » en référence au physicien et mathématicien belge Joseph Plateau (XIX^{ème} siècle). Il s'agit de canaux liquides épais se situant entre les bulles et formés par l'intersection de trois films liquides. Ils peuvent facilement être vus à l'œil-nu. Ces bords de Plateau se rejoignent quatre par quatre au sommet d'une bulle pour former un nœud ou un vertex (cf. Figure 6).

Les bulles quant à elles, s'étalent généralement de quelques centaines de micromètre à quelques millimètres.

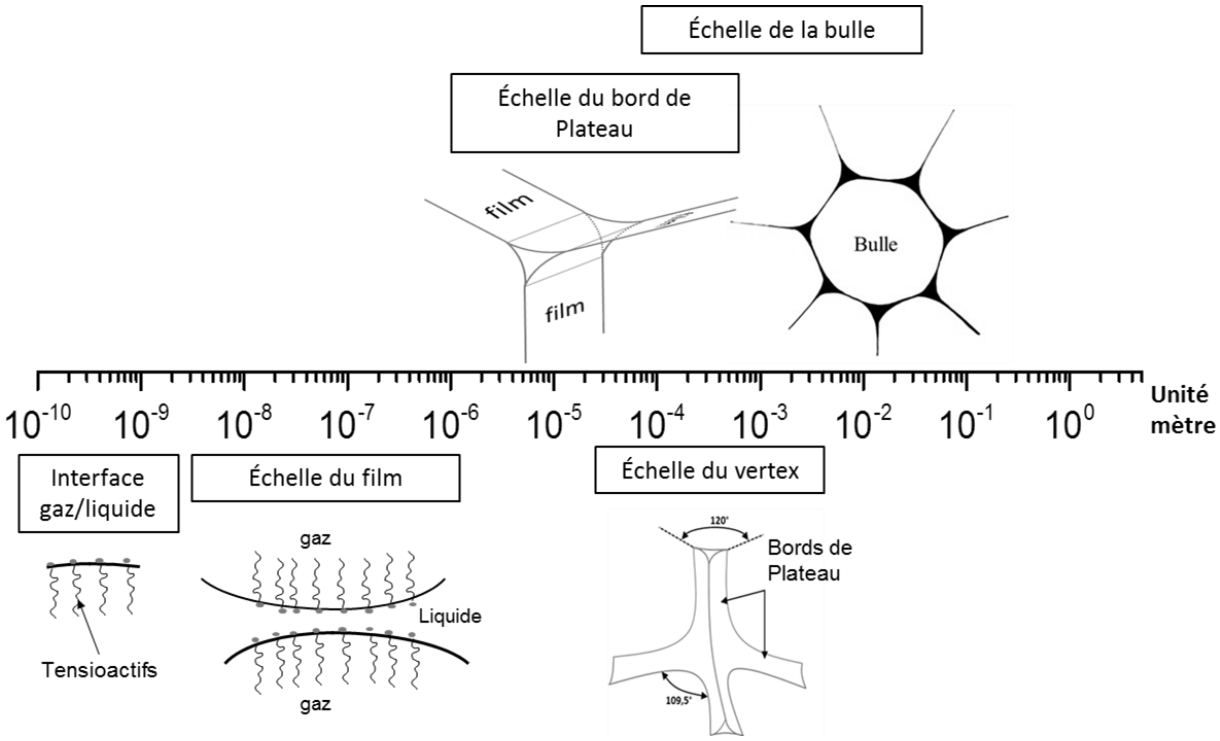


Figure 6 : Structure multi-échelle d'une mousse liquide et ordre de taille.

La structure statique de la mousse *Bulk* est totalement contrôlée par la minimisation d'énergie à travers la minimisation des aires interfaciales liquide/gaz. Néanmoins, il existe différents phénomènes physiques qui déstabilisent la mousse [14], à savoi**r :**

- **Le murissement** : Diffusion du gaz à travers les films liquides par différence de pression de Laplace entre les bulles. Les petites bulles disparaissent au profit des grandes bulles.
- **Le drainage liquide** : Écoulement liquide des films vers les bords de Plateau à cause de la différence de courbure entre les deux. A l'échelle de la mousse le drainage liquide se fait via les bords de Plateau à cause de la gravité.
- **La succion capillaire** : Rupture du film liquide séparant deux bulles sous l'effet de la pression capillaire. Ce phénomène est responsable de la coalescence des mousses et est décrit en détails dans le cas des mousses en milieux poreux (cf. paragraphe (II.D.2)).

II. Écoulement des mousses en milieux poreux (Aspects microscopiques)

A. Définition de la mousse en milieu poreux

Dans un milieu poreux, une mousse est représentée schématiquement par une dispersion de phase gazeuse dans une phase liquide continue et stabilisée par des tensioactifs aux interfaces liquide/gaz. La phase gazeuse peut être totalement ou partiellement discontinue, la discontinuité étant assurée par des lamelles liquides [15] (cf. Figure 7). La phase liquide forme aussi des films de mouillage liquide sur les parois des grains, connectés aux lamelles. La mousse ne représente pas une phase en soi. Dans une mousse en milieu poreux, le liquide se divise en une fraction qui remplira les lamelles et les bords de Plateau et une fraction qui se logera dans les petits interstices du milieu poreux. Tandis que le gaz se divise en une fraction de gaz en écoulement et une autre fraction immobile, piégée dans le réseau poreux [16].

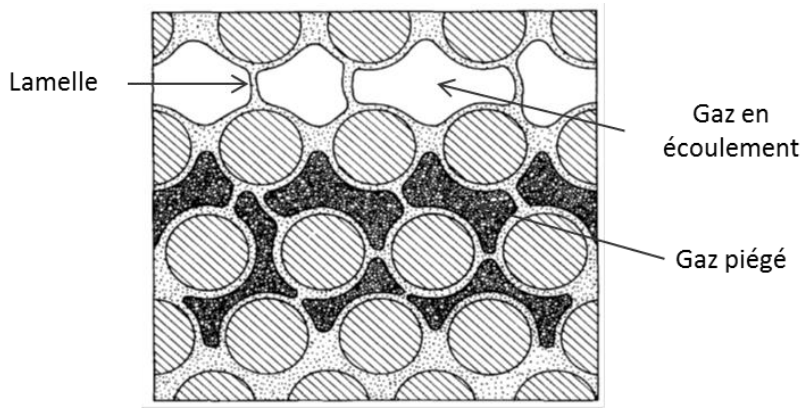


Figure 7 : Schéma de l'écoulement de la mousse à l'échelle du pore (modifié de [15]).

B. Les méthodes d'injection

Il existe différentes méthodes pour injecter ou former la mousse *in situ* dans un milieu poreux [7, 17, 18]:

- Co-injection de gaz et de liquide : la solution de tensioactifs et le gaz sont co-injectés à l'entrée du milieu poreux [6, 7].

- Pré-génération de la mousse : la mousse est générée à l'aide d'un générateur de mousse en dehors du milieu poreux avant de s'écouler dans le milieu poreux à balayer [19].
- Injection alternée de tensioactif et de gaz (*Surfactant Alternate Gas ou SAG*) [8]: le liquide contenant le tensioactif et le gaz sont injectés de manière alternée sous forme de bouchons « S*lugs* » et la mousse est alors générée *in situ* dans le milieu poreux. Durant le procédé SAG, la solution de tensioactifs est drainée par la phase gazeuse.

La pré-génération de la mousse permet de pallier principalement aux problèmes de puits faiblement productifs dans des réservoirs à faible pression, tandis que la co-injection et le procédé SAG seraient plus utiles pour améliorer l'efficacité du balayage [20].

C. Texture et qualité de la mousse

Le nombre de lamelles par unité de volume de gaz [21] définit la texture de la mousse n_f. Ce paramètre est d'une importance fondamentale car il est relié aux caractéristiques physiques intrinsèques à l'écoulement des mousses dans les milieux poreux, incluant la viscosité, la perméabilité relative et l'interaction entre les fluides. Hirasaki et al., [21] montre que le nombre de lamelles par unité de volume est inversement proportionnel à la taille moyenne des bulles qui s'écoulent dans un tube capillaire. D'autres auteurs utilisent cette notion de densité de lamelles pour décrire la texture de la mouse en relation notamment avec la viscosité du gaz moussant [22–24]. Certains auteurs se réfèrent à la distribution en taille des bulles pour parler de texture de la mousse en milieux poreux [25]. En l'absence de tensioactifs, une co-injection gaz-eau dans un milieu poreux aboutira nécessairement à des chemins préférentiels pour le gaz (généralement dans les canaux les plus larges) et le gaz aura tendance à migrer vers le haut par ségrégation gravitaire (cf. Figure 8.a). On appelle alors « mousse faible », une mousse qui développe généralement une faible différence de pression, avec une densité faible de lamelles et des bulles de grande taille (cf. Figure 8.b). A l'inverse, lorsqu'il existe un grand nombre de lamelles en l'absence de tout chemin de percolation de gaz, la mousse développe une grande résistance à l'écoulement du gaz et des bulles très fines sont présentes, on obtient alors ce qu'on appelle une « mousse forte » (cf. Figure 8.c). Les concepts de « mousse forte » et de « mousse faible » sont généralement qualitatifs et sont mieux appréciés à l'aide des mesures des différences de pressions lors de l'écoulement, en

comparaison avec des écoulements monophasique (liquide seul) ou diphasiques (gaz et eau sans tensioactifs).

Localement, la texture de la mousse est le résultat de la compétition de phénomènes complexes de création, de piégeage, de mobilisation et de destruction des lamelles. La plupart des études qui s'intéressent à la texture de la mousse dans un milieu poreux réel, mesurent la distribution ou la taille moyenne des bulles en sortie du milieux poreux dans des cellules de visualisation [25, 26]. La structure réelle de la mousse au sein du réseau poreux n'a jamais été observée. Ceci pose la question fondamentale de l'existence de la mousse sous forme de trains de bulles, qui est le modèle souvent mis en avant, et la possible existence d'une structure de mousse bulk au sein même du réseau poreux. Marsden et al., [25] affirment simplement que les bulles ont une distribution en taille du même ordre de grandeur que la distribution en taille des pores. D'autres auteurs confirment ces observations, même dans le cas de mousses faibles [24, 27].

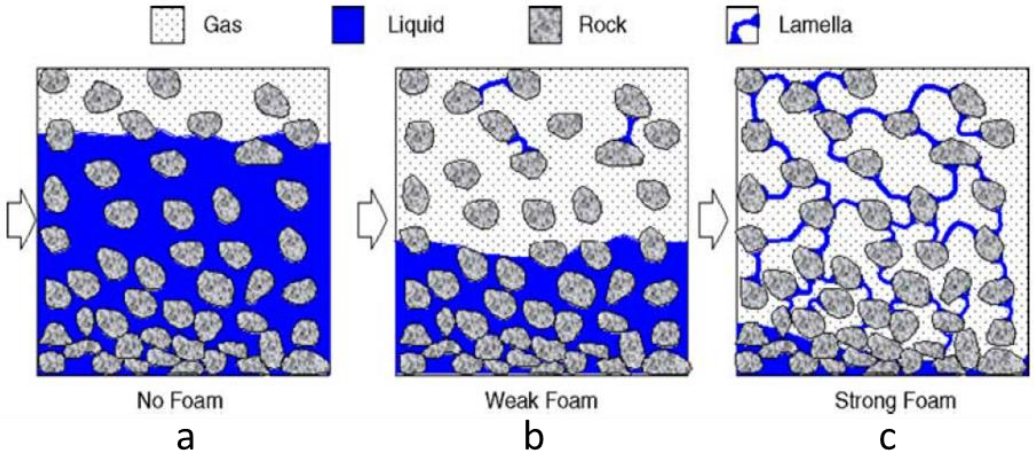


Figure 8 : Concept d'une mousse forte et faible en milieux poreux : (a) Écoulement diphasique gaz-eau (b) mousse faible (c) mousse forte ([23]).

La qualité de la mousse f_g est un autre paramètre très utilisée notamment pour décrire les écoulements de mousse en milieux poreux. La qualité de la mousse est définie comme le rapport du débit volumique de gaz par rapport au débit volumique total (liquide + gaz) :

$$f_g = \frac{Q_g}{Q_t} = \frac{Q_g}{Q_g + Q_l} \qquad \text{(I.2)}$$

Où Q_g, Q_l et Q_t représentent respectivement le débit volumique de gaz, le débit volumique de liquide et le débit volumique total.

La qualité de la mousse dans un milieu poreux peut aussi être décrite par les vitesses de Darcy (filtration) du gaz v_g et du liquide v_l, selon l'équation suivante [28] :

$$f_g = \frac{v_g}{v_t} = \frac{v_g}{v_g + v_l} \qquad \text{(I.3)}$$

Où v_t est la vitesse de Darcy (filtration) totale (du gaz et du liquide constitutifs de la mousse).

D. Mécanismes de formation et de déstabilisation de la mousse

A très petite échelle, la mousse en milieux poreux présente une dynamique particulière qui caractérise l'évolution de l'arrangement spatial de ses constituants : les bulles de gaz et la phase liquide (bords de Plateau et les lamelles). Différents auteurs se sont intéressés à décrire cette dynamique pour en tirer des mécanismes de formation et de destruction de la mousse lors de son écoulement. Dans le paragraphe qui suit, nous présentons les principaux mécanismes de génération et de destruction de la mousse en milieux poreux cités dans la littérature.

1. Mécanismes de génération de la mousse

Il existe principalement quatre mécanismes fondamentaux de formation de la mousse en milieux poreux [27]: le « *snap-off* », la division lamellaire, le « *leave-behind* » et le « *pinch-off* ».

a) Snap-off

Le Snap-off est un processus mécanique qui décrit la formation des bulles lorsque le gaz pousse une interface gaz/liquide à travers un seuil d'un pore (cf. Figure 9). Au moment où la bulle traverse le seuil, il se crée un gradient de pression capillaire; dans lequel la pression capillaire diminue en amont de la bulle pendant l'expansion de cette dernière à travers la constriction. Un apport de liquide se crée pour aboutir à la formation d'un col liquide au milieu du seuil de pore. En fonction du rapport de taille entre le rayon de courbure de la bulle et le rayon du seuil de pore, et en fonction de la géométrie des grains (plus ou moins pointus), le col liquide se transforme en lamelle ou pas. Généralement, le col liquide se forme dans des seuils exigus et y stagne [29]. Le Snap-off crée des bulles de gaz de tailles à peu-près

identiques à la taille des seuils de pores du milieu poreux et crée souvent un réseau de gaz discontinu abaissant la mobilité du gaz de plusieurs ordres de grandeurs. Ce mécanisme est reconnu comme étant le premier responsable de la formation des mousses fortes, et notamment dans le cas de co-injection gaz-tensioactifs [29] et de mousses relativement humides [30].

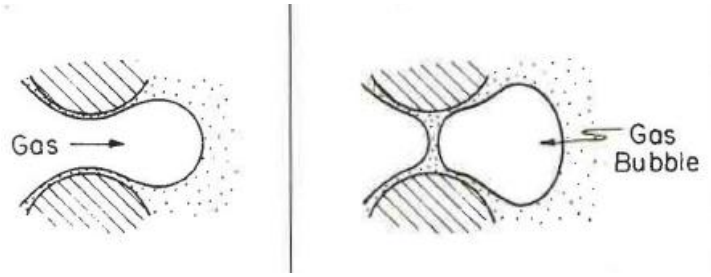


Figure 9 : Schéma du mécanisme de Snap-off [27].

b) Division lamellaire

La division lamellaire est le transport par division des lamelles ou des bulles. Ce mécanisme ne peut avoir lieu que si des bulles en mouvement préexistent. La division lamellaire se produit lorsqu'une bulle mobile se divise en deux parties ou plus à un point de branchement, comme illustrée sur la Figure 10. Comme le snap-off, la division lamellaire génère des mousses fortes. Il y a principalement deux prérequis pour ce mécanisme : un gradient de pression assez élevé pour mobiliser les multiples trains de bulles dans les branches et une taille de bulle plus grande que la taille du pore [31].

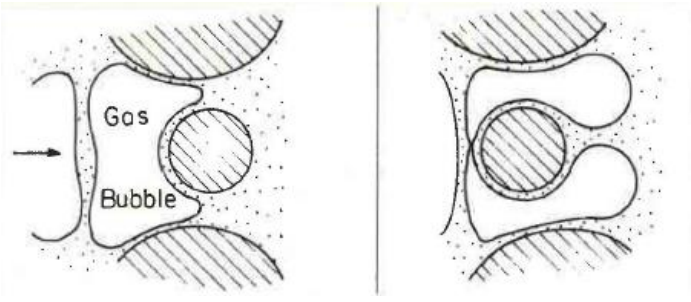


Figure 10: Schéma du mécanisme de division lamellaire [27].

c) Leave-behind

Ce mécanisme se produit lorsque le gaz envahit un milieu saturé en liquide. Lorsque deux ménisques de gaz arrivent sur un même pore rempli de liquide et y pénètrent en convergeant

par la suite, une lentille liquide stationnaire est formée et est laissée derrière (cf. Figure 11). Cette lentille se transforme en lamelle par la suite sous l'effet du drainage liquide [29]. Les mousses créées uniquement par *Leave-behind* sont considérées faibles ou inefficaces [32], car les lamelles sont parallèles à la direction d'écoulement de gaz, ce qui génère peu de résistance à l'écoulement [33]. Si ce mécanisme domine alors on obtient une phase gazeuse continue et une faible réduction de la mobilité du gaz [34][35].

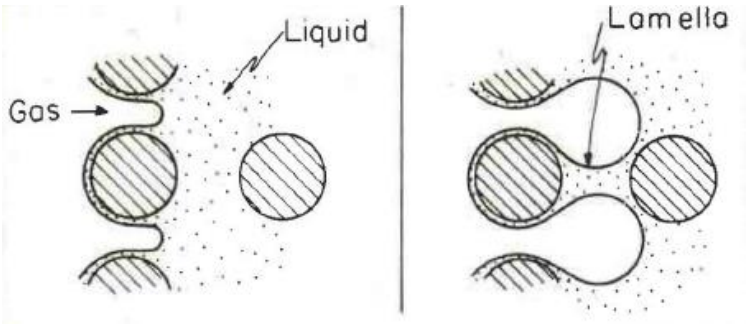


Figure 11: Schéma du mécanisme de Leave-behind [27].

d) Pinch-off

Récemment, Liontas et al., [30] ont découvert deux nouveaux mécanismes de génération de la mousse dans des canaux micro-fluidiques, appelés « Pinch-off » ou « pincement ». Ces mécanismes ont lieu lorsque deux bulles ou plus arrivent au niveau d'une constriction. Dans le cas d'un pincement entre une bulle et la paroi de la constriction le mécanisme se nomme « neighbor-wall pinch-off ». Dans le cas où une bulle est écrasée entre deux bulles voisines pour en générer une nouvelle, le mécanisme est appelé « neighbor-neighbor pinch-off » (cf. Figure 12). Ces mécanismes ont été observés pour un écoulement stable et pour des canaux larges et droits et où seules les constrictions sont incurvées.

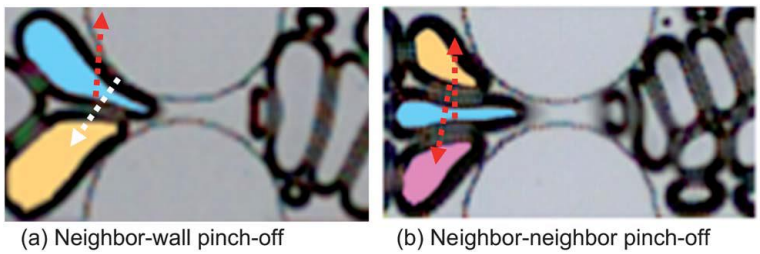


Figure 12 : Photos de mécanismes de Pinch-off. (a) Interaction entre une bulle et la paroi (flèches rouges)« bubble-wall pinch-off ». (b) Interaction entre les bulles (flèche blanche) « bubble-bubble pinch-off » [30].

2. Mécanismes de destruction de la mousse

La survie d'une lamelle dépend principalement de sa pression de disjonction, de la pression capillaire exercée par la structure poreuse et de la perméabilité des films liquides au gaz considéré.

a) Equilibre entre pression capillaire et pression de disjonction

Les films liquides sont constitués de deux interfaces liquides/gaz. Ces deux interfaces sont à l'équilibre grâce à la répulsion électrostatique entre les têtes hydrophiles et à la répulsion stérique et/ou d'hydratation des tensioactifs qui s'opposent à l'attraction de Van Der Walls (cf. Figure 13.a). Cette dernière tend au contraire à réduire l'épaisseur de ces films. La somme de ces interactions (répulsives et attractives) forme ce qu'on appelle la pression de disjonction (une force par unité de surface) :

$$\pi_{disj} = \pi_{VDW} + \pi_{électr} + \pi_{stériq,hydrat} \qquad \text{(I.4)}$$

Si la pression de disjonction n'existait pas, la pression capillaire notée P_c qui fait intervenir la courbure interfaciale des bords de Plateau pousserait le liquide à circuler sans arrêt des lamelles vers les bords de Plateau.

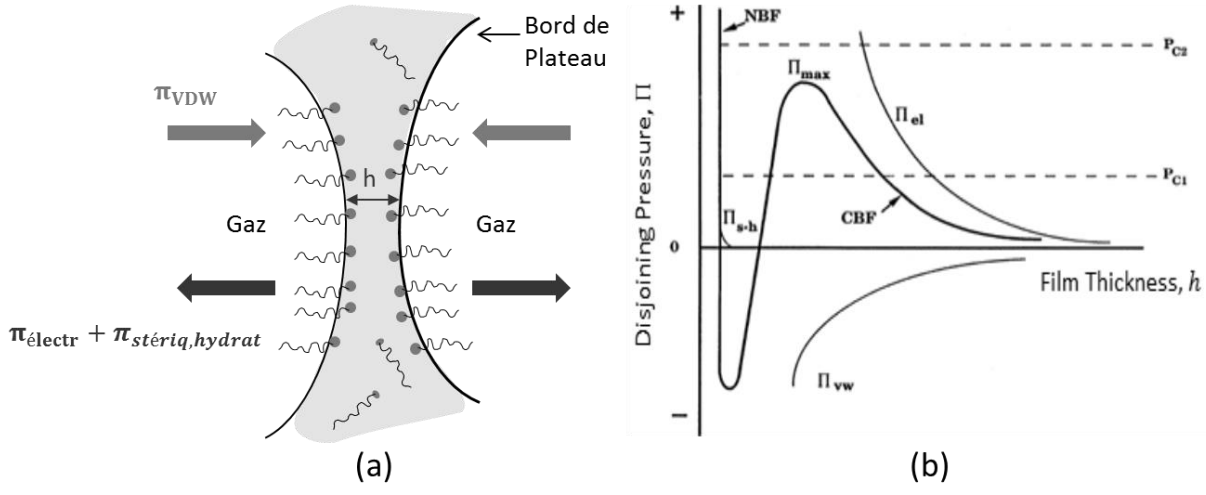


Figure 13 : (a) Schéma des forces exercées sur une lamelle. (b) Courbe de pression de disjonction en fonction de l'épaisseur de la lamelle [36].

La Figure 13.b représente la variation de la pression de disjonction (idéale, non expérimentale) $\pi_{disj}\ (h)$ (notée Π(h) sur la figure) en fonction de l'épaisseur du film liquide h

pour des lamelles statiques. Les valeurs positives reflètent la contribution forte des forces répulsives tandis que les valeurs de $\pi_{disj}\ (h)$ négatives indiquent la contribution des forces attractives nettes. Par conséquent, les lamelles ne sauraient être dans un état d'équilibre que pour des pentes négatives. Lorsqu'on se trouve sur une pente positive, la moindre perturbation mécanique détruit les lamelles[29]. Pour des épaisseurs de films grandes (au-delà de 7 nm dans le cas du tensioactif Sodium Dodecyl Sulfate (SDS) [37] par exemple) les forces de répulsion électrostatique dominent. Ces épaisseurs sont nommées les films noirs communs (CBF : Common Black Film). Pour des épaisseurs de films petites (inférieur à 4nm dans le cas du SDS [37]), les forces stériques/d'hydratation dominent. Ces épaisseurs sont nommées les films noirs de Newton (NBF : Newton Black Film) et sont très peu stables.

La ligne horizontale P_{c_1}, révèle la possible existence de trois épaisseurs différentes pour une même pression de disjonction. L'épaisseur de lamelle qui existe réellement dans le milieu poreux est déterminée par l'équation de Young-Laplace (cf. Annexe C) [29] où l'expression de la pression capillaire devient **:**

$$P_c = 2\sigma C_m + \pi_{disj}\ (h) \qquad \text{(I.5)}$$

Où P_c est la pression capillaire locale, C_m la courbure interfaciale moyenne du film liquide et σ est la tension de surface entre la solution liquide et le gaz considéré. La pression capillaire quant à elle dépend de l'endroit où se trouve la lamelle et de la saturation liquide locale. Lorsque la pression capillaire augmente dans le milieu poreux, l'épaisseur des films décroit le long de la branche CBF jusqu'à atteindre Π_{max} puis un film NBF apparaît.

A pression capillaire imposée encore plus grande (P_{c_2}), on atteint une pression de disjonction de rupture où les films se rompent. La pression capillaire correspondante est appelée pression capillaire critique ou pression capillaire limite P_c^* (cf. III.A.3). Pour certains tensioactifs la pression capillaire critique correspond à Π_{max}.

Plusieurs auteurs se sont intéressés à la description de l'écoulement d'une lamelle dans le cas dynamique en développant des modèles rhéologiques, notamment dans des configurations de géométrie sinusoïdale des pores [38–40]. Jimenez et Radke [39] ont présenté une théorie hydrodynamique pour expliquer la dépendance de la pression capillaire limite au débit de gaz injecté. Ils ont prédit que l'augmentation de la vitesse d'écoulement

contribue à une dégradation plus rapide de la mousse. De même, les lamelles qui traversent les canaux qui varient périodiquement en taille se voient étirées puis comprimées lors de leur écoulement (cf. Figure 14). Ainsi, on observe une oscillation de l'épaisseur de la lamelle au fur et à mesure qu'elle traverse le milieu jusqu'à ce que le liquide interstitiel dans les pores voisins ne puisse plus garantir la stabilité de cette dernière et qu'elle finisse par se rompre. La pression capillaire à ce moment-là est égale à la pression capillaire limite P_c^*.

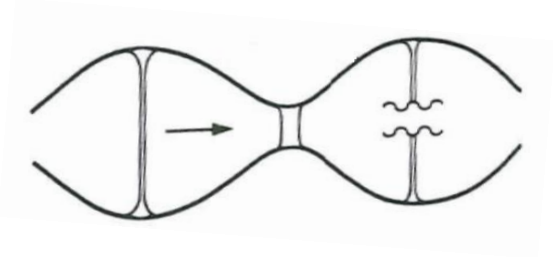


Figure 14 : Une lamelle de mousse en mouvement du gauche vers la droite dans un tube avec des constrictions périodiques. La coalescence a lieu dans le 2ème pore [29].

b) Diffusion gazeuse à travers les films

Un autre mécanisme intervenant dans la déstabilisation des lamelles est la diffusion gazeuse. Les films de mousses ne sont pas complétement imperméables au gaz [41]. Les films liquides seront plus au moins perméables au gaz selon le type de gaz et sa capacité de dissolution dans la solution de tensioactifs, l'adsorption des tensioactifs sur les interfaces gaz/liquide, et l'épaisseur et la surface de ces films. Ce phénomène a été notamment discuté pour les expériences utilisant des gaz traceurs comme le Xenon [42] afin d'évaluer la quantité de gaz piégé par la mousse dans le milieu poreux. En effet, une sous-estimation de la diffusion du gaz à travers les lamelles pourrait amener à se tromper facilement sur les quantités de gaz mobiles et piégées par la mousse.

c) Effet de l'huile

L'huile est reconnue pour être un facteur déstabilisant de la mousse dans les milieux poreux. Plusieurs mécanismes ont été proposés dans la littérature [10, 43–45] pour décrire l'interaction entre les films liquides et l'huile. L'huile est en effet néfaste pour la génération de la mousse probablement à cause de l'altération de la mouillabilité de la roche, de la réduction de concentration de tensioactifs au profit de la phase huile, ou à cause de la réduction de la survenance des mécanismes de divisions lamellaires dues au blocage des

branchements de pores par des ganglions d'huile. La réduction de la stabilité de la mousse en interaction avec l'huile est généralement attribuée à l'instabilité des films de pseudo-émulsions qui se forment entre une bulle et l'huile. Toutefois, les mécanismes qui interviennent dans les interactions entre l'huile et les lamelles de liquide demeurent complexes et mal compris.

III. Écoulement des mousses en milieux poreux (Aspects macroscopiques)

A. Comportements transitoire et stationnaire

Lorsqu'une mousse est injectée dans un milieu poreux, elle passe d'abord par une phase d'écoulement transitoire puis atteint une phase stationnaire.

1. Le régime transitoire

La phase transitoire de l'écoulement de la mousse représente les premiers instants de formation de la mousse après son injection. Cette phase est souvent caractérisée par une augmentation de la différence de pression entre l'amont et l'aval du milieu poreux notée ΔP (cf. Figure 15). La plupart des travaux sur la propagation de la mousse en phase transitoire ont été réalisés soit par injection de gaz dans un milieu pré-saturé en tensioactifs [26], soit par co-injection du gaz et une solution de tensioactifs dans un milieu pré-saturé en saumure [46] ou pré-saturé en solution de tensioactifs [47, 48]. Il est vrai qu'un milieu pré-saturé en tensioactifs est plus propice à la forte réduction de la mobilité du gaz en ayant un front de mousse très stable et de très faibles effets de digitations visqueuses. Dans la pratique, on préfère minimiser l'utilisation intensive de tensioactifs pour minimiser le coût de production dans un réservoir. Par ailleurs, tous les phénomènes intrinsèques à l'interaction entre les tensioactifs et le milieu solide (adsorption, partitionnement, dégradation thermique) peuvent influencer significativement les mécanismes microscopiques de génération de la mousse.

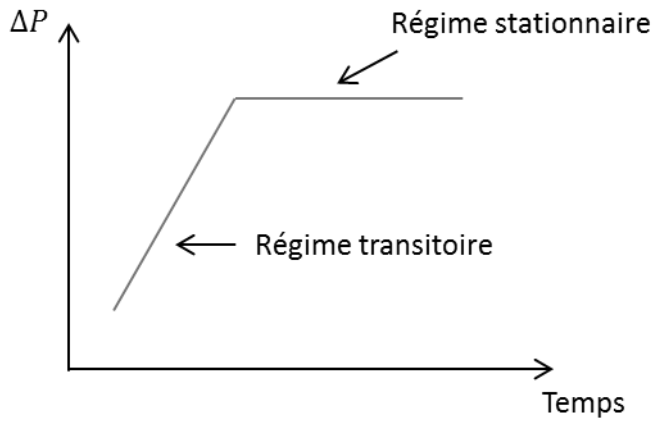


Figure 15 : Schéma d'évolution de la pression lors du régime transitoire puis stationnaire.

Les travaux utilisant des techniques d'imagerie, notamment de tomographie-X [42, 49–51] et de RMN [52], révèlent l'avancement de la mousse en deux étapes avec formation d'un premier front net, suivi d'une phase dite de « désaturation liquide secondaire » ou s*econdary liquid desaturation*. Plus précisément, Zitha et al. [53] ont observé principalement trois régions distinctes (cf. Figure 16) : en amont du milieu poreux une faible saturation liquide, en aval une forte saturation et au milieu une saturation moyenne avec quelques effets de digitation visqueuse. Dans la région amont où se forme la mousse, l'effet de désaturation liquide secondaire prend effet dès l'injection. Après la percée de la mousse, cet effet de désaturation devient très visible [49]. Si on se place sur une même position le long de la carotte, on peut observer que la saturation liquide diminue au cours du temps. La désaturation liquide secondaire s'expliquerait par l'augmentation des forces visqueuses, qui forcent la mousse à pénétrer de plus en plus dans des petits pores après avoir envahi les gros pores. L'expansion du gaz contribue aussi à augmenter ces forces visqueuses en favorisant le mouvement des lamelles et leur génération, induisant un affinement de la texture de la mousse en aval [54].

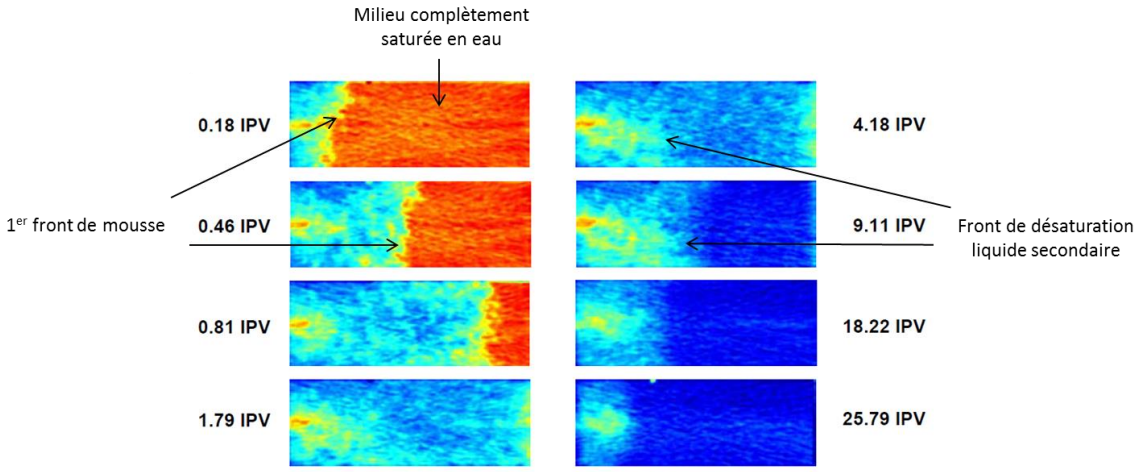


Figure 16 : Déplacement transitoire de la mousse dans un grès de Bentheimer initialement saturé en tensioactifs. La couleur rouge indique une grande présence de liquide tandis que la couleur bleu fait référence au gaz. La mousse traverse la carotte et perce après 0.8IPV. Après la percée, un front de désaturation liquide secondaire apparaît au milieu et se propage vers l'entrée et la sortie de la carotte (adaptée de [53]).

En réalité, l'état de mousse forte intervient pendant et après la désaturation liquide secondaire. Pendant cette phase, il se crée un nombre important de lamelles qui sont mobilisées par la suite. Ceci nécessite un gradient de pression minimum ∇P^{min} (ou de manière similaire une vitesse minimale v_{min}) [27, 55, 56] (cf. Figure 17); ce phénomène rejoint la description de la mousse comme un fluide à seuils hors milieu poreux [16]. En deçà de ce gradient de pression, les bulles ne s'écoulent plus et restent piégées. Selon Rossen et al., [55], l'amplitude de ∇P^{min} dépend de la forme du pore, de la texture de la mousse, de la perméabilité et de la tension interfaciale. Pour une mousse de texture moyenne (des bulles de 400 µm de diamètre hors milieu poreux), on obtient $\nabla P^{min} = 0.1 \text{ à } 0.32\, bar/m$ pour une mousse à base de CO_2 et de 1.25 à 2.4 bar/m pour des mousses générées avec d'autres types de gaz. ∇P^{min} diminue lorsque les tensions interfaciales diminuent [57] et est plus grand pour des rapports d'aspect pore-seuil élevés (rayon de pore/rayon de seuil), des pores anguleux, des seuils de pores étroits et des pressions capillaires faibles.

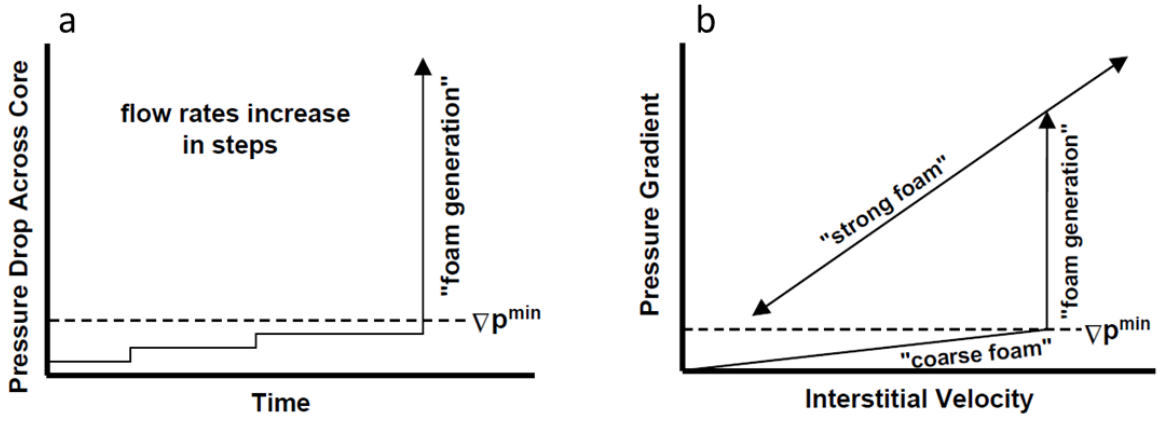


Figure 17 : Schéma de gradient de pression minimum pour la génération de la mousse. (a) Augmentation de ΔP en fonction du temps lors de l'augmentation du débit d'injection par palier. (b) Relation entre le gradient de pression et la vitesse interstitielle (adaptée de [58]).

2. Les régimes d'écoulement stationnaire

En réalisant plusieurs expériences d'écoulement de mousses dans un milieu poreux formé de grains de sable, Osterloh et Jante [48] ont identifiés deux régimes distincts à l'état stationnaire (cf. Figure 18) :

- Un **régime basse qualité** où le gradient de pression est indépendant de la vitesse de liquide et est dépendant de la vitesse de gaz. Dans ce régime, l'avancement de la mousse est régi par des intermittences entre écoulement et piégeage des bulles. La résistance capillaire et le piégeage de gaz sont les principaux mécanismes qui contrôlent ce régime. En plus, il semble établi que dans ce régime, la texture de la mousse (nombre de bulles par unité de volume) reste constante avec une taille de bulle moyenne de l'ordre de la taille du pore et qu'un comportement d'écoulement rhéo-fluidifiant est observé [59].
- Un **régime haute qualité** où le gradient de pression est indépendant de la vitesse de gaz et est dépendant de la vitesse du liquide. Ce régime est contrôlé par la coalescence des bulles, la pression capillaire et les effets stabilisateurs de tensioactifs (type et concentration) [59, 60]. L'écoulement de la mousse dans ce régime est complexe.

La zone de transition entre les deux régimes définit une qualité de mousse critique ou optimale notée f_g^*. À cette qualité de mousse, le gradient de pression est maximal pour une vitesse d'écoulement donnée. Dans cette phase de transition, tous les mécanismes de déstabilisation de la mousse jouent un rôle dans son écoulement.

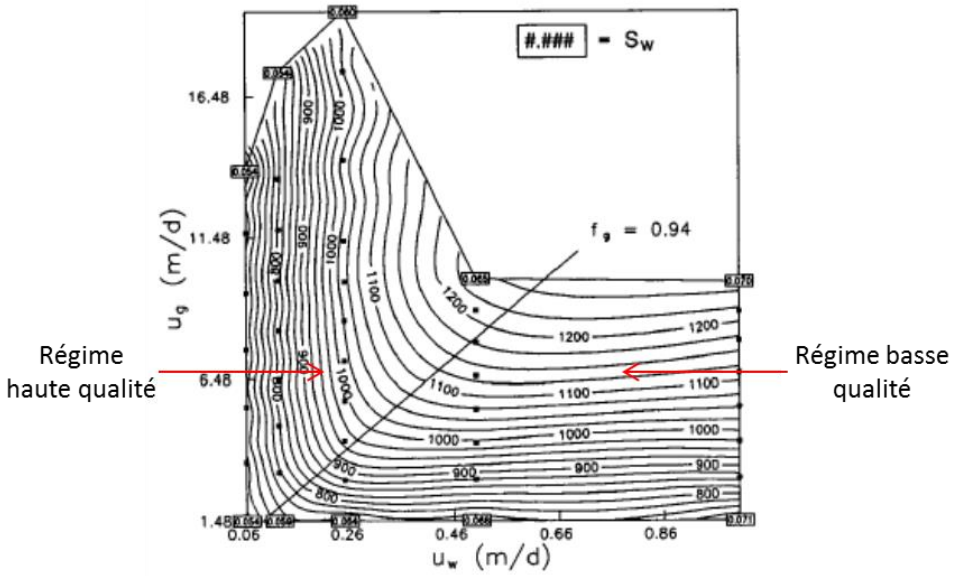


Figure 18 : Contours iso-gradients de pressions mesurés en régime stationnaire en fonction des vitesses superficielles de liquide notée U_w et de gaz notée U_g (adaptée de [48]). Les vitesses sont exprimées en mètres par jour. Sur cette figure, le régime haute qualité correspond à la partie supérieure gauche. Le régime basse qualité correspond à la partie inférieure droite. $f_g^* = 0.94$.

3. Le concept de « pression capillaire limite »

La stabilité de la mousse dépend de la pression capillaire exercée par le milieu poreux et les conditions expérimentales d'écoulement. A l'échelle microscopique, les lamelles ne coalescent pas toutes d'un coup à une certaine pression capillaire. En effet, comme discuté auparavant, cela dépendra de la géométrie du canal pore-seuil considéré et de la fraction locale de gaz par rapport au liquide.

A l'échelle macroscopique, la pression capillaire augmente en fonction de la saturation de gaz, lorsque le gaz envahit le réseau poreux (comme pour un processus de drainage). La saturation de gaz quant à elle est susceptible d'augmenter lorsque la qualité de mousse augmente (cf. Figure 19 à gauche). Si cette qualité est augmentée au-delà de la valeur critique f_g^*, il est prédit théoriquement que la pression capillaire atteint la pression capillaire limite P_c^* puis ne change plus, alors que la texture de la mousse diminue et la taille des bulles augmente [60] (cf. Figure 19 à droite). Ce concept, largement utilisé dans les modèles de mousses en milieux poreux [61], traduit le mécanisme de coalescence des bulles qui génère une redistribution du liquide des bords de Plateau vers les films liquides voisins afin de maintenir le système à une saturation liquide fixe S_w^* (cf. Figure 19. A droite). Il faut noter que le

concept de pression capillaire limite P_c^* est très analogue au concept de pression de disjonction critique pour les mousses *Bulk* au-delà duquel les films liquides sont rompus [61]. P_c^* serait une fonction croissante de la concentration de tensioactifs, décroissante en fonction de la perméabilité et des vitesses d'injection [60].

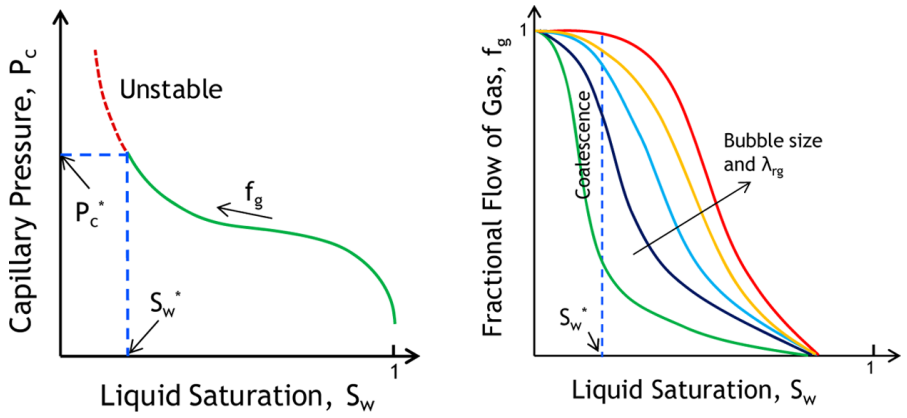


Figure 19 : Schémas d'évolution de la pression capillaire en fonction de la saturation liquide S_l (notée sur la figure S_w) lors de l'augmentation de la qualité de mousse f_g (à gauche). Schéma du mécanisme de coalescence lorsque la pression capillaire limite $P_c^*(S_w^*)$ est atteinte (à droite) (adaptée de [60, 61]).

B. Paramètres influençant l'écoulement de la mousse

L'écoulement de la mousse dans un milieu poreux fait intervenir une multitude de paramètres qui vont de la contribution et l'interaction des phases entre elles (liquide, gaz et solide) aux caractéristiques intrinsèques à la rhéologie des écoulements de mousses dans les milieux confinés. Tous ces paramètres influencent plus ou moins l'écoulement de la mousse à différentes échelles. On présente dans les paragraphes suivants quelques paramètres qui influencent l'écoulement des mousses en milieux poreux.

1. Effets d'injection des fluides

L'utilisation d'un système de pré-génération de la mousse (mousseur) ne change pas globalement la texture de la mousse en sortie du milieu poreux étudié. Falls et al. [22] ont étudié la mobilité d'une mousse pré-générée avec une taille de bulle bien identifiée. Ils ont conclu que la texture de la mousse en sortie du deuxième milieu poreux n'est pas affectée par les caractéristiques géométriques du premier milieu poreux. Les travaux de Baghdikian et Handy [62] montrent aussi qu'il n'y a pas d'effets significatifs de l'utilisation du générateur de mousse sur la texture finale. En revanche, Ettinger et Radke [24], précisent que l'effet de

l'expansion de gaz en sortie à cause de la différence de pression qui règne à l'intérieur du milieu poreux et en sortie, conduit à une surestimation de la taille moyenne de la bulle si celle-ci est mesurée à l'extérieur du milieu poreux. Ils concluent tout de même que le milieu poreux ajuste la taille des bulles à l'image de la taille des pores.

2. Effets d'entrée

La répartition spatiale de la mousse à l'échelle du milieu poreux n'est pas uniforme. En effet, la mousse présente une saturation liquide plus grande à l'entrée du milieu où est réalisée l'injection [54, 63] du gaz et de la solution de tensioactifs. Ces régions d'entrée se caractérisent aussi par des gradients de pression généralement faibles [24, 26, 64]. Il se forme alors un front entre la région amont et la région aval du milieu poreux qui caractérise un changement abrupt de la texture [65] (Au-delà du front, une texture fine tandis qu'en amont on trouve une mousse grossière ou faible). La longueur sur laquelle se forme cette région d'entrée fait l'objet de plusieurs études contradictoires. Par exemple, Myers et Radke [66] rapportent des régions d'entrée d'environ 15 cm sur une longueur totale de 60 cm, et affirment que les carottes de roche très courtes sont particulièrement influencées par les effets d'entrée contrairement aux carottes de roche longues. D'autres études ne trouvent pas ou très peu de régions d'entrée [24, 26, 64, 67]. La longueur caractéristique de la région d'entrée serait fonction de plusieurs paramètres, incluant le type de gaz, les vitesses d'injection, le type et la concentration des tensioactifs entre autres.

3. Perméabilité de la roche

La perméabilité de la roche et les variations de la perméabilité affecte la mobilité de la mousse[27, 68]. En ce qui concerne la génération de la mousse, Gauglitz et al., [58] trouvent que pour un milieu granulaire formé de billes ou de sable le ∇P^{min} varie comme l'inverse de la perméabilité K, tandis que Rossen et Gauglitz [55] et Tanzil et al., [56] affirment que ∇P^{min} varie comme $K^{-1/2}$. En ce qui concerne la mobilité de la mousse à l'état stationnaire, Lee et al., [69] ont étudié la viscosité apparente de la mousse en fonction de la perméabilité pour différents types de roches. Ils ont trouvé que la viscosité apparente augmente de manière non linéaire en fonction de la perméabilité (cf. Figure 20). Bertin et al., [70] ont réalisé des expériences d'écoulement de mousse dans un milieu hétérogène et ont montré que la vitesse interstitielle du gaz de la mousse qui envahit un milieu saturé en liquide, était plus élevée dans les zones où la perméabilité est grande par rapport aux zones où la perméabilité est faible.

Kovscek et Bertin [71] ont montré théoriquement que la dissipation visqueuse associée à la structure de la mousse permet de déduire une loi en puissance qui relie la viscosité effective du gaz moussant à la perméabilité du milieu poreux avec un exposant qui vaut 3/2. Contrairement à un fluide Newtonien, Il est possible que la structure de la mousse ne soit pas la même pour des milieux poreux de perméabilités très différentes, et c'est ce qui expliquerait une dépendance non-linéaire de la viscosité de la mousse au paramètre de perméabilité.

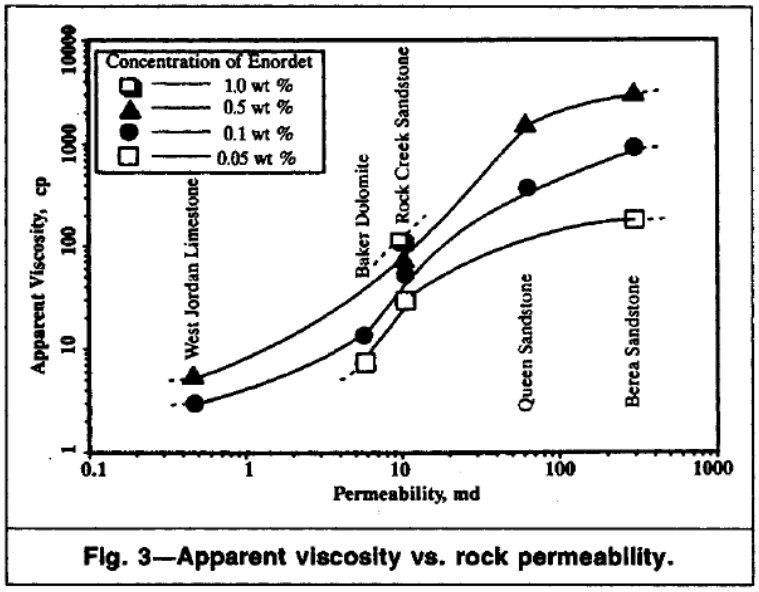


Figure 20 : Effet de la perméabilité de la roche sur la viscosité apparente de la mousse [69].

4. Type de gaz

La plupart des études expérimentales des mousses en milieux poreux utilisent soit des mousses à base d'azote N_2 ou des mousses à base de dioxyde de carbone CO_2. Des études comparatives ont montré que les premières généraient des gradients de pression plus grands que les deuxièmes [72, 73]. En effet, les mousses CO_2 restent plus faibles que les mousses N_2, et l'effet de désaturation liquide des mousses est moins élevé pour les mousses CO_2 que pour les mousses N_2. On a attribué cette faiblesse des mousses CO_2 à la solubilité de ce dernier dans l'eau qui est 55 fois plus grande que celle de N_2 [72]. Cette grande solubilité du gaz dans le liquide favorise la diffusion du gaz et donc la coalescence des bulles. Des visualisations par tomographie X ont montré un front net pour les mousses N_2 et un front diffus pour les mousses CO_2 lors de l'écoulement dans un grès [72].

5. Concentration de tensioactifs

Une solution concentrée en tensioactifs permet de stabiliser les films liquides et les rendre plus résilients aux perturbations mécaniques lors de l'écoulement de la mousse. La mobilité de la mousse diminue et la stabilité de la mousse augmente avec la concentration de tensioactifs [61, 74].

IV. Réduction de la mobilité du gaz par la mousse

Il est généralement admis que la mousse réduit la mobilité de la phase gazeuse et a peu d'effets sur la phase liquide. Ceci conduit les théoriciens à décrire les caractéristiques pétro-physiques de la mousse[1] comme étant intimement liés à la perméabilité relative du gaz dans la mousse (k_{rg}^f) et/ou à sa viscosité effective (μ_g^f). Même si ces phénomènes peuvent être séparés physiquement, ils ne peuvent l'être d'un point de vue mathématique parce qu'ils sont liés par la loi de Darcy (cf. Annexe A). Ainsi, la vitesse du gaz peut être reliée au gradient de pression généré par la loi suivante :

$$u_g^f = -\frac{K k_{rg}^f \nabla P_g}{\mu_g^f} \tag{I.6}$$

Où u_g^f est la vitesse de darcy du gaz dans la mousse, K la perméabilité du milieu poreux, k_{rg}^f la perméabilité relative du gaz, μ_g^f la viscosité effective du gaz et ∇P_g le gradient de pression de la phase gazeuse. La mobilité du gaz moussant λ_g^f est par ailleurs décrite par la loi suivante :

$$\lambda_g^f = \frac{k_{rg}^f}{\mu_g^f} \tag{I.7}$$

De cette relation, on déduit que la réduction de la mobilité du gaz grâce à la mousse se fait essentiellement soit par la réduction de la perméabilité relative du gaz ou par l'augmentation de sa viscosité effective. En réalité, la loi de Darcy suppose que la phase gazeuse soit continue, or cette phase est formée de bulles de gaz séparées par une fraction liquide qui évolue dans le temps et même dans l'espace selon les échelles (Nous reviendrons sur ce point plus loin). Dans une certaine mesure, lorsque la mousse devient fine, telle une mousse forte, on peut ignorer la phase liquide et considérer la pression de la mousse égale à la pression du gaz [75].

[1] Par la suite et sauf mention contraire, la mousse désignera la phase gazeuse dans la mousse

L'évolution des paramètres de viscosité et de perméabilité en fonction des caractéristiques de l'écoulement (vitesse, pression, saturation, température, etc.), des caractéristiques du milieux poreux (taille de pore, distribution des pores et seuils, etc.) et des caractéristiques des fluides (type, concentration, salinité, etc.) ont fait l'objet de plusieurs études plus ou moins empiriques et ont donné naissance à un large éventail de modèles [75–77] qui ne font pas l'objet de cette thèse et ne seront mentionnés que brièvement et à des fins de compréhensions des phénomènes physiques qui sous-tendent l'écoulement des mousses en milieux poreux.

A. Viscosité effective du gaz

La viscosité effective du gaz dans la mousse et par abus de langage « de la mousse », est définie comme la viscosité d'un fluide Newtonien qui s'écoulerait à la même vitesse, dans la même géométrie du milieu poreux, et dans les mêmes conditions de gradient de pression [21].

Les travaux précurseurs de Bretherton [78] et après lui de Hirasaki et Lawson [21] ont permis de déduire un modèle rhéologique de l'écoulement d'un train de bulles dans un tube capillaire. Ces modèles considèrent que la taille de bulle est liée directement à l'augmentation de la résistance à l'écoulement du gaz, exprimée par la différence de pression totale induite ΔP. Ainsi, en extrapolant ces travaux pour des milieux poreux, différents auteurs [32, 79–83] ont proposé la relation suivante, pour exprimer la viscosité effective non-Newtonienne du gaz moussant :

$$\mu_g^f = \mu_g + \frac{C_f n_f}{v_{int_g}{}^c} \tag{I.8}$$

Où μ_g est la viscosité dynamique du gaz, n_f est la texture de la mousse, C_f est une constante de proportionnalité liée à la perméabilité du milieu poreux et à l'interaction entre la roche et le liquide [21, 22] et c un exposant entre 0 et 1 qui représente l'effet rhéo-fluidifiant de la mousse en écoulement. En l'absence de mousse ($n_f = 0$), on retrouve la viscosité du gaz seul.

Dans un milieu poreux, les canaux ont des géométries variables avec des pores et des seuils qui varient en taille. Il existe généralement une distribution statistique des tailles de

bulle qui affecte l'écoulement de la mousse selon l'échelle considérée et les mécanismes qui entrent en jeu [84]. Les travaux qui permettent de déceler ces mécanismes ont été récemment réalisés sur des micro-modèles par Géraud et al., [84]. Il trouve que le champs de vitesse des bulles varie localement et suit aussi une loi de distribution spécifique à l'échelle du réseau (cf. Figure 21). Ceci explique l'existence de chemins préférentiels pour la mousse dans de larges canaux interconnectés. En plus, il montre que ces chemins ne sont pas figés dans le temps mais intermittents ; un phénomène qui serait relié aux fluctuations de la pression capillaire locale selon l'endroit où se trouve la bulle et le changement de la concavité des films liquides. Cette répartition spatiale de la vitesse serait aussi influencée par la distribution des tailles de bulles (cf. Figure 21.b).

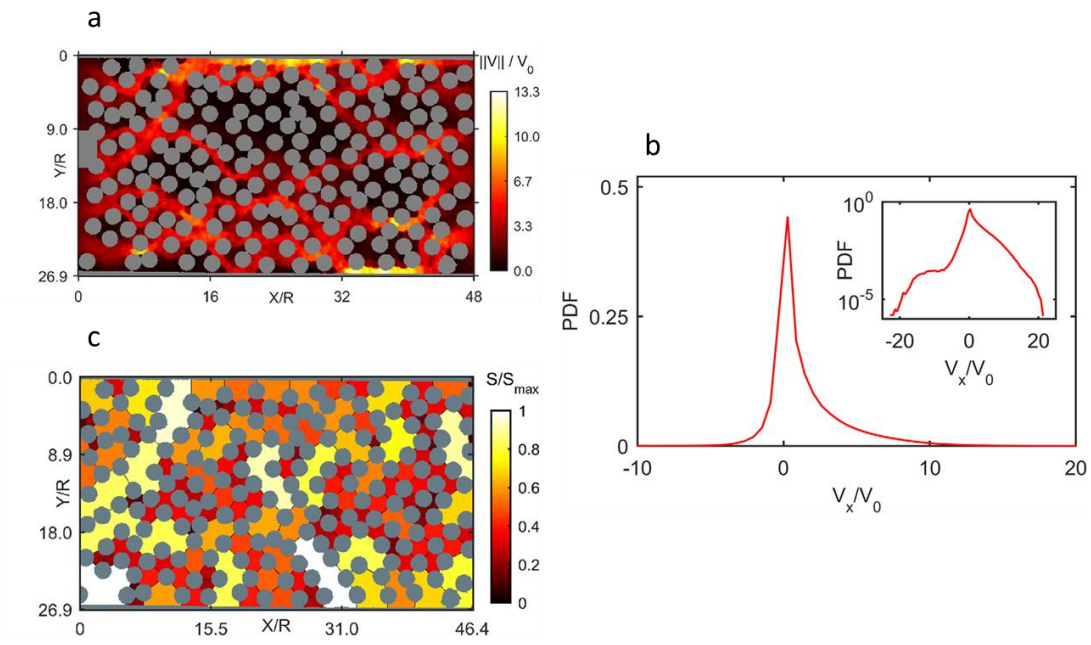


Figure 21 : État stationnaire de l'écoulement de la mousse. (a) Cartographie spatiale des vitesses des bulles normalisées par la vitesse moyenne V_0. (b) Densité de probabilité de la vitesse normalisée par la vitesse moyenne V_0. (c) Cartographie spatiale de la géométrie de pores. Les couleurs clairs indiquent de larges pores [adaptée de 84].

B. Perméabilité relative du gaz

La perméabilité relative du gaz moussant rend compte de la manière dont les bulles s'écoulent dans le réseau poreux. En réalité le gaz n'est pas totalement en écoulement et une grande fraction de gaz reste piégée [15, 85, 86]. Par conséquent, le nombre de canaux qui sont disponibles pour transporter les bulles de gaz est beaucoup plus faible en présence qu'en l'absence de mousse. Cette « gêne » créée par le gaz piégé serait en partie responsable de la

résistance à l'écoulement du gaz. Ainsi, la perméabilité relative de la phase gaz de la mousse k_{rg}^{f} serait liée à la saturation de gaz mobile S_g^f (rapport du volume de gaz mobile sur le volume poreux) par la loi suivante [29] :

$$k_{rg}^{f} = k_{rg}^{0}(S_g^f)^u \tag{I.9}$$

Où S_g^f est exprimée selon l'équation suivante :

$$S_g^f = \mathrm{X_f}(1 - S_l^f) \tag{I.10}$$

Et

$$S_l^f = \frac{S_l - S_{wc}}{1 - S_{wc}} \tag{I.11}$$

Ici S_l, S_{wc} et S_l^f désignent respectivement les saturations liquide totale, la saturation irréductible en eau et la saturation liquide de la mousse mobile.

La fraction de gaz mobile s'écrit selon l'équation suivante :

$$X_f = \frac{S_g^f}{S_g} = \frac{S_g^f}{S_g^f + S_g^t} \tag{I.12}$$

Où S_g et S_g^t sont respectivement les saturations de gaz total et de gaz immobile. k_{rg}^0 désigne la perméabilité relative du gaz correspondante à l'état S_{wc} et u un exposant.

Il est clair qu'avec cette définition, l'écoulement de la mousse est comparé à un écoulement diphasique gaz/eau sans tensioactifs (avec les paramètres u, S_{wc} et k_{rg}^0) (cf. Annexe B), et que pour caractériser l'écoulement de la mousse il faut aussi déterminer les valeurs de saturation et de fraction du gaz piégé.

L'utilisation des différents paramètres cités ci-dessus nécessite leur quantification. Les saturations sont souvent déterminées par des méthodes de mesure optique ou magnétique telles que les rayons gamma [47], la résonnance magnétique nucléaire [52] (RMN) ou par tomographie-X [51]. En revanche, il est difficile de connaître la fraction de gaz piégé car il

faut dissocier la mousse mobile de la mousse immobile lors de l'écoulement. Gillis et Radke [15] ont utilisé un gaz traceur d'hexafluorure de soufre SF_6 en combinaison avec du diazote N_2 et ont mesuré par chromatographie en phase gaz une fraction de gaz piégé comprise entre 80% et 100%. Nguyen [51] a utilisé le Xenon comme gaz traceur pour des mesures en tomographie-X et reporte des quantités de gaz piégé plus grandes à la sortie de la carotte (jusqu'à 77%) qu'en entrée (jusqu'à 58%). Il montre aussi que le gaz est plus piégé dans une carotte positionnée horizontalement que dans une carotte placée verticalement. Il conclut aussi que le débit de gaz n'a pas d'effet sur la fraction de gaz piégée contrairement au débit liquide. Tang et al., [67] trouvent quant à eux une fraction de gaz piégée de l'ordre de 80% qui diminue si la vitesse de gaz ou si le ratio de vitesses gaz/liquide augmente. Jones et al., [87] rapportent des fractions de gaz piégé comprises entre 10% et 70%, fractions qui diminuent avec la vitesse totale et la qualité de la mousse. Enfin, les différents auteurs s'accordent sur la grande proportion de gaz piégé par la mousse.

V. Conclusion du premier chapitre

Ce premier chapitre nous a permis de résumer les travaux issus de la littérature, qui permettent de décrire les écoulements des mousses en milieux poreux. La mousse présente une structure complexe à l'état statique. A cela, se rajoute la complexité de la dynamique de formation et de destruction de la mousse au sein du milieu poreux. A l'échelle globale du milieu poreux, cette dynamique peut être quantifiée à l'aide de paramètres tels que la pression ou la saturation qui nous permettent de distinguer les régimes d'écoulement et d'accéder à une description macroscopique de la mousse en fonction des paramètres d'injection tels que les débits ou la qualité de la mousse. Dans le chapitre suivant, nous présentons notre propre étude macroscopique de l'écoulement d'une mousse dans une carotte de roche à l'aide d'un Scanner X.

Chapitre II : Caractérisation macroscopique de l'écoulement des mousses en milieu consolidé par tomographie X

I. Introduction 40
- A. Introduction à la tomographie X 40
- B. Description du Scanner de l'IFPEN 42

II. Matériels et expériences 45
- A. Caractérisation du système fluide-roche 45
  - 1. Caractérisation de la solution de tensioactifs ... 45
    - a) Choix des tensioactifs ... 45
    - b) Mesures des tensions de surface et de la concentration micellaire critique ... 46
  - 2. Description de la roche de Bentheimer ... 48
    - a) Mesure de la porosité ... 49
      - (i) Mesure de la porosité par pesée ... 49
      - (ii) Profil de porosité par tomographie X ... 49
      - (iii) Porosimétrie par intrusion de mercure ... 50
    - b) Mesure de la perméabilité absolue ... 52
- B. Développement d'un montage d'injection de fluides dans les milieux poreux 53
  - 1. Caractéristiques de l'environnement expérimental ... 53
  - 2. Protocole d'injection des fluides et d'acquisition des images ... 56
    - a) Préparation des solutions de saumure et de tensioactifs ... 56
    - b) Mise en écoulement et acquisition sous Scanner ... 56
    - c) Calcul d'incertitudes sur les saturations ... 59
- C. Expériences d'écoulement de mousses sous Scanner X 60

III. Caractérisation macroscopique de la mousse en écoulement 63
- A. Écoulement diphasique gaz-saumure 63
- B. Formation de la mousse 65
  - 1. Etat transitoire ... 65
  - 2. Phase de formation de la mousse forte ... 70
  - 3. Effets d'entrée ... 71
  - 4. Effets capillaires de sortie ... 67
- C. Rhéologie de la mousse à l'état stationnaire 73
  - 1. Profils spatiaux des saturations à l'état stationnaire ... 73
  - 2. Influence de la qualité de la mousse ... 74
  - 3. Influence de la vitesse de gaz ... 76
  - 4. Évolution de la mobilité de la mousse ... 78
- D. Coalescence de la mousse en milieu poreux 80
  - 1. Relation entre qualité de mousse et saturation de gaz ... 80
  - 2. Estimation des pressions capillaires limites ... 82

IV. Conclusion du deuxième chapitre 84

I. Introduction

A. Introduction à la tomographie X

La tomographie est une technique non destructive très utilisée dans différents domaines comme l'imagerie médicale, la géophysique ou dans la mécanique des matériaux. Le mot 'tomographie' provient des mots grecs *tomos* qui veut dire « couper ou sectionner » et *graphein* qui veut dire « écrire ». Ce mot est utilisé aujourd'hui pour désigner toute technique qui permet d'obtenir une image en trois dimensions [88]. En 1917, Radon a été le premier à démontrer la possibilité de reconstruire une image à l'aide de la totalité de ses projections selon des droites concourantes. En 1972, G.N Hounsfield introduit le traitement informatique de l'image en radiologie X et construit la première génération des scanners X médicaux réalisant des coupes dans un seul plan axial (premier scanner médical). La tomographie à rayons X est de plus en plus utilisée dans le domaine de la pétro-physique pour déterminer la porosité des roches, visualiser des écoulements multiphasiques (gaz-eau-huile) ou pour mesurer la saturation des fluides. Grâce aux instruments de dernière génération, on réalise des acquisitions de l'ordre de quelques secondes pour des objets d'une dizaine de centimètres avec des résolutions spatiales de quelques centaines de microns [89, 90].

La tomographie X se base sur l'utilisation de faisceaux de rayons X qui traversent le matériau, ce qui permet de reconstruire des images de l'objet donné en mettant l'objet ou le couple source-détecteur en rotation (cf. Figure 22.a). Les mécanismes responsables de ces atténuations sont l'effet photoélectrique et l'effet Compton. Le premier beaucoup plus dépendant de l'énergie du faisceau que le deuxième, devient dominant pour des énergies en dessous de 100 keV environ. Ces deux effets peuvent s'exprimer à travers un coefficient d'atténuation μ. En effet, pour un faisceau de rayons X monochromatique traversant un objet possédant plusieurs couches, on peut exprimer l'intensité du faisceau à l'aide de la loi de Beer-Lambert (cf. Figure 22.b) [89] :

$$I = I_0 exp(-\int \mu(x)dx) \qquad \text{(II.1)}$$

Où I_0 est l'intensité du rayon incident, I l'intensité transmise après que le faisceau a traversé l'objet. $\mu(x)$ est le coefficient d'atténuation linéaire (dont l'unité est l'inverse d'une longueur) de la couche dx.

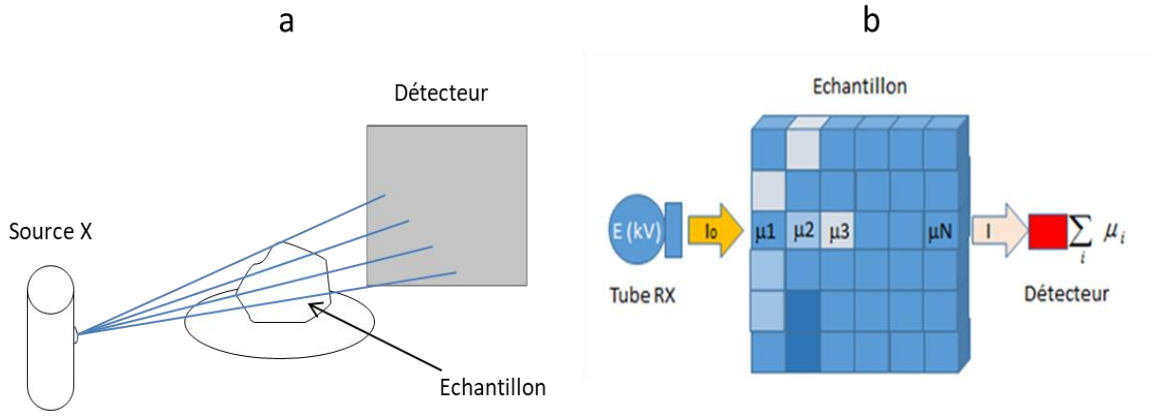


Figure 22 : (a) Principe d'acquisition des images tomographiques et (b) de mesure de l'atténuation du rayonnement X.

Le coefficient d'atténuation μ dépend de la densité du matériau et sa composition mais aussi de l'énergie des photons incidents, car souvent les sources de rayons X vendus dans le commerce ne sont pas strictement monochromatiques. Ainsi, le nombre de photons disponibles pour l'acquisition tomographique se retrouve réduit et une diminution du rapport signal sur bruit est observée [51]. Ainsi, pour tenir compte de ces effets, la loi (II.1) pourrait être réécrite selon la formule suivante :

$$I = \int \Omega_i(E_r) exp[-\int \mu(x, E_r) dx] dE_r \qquad \text{(II.2)}$$

Où $\Omega_i(E_r)$ est le nombre de photons incidents (d'énergie E_r) par unité de volume, et dont le coefficient d'atténuation est $\mu(x, E_r)$. Le coefficient d'atténuation mesuré peut être alors déduit à l'aide des équations (II.1) et (II.2) selon la formule suivante :

$$\mu_m(x) = \frac{\int \mu(x, E_r)\Omega_d(E_r) dE_r}{\int \Omega_d(E_r) dE_r} \qquad \text{(II.3)}$$

Où $\Omega_d(E_r)$ est le nombre de photons (d'énergieE_r) détectés par unité de volume.

La reconstruction de l'image de l'objet passe par la mesure des coefficients d'atténuations pour un certain nombre de positions angulaires n avec un pas angulaire $\Delta\theta$ et

consiste à retrouver la matrice d'absorption décrivant l'ensemble des projections pour tous les angles. Ce processus d'inversion mathématique appliqué au niveau de chaque élément du détecteur et pour les n profils d'intensités, permet d'obtenir la matrice 3D des coefficients d'atténuation linéaire qui vont délimiter l'objet et restituer sa structure interne (cf. Figure 23).

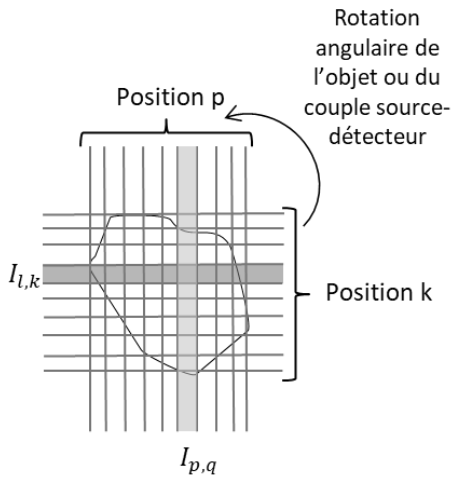


Figure 23 : Principe de reconstruction d'une image.

B. Description du Scanner de l'IFPEN

Le Scanner médical utilisé dans le cadre de cette étude est un General Electric GE Discovery 750HD Dual Energy qui permet de produire des images de la structure interne des objets en 3D (cf. Figure 24). Il est composé d'un anneau ou statif dans lequel un tube à rayons X et un détecteur tournent de manière synchrone autour de l'objet à examiner. Le mouvement de rotation de l'ensemble tube à RX et détecteurs autour du grand axe de l'objet examiné, permet d'enregistrer les intensités transmises lors de la traversée de la même coupe de l'objet, suivant différentes directions concourantes. L'utilisation d'outils mathématiques permet, par « rétro projection » des différentes mesures d'atténuation sur une matrice de reconstruction, de reconstruire la cartographie 2D des coefficients d'atténuation au niveau de la section examinée. Ces coefficients d'atténuation donnent des informations sur la densité et le numéro atomique moyen de la zone reconstruite. Par déplacement de la table du scanner, on reconstruit une série de coupes 2D qui restitue la distribution 3D des coefficients d'atténuation dans l'échantillon. Ce scanner est équipé de détecteurs multi-barrettes permettant la reconstruction de plusieurs coupes à la fois (64 coupes/rotation, vitesse maximale de rotation 0.3 seconde par tour) et utilise aussi un déplacement continu de l'échantillon pendant la rotation de la source de rayons *X* (acquisition hélicoïdale). Il en

résulte que tout un volume peut être analysé en un temps très court de l'ordre de quelques secondes.

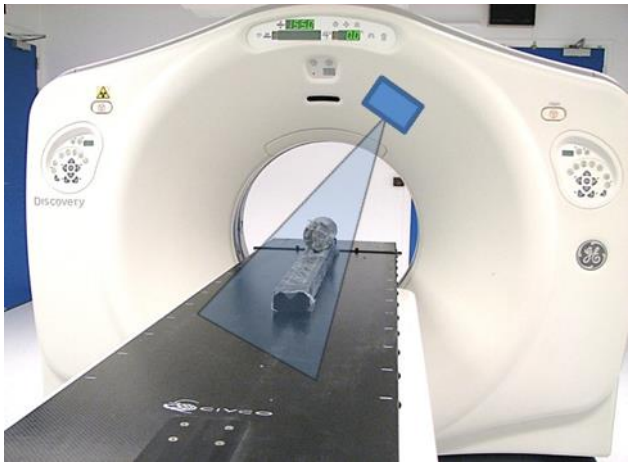


Figure 24 : Photo du scanner à tomographie X de l'IFPEN.

Les images acquises sont représentées en niveaux de gris qui varient selon le numéro atomique moyen et la densité locale de l'élément de volume sondé. Les intensités élevées (niveau blanc sur l'image) indiquent une forte absorption et donc un numéro atomique élevé.

Les coefficients d'atténuations linéaire des rayons X sont mesurées sur les scanner médicaux au moyen d'un nombre de CT exprimé en unités Hounsfield HU (en référence au Physicien Godfrey Hounsfield [91]) pour chaque voxel :

$$CT(x,y,z) = 1000\left(\frac{\mu_m(x,y,z)}{\mu_{m,e}} - 1\right) \qquad \text{(II.4)}$$

Où $\mu_m(x,y,z)$ est le coefficient d'atténuation linéaire mesuré au niveau du voxel à la position (x,y,z) et $\mu_{m,e}$ le coefficient d'atténuation linéaire de l'eau considérée comme référence. Ainsi $CT = 0$ pour l'eau et $CT = -1000$ pour le gaz ($\mu_{m,g} = 0$).

La reconstruction de l'image CT d'une carotte se fait tranche par tranche (cf. Figure 25). On obtient ainsi pour chaque acquisition, une série d'images indexées par la position de la tranche et on extrait automatiquement le niveau de gris moyen dans la région d'intérêt qui caractérise le milieu poreux. L'écart type de répétabilité de la mesure d'un CT moyen par tranche est de $\pm$ 0.5 unité Hounsfield (HU).

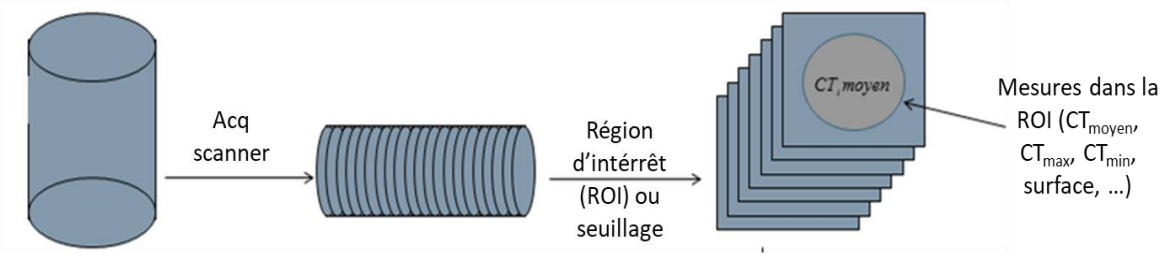


Figure 25 : Schéma décrivant la mesure de CT à l'aide du scanner X.

II. Matériels et expériences

Les systèmes étudiés (tensio-actifs, milieux poreux) et le protocole expérimental (en particulier la cellule d'écoulement) ne sont pas strictement identiques d'un équipement de caractérisation à l'autre (chacun ayant sa spécificité, et parfois des limitations). Dans cette section, les tensioactifs, le système poreux ainsi que le protocole expérimental utilisés spécifiquement dans le cadre de cette étude dite « macroscopique » sous scanner X seront présentés.

A. Caractérisation du système fluide-roche

1. Caractérisation de la solution de tensioactifs

a) Choix des tensioactifs

Les tensioactifs utilisés pour générer la mousse sont issus des formulations commerciales Rhodacal A246-L et Mackam LSB-50 développés par Solvay spécifiquement pour des applications de mousse en EOR [92, 93]. Le Rhodacal A246-L contient un tensioactif anionique, Alpha olefin sulfonate (AOS), tandis que le Mackam LSB-50 contient un tensioactif zwiterionique (ou amphotère), cocamido propyl hydroxysultaine (CAHS). Les structures des deux molécules sont représentées sur la Figure 26 et les principales caractéristiques physico-chimiques dans le Tableau 1 .

(1) (2)

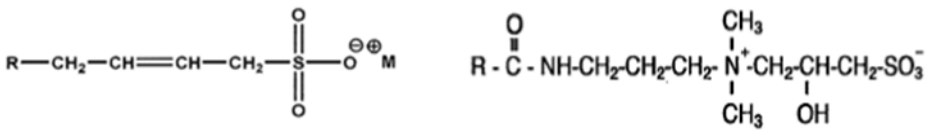


Figure 26 : Structure moléculaire des tensioactifs : (1) AOS (R = 14-16) et (2) CAHS (R = 12-16).

Nom commercial	Molécule active	Type	Forme physique	% molécule active	Solubilité dans l'eau (à 20°C)	Masse molaire (g/mol)
Rhodacal A246-L	AOS	Anionique	Liquide marron-jaune	40%	Soluble	[298-326, 5]
MackamLSB -50	CAHS	Amphotère	Liquide clair	40%	Soluble	[436-492]

Tableau 1 : Caractéristiques physico-chimiques de AOS et CAHS.

Les deux molécules sont solubles dans l'eau même à des concentrations élevées. L'AOS est largement utilisé dans la littérature dans le cadre de l'écoulement des mousses en milieux poreux [15, 59, 60, 94, 95]. Le choix d'un tensioactif anionique tel que l'AOS est attribué, entre autres, à sa faible adsorption sur les surfaces minérales chargées négativement. Le CAHS est utilisé comme co-tensioactif avec AOS. En effet, le CAHS de charge neutre s'intercale entre les molécules de AOS, ce qui permet de réduire la répulsion électrostatique entre les têtes polaires et améliorer la cohésion intermoléculaire. En l'absence de cations divalents, le meilleur rapport d'utilisation de l'AOS et CAHS est 50/50 en masse [92].

b) Mesures des tensions de surface et de la concentration micellaire critique

Nous avons utilisé la méthode de la lame de Wilhelmy [96] (cf. Figure 27.a) afin de mesurer la tension de surface de différentes formulations à différentes concentrations et à différentes salinités (concentrations en NaCl). Pour chaque salinité, Nous avons préparé une solution de base que nous avons diluée pour avoir une dizaine de points de concentrations différents. Chaque solution préparée a un volume de 50 mL. La manipulation des solutions se fait sans agitation afin d'éviter la création de bulles qui pourraient fausser les mesures.

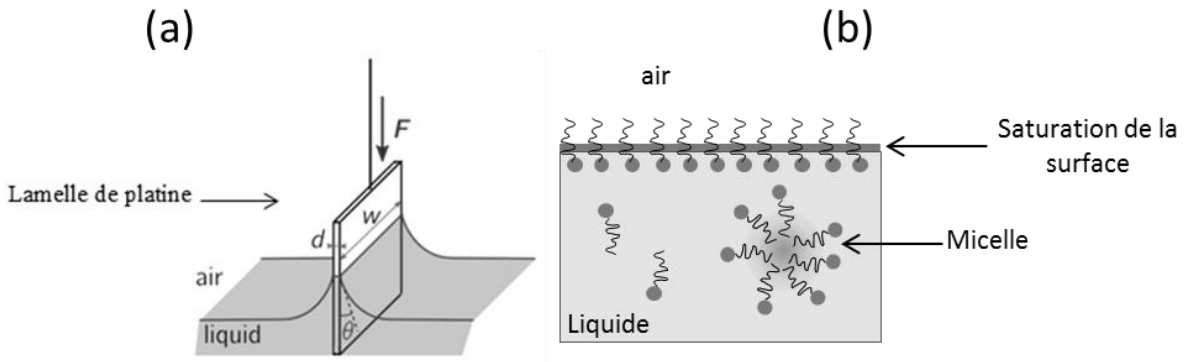


Figure 27 : (a) Méthode de Wilhelmy et (b) formation de micelle (un agrégat) en solution.

La mesure est réalisée à l'aide d'une machine KRUSS K100®. La tension de surface est obtenue par la formule suivante :

$$\sigma_{TA} = \frac{F}{(2w + 2d)cos(\theta_c)} \qquad \text{(II.5)}$$

Où F est la force capillaire exercée par le liquide sur la lame, w et d sont la largeur et l'épaisseur de la platine respectivement et θ_c l'angle de contact entre le liquide et la platine (nous avons pris dans notre cas, $cos(\theta_c) = 1$). La force F est mesurée à l'aide d'une microbalance sur laquelle on a posé la solution à analyser. Les paramètres de mesure sont saisis dans la machine qui calcule directement une valeur de tension de surface toutes les minutes. On effectue les mesures à température ambiante et on attend l'équilibre final jusqu'à ce que l'écart type sur les mesures de tensions de surface soit inférieur à 0.05 mN/m.

Les résultats sont représentés sur la Figure 28. On remarque une première phase où la tension de surface diminue en fonction de la concentration de tensioactifs, puis une deuxième phase où elle se stabilise sous la forme d'un plateau. Cette dernière phase caractérise la formation de micelles en solution après saturation de la surface en tensioactifs comme illustré sur la Figure 27.b. L'intersection des droites entre ces deux phases (représenté schématiquement par les droites en noir sur la Figure 28) permet de calculer une concentration micellaire critique (CMC) pour chaque salinité, au-delà de laquelle la tension de surface ne baisse plus. L'ajout de CAHS permet de diminuer la CMC. Par exemple, on enregistre en l'absence de salinité, une CMC de 1.8 10^{-2} % en masse pour l'AOS et une CMC de 3.4 10^{-3} % en masse pour l'AOS + CAHS.

L'ajout de sel permet globalement de diminuer la tension de surface. Cette diminution est d'autant plus marquée lorsque le co-tensioactif est utilisé. L'utilisation de l'AOS avec le CAHS à une salinité de 4% en masse nous permet d'obtenir les tensions de surface les plus faibles. Nous avons alors choisi de travailler avec cette formulation à une concentration de 0.1% en masse qui correspond à une concentration cent fois supérieure à la CMC (cf. Tableau 2).

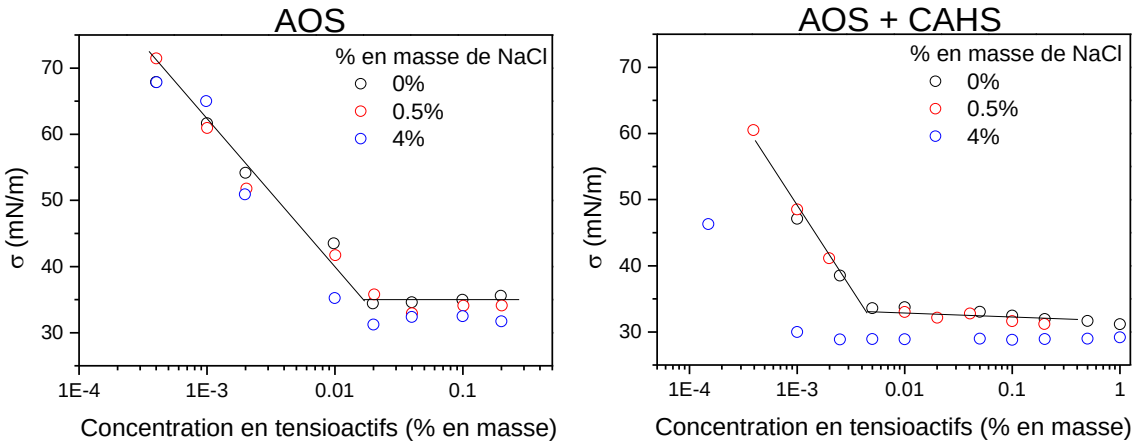


Figure 28 : Tension de surface en fonction de la concentration en tensioactifs à différentes salinités.

Formulation	Concentration en tensioactifs (% en masse)	C/CMC	Salinité (% en masse de NaCl)	Tension de surface (mN/m)	Utilisation dans la thèse
AOS+CAHS	0.1%	100	4%	28.8	Chapitre 2

Tableau 2 : Formulation utilisée pour les écoulements de mousse en milieu poreux sous observation en tomographie X Scanner.

2. Description de la roche de Bentheimer

Dans cette étude nous avons choisi un grès de bentheimer comme milieu poreux. Ce grès est souvent choisi dans les études pétro-physiques pour son homogénéité à petite et grande échelle. Il est majoritairement formé de quartz (> 95%), et d'un peu d'argile (environ 3%). Les grains de quartz sont homogènes en taille (environ 200 µm) et les valeurs de porosités et de perméabilités sont constantes, ce qui le rend adapté pour des études standards en laboratoire. La carotte de roche utilisée fait 4.95 cm de longueur et 2 cm de diamètre. Une telle taille de carotte de roche reste relativement petite par rapport aux carottes de roches utilisées dans les études pétro-physiques standards. Néanmoins le choix de cette taille permet de faciliter les manipulations et d'effectuer un grand nombre d'expériences sous scanner X.

a) Mesure de la porosité

La porosité est un paramètre pétro-physique statique qui désigne le rapport du volume poreux V_p sur le volume total V_t selon l'équation suivante :

$$\Phi = \frac{V_p}{V_t} \tag{II.6}$$

Où $V_t = V_p + V_s$ et V_s le volume du solide.

Il existe différentes techniques pour la mesurer. Nous avons utilisé la mesure de la porosité par pesée pour la mesure globale moyenne, la mesure par scanner X pour la porosité locale qui permet de déceler l'existence potentielle d'hétérogénéités et la mesure par intrusion de mercure sur des échantillons différents du même bloc de roche. Cette dernière mesure est utile pour avoir une courbe de pression capillaire de référence.

(i) Mesure de la porosité par pesée

La porosité globale moyenne de la carotte de roche Φ est mesurée à l'aide de la pesée. La carotte de roche est d'abord séchée, après carottage, pendant 48 h dans une étuve à 60°C. On mesure avec une balance de précision la masse de la carotte sèche (m_{sec}). Ensuite on sature la carotte avec la même saumure (4% en masse) qui sera utilisée pour les expériences d'injection puis on pèse la carotte saturée (m_{sat}). La porosité moyenne est enfin calculée par la formule suivante :

$$\Phi = \frac{m_{sat} - m_{sec}}{\rho_e} \frac{4}{\pi D^2 L^2} \tag{II.7}$$

Où ρ_e est la densité de la saumure (1.025 g/cm^3) et D (2 cm) et L (4.95 cm) sont le diamètre et la longueur de la carotte respectivement. Dans notre cas, on trouve une porosité moyenne de 24.45%.

(ii) Profil de porosité par tomographie X

Des images tomographiques à l'aide du scanner ont été réalisées sur la carotte sèche (cf. Figure 29). La porosité est déduite directement d'une corrélation linéaire entre la porosité et le nombre de CT. La droite de régression a été établie au préalable sur des milieux poreux

de référence de même composition (grès), de porosité connue et analysés dans les mêmes conditions opératoires.

La Figure 29 montre que la porosité ne change que très peu le long de l'axe z. En effet l'écart-type sur la porosité longitudinale (selon l'axe z) vaut 0.1%. De ces mesures nous obtenons une porosité moyenne globale de 24.7% très proche de la porosité mesurée par pesée.

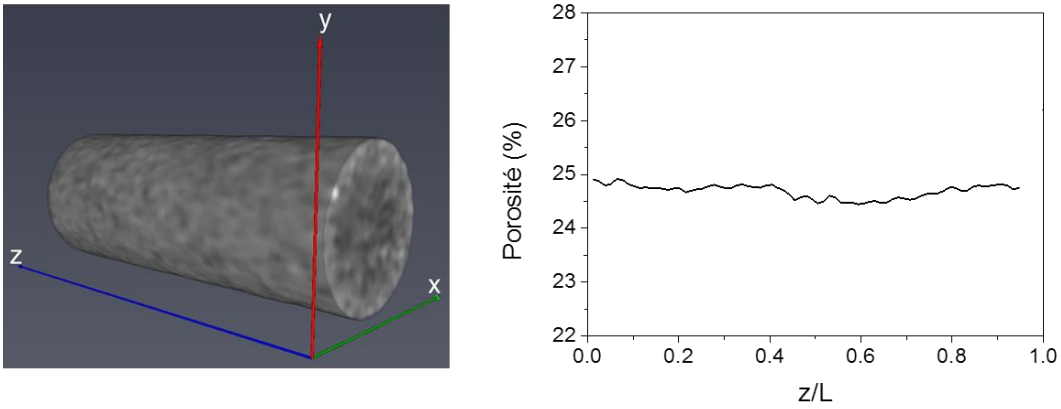


Figure 29 : Image de la carotte de bentheimer (taille de voxel = 117µm, 117µm, 625µm) (à gauche) et profil de porosité le long de l'axe z (à droite).

(iii) Porosimétrie par intrusion de mercure

La porosimétrie par injection de mercure exploite le caractère non mouillant du mercure, associé à sa forte tension superficielle. Le caractère non-mouillant du mercure vis-à-vis du solide rend nécessaire l'application d'une pression pour forcer le mercure à rentrer dans les pores du solide. Pour une pression d'injection donnée, seule la fraction des pores dont le diamètre est supérieur à une taille critique donnée par la loi de Laplace sera envahie par le mercure. En milieux poreux, la pression qu'il faut appliquer pour franchir un seuil de pore, appelée pression capillaire (cf. Annexe C) est exprimée en fonction de l'angle de contact θ_c, de la tension de surface σ_{Hg} et du rayon d'accès au pore r_c (rayon de seuil de pore) à l'aide de l'équation de Laplace :

$$P_{c_{Hg}} = \left| \frac{2\sigma_{Hg} cos(\theta_c)}{r_c} \right| \qquad \text{(II.8)}$$

Dans le cas du mercure, $\theta_c = 140°$ et $\sigma_{Hg} = 485\ mN/m$.

Connaissant la pression d'injection et le volume injecté, on peut accéder à la taille des seuils de pore et à la courbe pression capillaire air/ Hg en fonction de l'état de saturation de la carotte. Pour cela, la carotte sèche est d'abord plongée dans un bain de mercure, ensuite des paliers de pression sont appliqués, ainsi on peut associer pour chaque palier une gamme de seuils de pore envahis et obtenir une distribution en taille des seuils de pores. Afin de déterminer la courbe de pression capillaire air/ solution de tensioactifs en fonction de la saturation, on utilise la valeur de tension de surface mesurée pour notre solution de tensioactifs ($\sigma_{TA} = 28.8\, mN/m$) et on considère que la roche est parfaitement mouillable à cette solution aqueuse ($cos(\theta_c) = 1$).

Ainsi, en utilisant la relation (II.8), la pression capillaire P_c peut être déduite par la formule suivante :

$$P_c(S_l) = \frac{\sigma_{TA}}{\sigma_{Hg} cos(\theta_c)}\, P_{c_{Hg}}(S_l) \qquad \text{(II.9)}$$

La porosimétrie au mercure est une méthode destructive, donc nous avons réalisé les mesures sur deux échantillons frères carottés dans le même bloc de roche de Bentheimer. Les deux échantillons donnent les mêmes résultats (cf. Figure 30), ce qui démontre l'homogénéité de ce type de roche à grande échelle. On remarque qu'il existe un seul pic de distribution des seuils de pores correspondant à un rayon de seuils (ou rayon d'accès au pore) d'environ 17 µm.

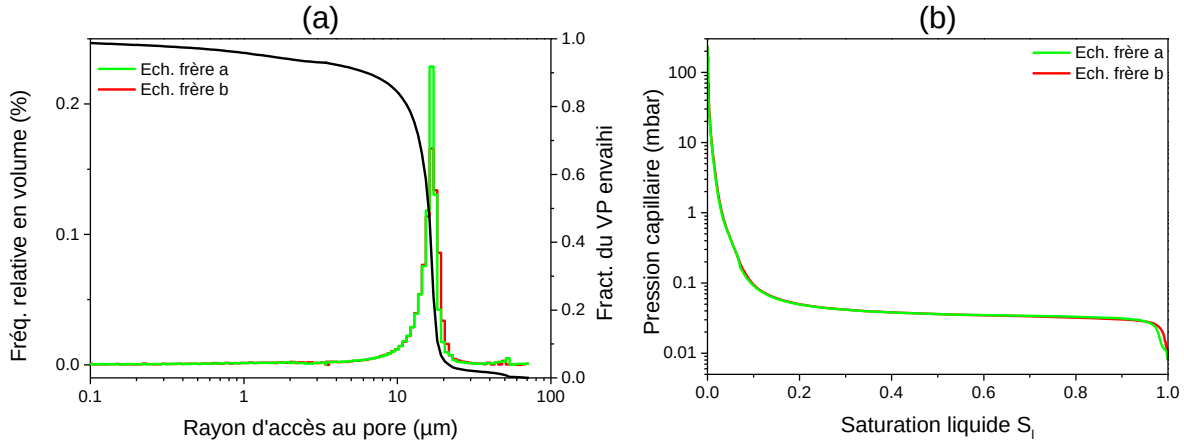


Figure 30 : Porosimétrie par intrusion de mercure : (a) Distribution des tailles de seuils de pore et (b) évolution de la pression capillaire en fonction de la saturation liquide dans le cas de la formulation de tensioactifs utilisée.

b) Mesure de la perméabilité absolue

La perméabilité absolue est mesurée avant chaque expérience d'injection de mousse. Après saturation de la carotte avec la solution de saumure, on fait varier le débit par palier de manière linéaire et séquentielle et on attend la stabilisation de la différence de pression enregistrée (différence entre la pression en amont et la pression en aval de la carotte). Les débits choisis varient généralement entre 10 et 200 mL/h. On utilise la loi de Darcy monophasique (cf. Annexe A) pour déterminer la perméabilité absolue de la roche, en utilisant la formule suivante :

$$K(mDarcy) = 281.4\ \frac{\mu_e(cP)L(cm)}{S\ (cm^2)}\ \alpha(cm^3.h^{-1}.mbar^{-1}) \qquad \text{(II.10)}$$

Où μ_e est la viscosité de la saumure utilisée, L la longueur de la carotte, S sa section et α le rapport entre les débits injectés et les gradients de pressions enregistrés. Un exemple de variation du gradient de pression stabilisé en fonction du débit est donné en Figure 31. Les mesures de perméabilité répétées pour l'ensemble des expériences réalisées donnent une perméabilité moyenne de 2.17 ± 0.17 Darcy.

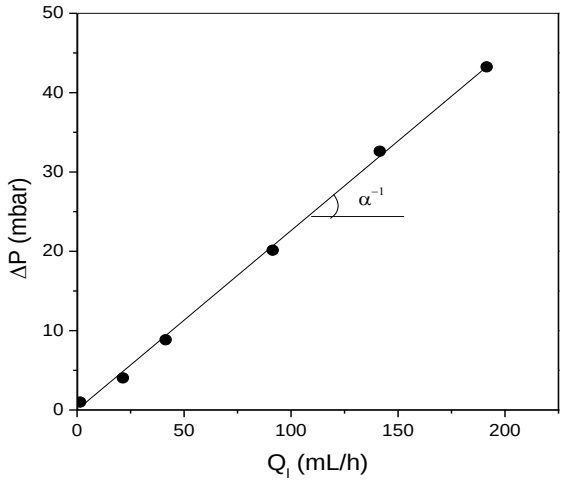


Figure 31 : Différence de pression ΔP en fonction du débit liquide Q_l injecté.

B. Développement d'un montage d'injection de fluides dans les milieux poreux

1. Caractéristiques de l'environnement expérimental

Le montage expérimental qui permet l'injection des fluides (solutions liquides et gaz) et les mesures de pression a été conçu pour permettre l'injection contrôlée de mousses dans les milieux poreux tout en effectuant les mesures sous différents instruments : à l'IFP Énergies Nouvelles sur Scanner X et à l'extérieur sur grands instruments (Micro-tomographie X haute résolution, Diffusion des neutrons aux petits angles). Le montage a été conçu et réfléchi pour être facilement manipulable et transportable d'un site à l'autre.

La cellule dans laquelle est réalisé l'écoulement de mousse est spécifique à chaque instrument. Dans ce chapitre nous décrivons le montage d'injection commun à toutes les expériences sous grands instruments (sous scanner X et sous grands instruments) et la cellule utilisée dans cette étude (sous scanner X).

Le montage consiste en un système de pompes qui permettent l'injection des liquides. Une pompe Vindum (VP-12K) est utilisée pour injecter les solutions de tensioactifs tandis qu'une pompe Pharmacia permet d'injecter les saumures (solutions de NaCl). Le gaz utilisé ici est l'azote N_2 d'une qualité standard. On utilise deux types de débitmètre massique Brooks, calibrés pour travailler avec de l'azote et étalonnés pour travailler jusqu'à une pression de 30 bars. Ces débits-mètres sont caractérisés par leur gamme de travail dans les

conditions normales de température et de pression, 0°C et 1 bar respectivement. Le modèle SLA5850S est choisi pour la gamme 0-180 NmL/h tandis que le modèle 5850 E est choisi pour la gamme 0-3 NL/h. La manière d'utiliser ces débitmètres et le détail du calcul de conversion des débits volumiques en fonction de la pression et de la température sont précisés en Annexe D.

Pour réaliser des mesures de pression, quatre capteurs Keller sont utilisés : trois capteurs absolus (Modèle PA-33X) et un différentiel (Modèle PD-39X). Les capteurs fonctionnent dans une gamme entre 0 et 30 bars et offrent une grande stabilité d'affichage de 1 mbar. Un programme développé à l'aide du logiciel Labview est utilisé pour lire et enregistrer les mesures en temps réel.

La majeure partie des tuyaux utilisés sont transparents, ce qui permet d'avoir un visuel sur les fluides en écoulement. En contrepartie, nous nous retrouvons limités en termes de pressions de travail à 30 bars maximum. Les tuyaux sont faits en éthylène propylène fluoré (FEP) et ont un diamètre interne de 1.6 mm. Les connecteurs quant à eux sont en PolyEther Ether Ketone (PEEK).

La régulation de pression au niveau du milieu poreux qu'on nomme aussi la pression de pore se fait à l'aide d'un régulateur de pression ou « BPR » pour *Back Pressure Regulator* (Modèle Brooks SLA5820B) qui se trouve en aval de la cellule. La mise en place d'une contrepression, permet de rehausser la ligne de base de la pression. Ainsi on peut travailler avec des pressions nominales de 5 ou 10 bars par exemple, ce qui donne l'avantage de pouvoir travailler avec des débits d'injections de gaz faibles, et améliorer la précision sur les débits de gaz injectés. De plus, la contrepression permet d'éviter une grande différence de pression entre l'amont et l'aval de la cellule. Un dernier avantage de l'utilisation d'une contrepression est de pouvoir maitriser les reflux des fluides (surtout le gaz) dans le milieu poreux lorsqu'on veut saturer ce dernier en saumure par exemple.

Un système de deux bouteilles tampon de 1 L chacune, positionnées ente la cellule et le régulateur de pression sont remplies d'eau milli-Q. Ceci permet au gaz de la mousse de se séparer du liquide afin que le régulateur de pression (BPR) régule uniquement sur une phase homogène liquide, ce qui améliore la stabilité de la pression de pore.

Les débitmètres massiques et le régulateur de pression sont connectés à un boitier de commande Brooks Microprocessor Control & read out unit (model 0152) (non représenté sur la Figure 32), qui permet de changer les valeurs d'entrée en débits de gaz et la pression de pore.

Pour assurer la sécurité du montage, nous avons mis en place une soupape de sécurité tarée à 32 bars et connectée à la ligne de confinement (non représentée sur la Figure 32).

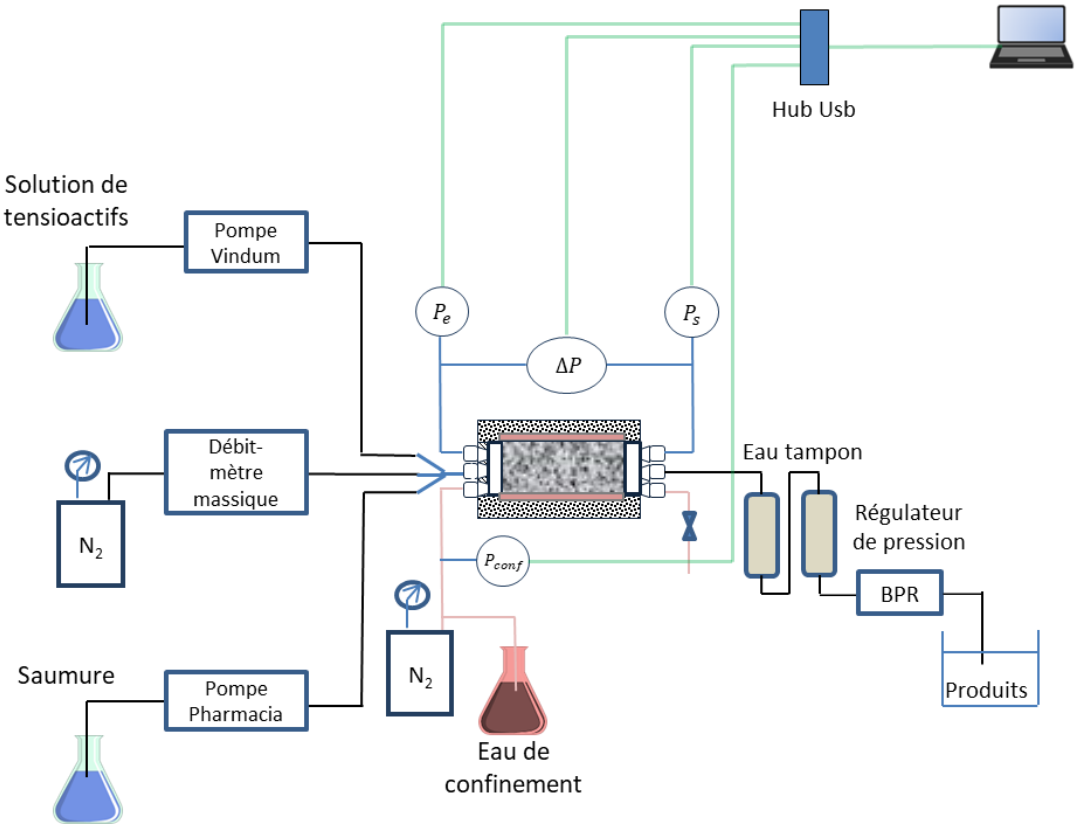


Figure 32 : Schéma du montage expérimental pour les expériences d'écoulement au Scanner à tomographie X.

– **Cellule d'écoulement sous scanner X**

La cellule est une cellule de type « Hassler » faite d'un corps en aluminium avec des embouts en PEEK (cf. Figure 33). La cellule possède une gaine fluorocarbonée (élastomère) très peu absorbante pour les rayons X. Entre la gaine et le corps de la cellule, il existe un compartiment de fluide de confinement d'un volume d'environ 1 mL, que l'on remplit par injection d'eau milli-Q (cf. ligne rouge sur la Figure 32). La cellule est orientée horizontalement sur le scanner X. Le compartiment où se loge la carotte de roche fait 20 mm en diamètre et 50 mm en longueur.

On utilise un connecteur à 3 broches pour l'injection du gaz, de la solution de tensioactifs et de la solution de saumure. Des clapets anti-retour et des vannes placés en amont de chaque port de ce connecteur permettent d'éviter les reflux des fluides d'une partie des tuyaux vers une autre et de contrôler les fluides à injecter.

Figure 33 : Cellule d'écoulement sous scanner X.

2. Protocole d'injection des fluides et d'acquisition des images

a) Préparation des solutions de saumure et de tensioactifs

La solution de tensioactifs est préparée en dissolvant ces derniers dans de l'eau non salée avant d'être mélangés, à part égale avec une saumure doublement concentrée en sels. Après mélange et sous agitation pendant une heure, la solution est laissée une nuit à l'étuve à 60°C.

La solution de saumure est faite avec la même concentration en sel, i.e. 4% en masse. Il s'agit d'une concentration en sel proche de celle de l'eau de mer. Contrairement à la solution de tensioactifs qui pourrait mousser, cette solution est dégazée en tirant sous vide poussé et sous agitation magnétique pendant deux heures. A la fin, on connecte la bouteille contenant la solution de saumure à une poche remplie d'argon. Le dégazage nous permet d'éviter l'apparition de bulles pendant les mesures de perméabilité et pendant les acquisitions d'images de référence.

b) Mise en écoulement et acquisition sous Scanner

La mise en condition expérimentale est représentée sur la Figure 34. La cellule contenant la carotte sèche est posée sur le lit du scanner. Une flèche est tracée sur la génératrice de la roche et de la cellule à la première utilisation. Ceci permet d'éviter de

chercher le sens et l'angle de rotation de la carotte autour de son axe lors des traitements d'images. Les connecteurs et les tuyaux sont ensuite raccordés puis de l'eau milli-Q est injectée dans l'espace annulaire entre la gaine et la carotte. Enfin, une pression de confinement proche de 30 bars avec du gaz est appliquée. La mise sous confinement est importante pour forcer les fluides à rentrer dans la carotte de roche et les empêcher de fuir sur les bords. La pression de confinement doit toujours être supérieure aux pressions mesurées lors de l'écoulement. Dans le Tableau 3 ci-dessous, nous présentons les opérations de base pour une expérience d'injection de mousse sous scanner X :

Numéro d'étape	**Actions**
1	Préparation et dégazage de la saumure
2	Préparation de la formulation de tensioactifs
3	Remplissage des bouteilles tampon avec de l'eau milli-Q
4	Mise en place de la carotte sèche dans la gaine puis dans la cellule
5	Mise en place des tubings et raccords selon schéma
6	Connexion de la cellule au reste du montage. Positionnement sur le lit du scanner (dans le cas de la tomographie X) et centrage.
7	Mise en place du liquide de confinement puis du gaz pour le maintien de la pression de confinement
8	Acquisition du signal de référence CT_{air} sur carotte sèche
9	Saturation des tuyaux d'entrée, sans injection dans la carotte (Éliminer les volumes morts)
10	Saturation des capteurs en utilisant le by-pass
11	Injection de la saumure et saturation de la carotte en saumure
12	Réglage de la contrepression à 10 bars
13	Mesures de perméabilité en faisant varier le débit d'injection
14	Acquisition du signal de référence CT_{sat} sur carotte saturée à 100% en saumure
(15)	Co-injection du gaz et de la saumure sans tensioactif (dans le cas de l'étude d'une co-injection gaz-saumure)
16	Co-injection du gaz et de la formulation de tensioactif pour générer la mousse, puis acquisition continue de CT, et pour chaque f_g choisi (Q_g, Q_l)
17	Re-saturation de la carotte en saumure et séchage si arrêt expériences

Tableau 3 : Protocole opératoire de base pour la manipulation des écoulements sous scanner X.

On réalise l'acquisition d'une image de la carotte sèche ($CT_{air}^{m} = 1245$ en moyenne) puis de la carotte après saturation en saumure ($CT_{sat}^{m} = 1487$ en moyenne). Ensuite on procède soit à la co-injection de la solution de tensioactifs et du gaz à des débits fixés dans le cas de l'injection d'une mousse, soit à la co-injection du gaz et de la saumure pour analyser le

cas d'un écoulement diphasique gaz-eau. Les saturations en gaz S_g^i et en eau S_l^i qui correspondent aux fractions volumiques de gaz et de liquide dans le volume poreux sont déterminées par les mesures de CT effectuées sur chaque tranche i de la carotte de roche, par les équations suivantes :

$$S_g^i = \frac{CT_{sat}^i - CT^i}{CT_{sat}^i - CT_{air}^i} \quad \text{(II.11)}$$

$$S_l^i = 1 - S_g^i \quad \text{(II.12)}$$

Où CT_{sat}^i, CT_{air}^i et CT^i correspondent aux valeurs moyennes de CT sur la tranche i à l'état de référence saturée en saumure, à l'état de référence sec et à un état de saturation intermédiaire respectivement.

Après chaque acquisition, on obtient une pile d'images espacées de 1.25 mm selon l'axe z avec une taille de pixel de (117 µm, 117 µm) dans le plan (x, y). Le Tableau 4, ci-dessous, résume les paramètres du scanner utilisés lors de ces expériences.

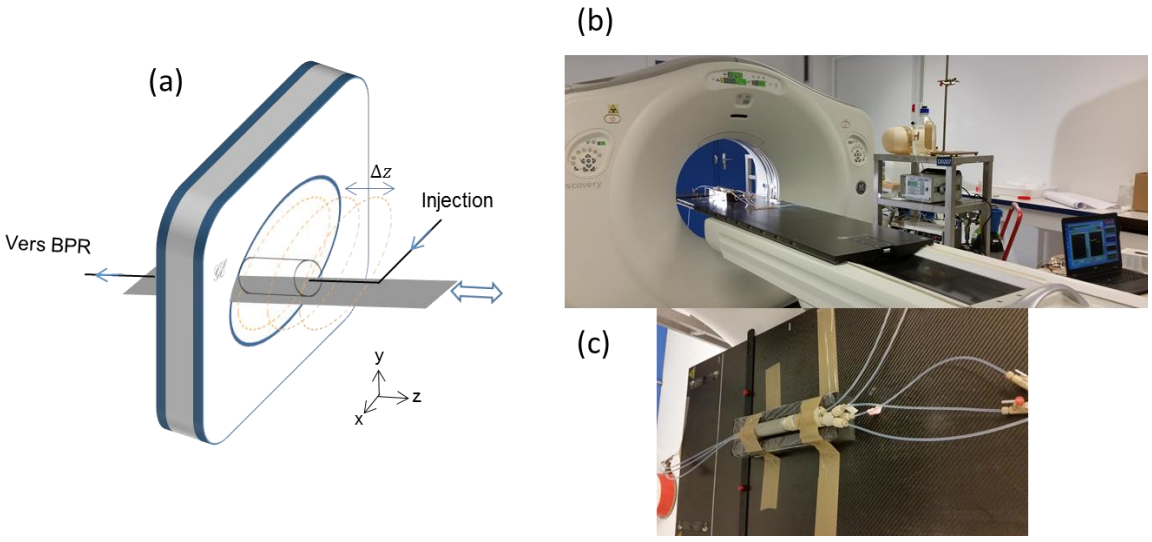


Figure 34 : (a) Schéma de la carotte avec les acquisitions sous scanner. (b) Photo du montage expérimental. (c) Photo de la cellule fixée sur le lit du scanner.

Paramètre	Quantité
Tension du tube	140 kV
Courant du tube	250 mA
Distance entre 2 images (Δz)	1.25 mm
Temps d'une tomographie	5.36 s
Nombre d'images par tomographie	41
Champ de vue	6 cm
Taille du voxel (x,y,z)	(117 µm, 117 µm, 1.25 mm)

Tableau 4 : Principaux paramètres d'acquisition avec le scanner à tomographie X.

Les images sous format DICOM sont traitées à l'aide d'une macro développée dans le logiciel *ImageJ* pour extraire les données CT^i sur chaque tranche d'image, ce qui nous permet ensuite de réaliser les calculs des saturations à l'aide des équations (II.10) et (II.11).

c) Calcul d'incertitudes sur les saturations

La saturation de gaz S_g dépend de trois mesures: CT_{sat}, CT_{air} et CT. Il est alors possible d'estimer une erreur absolue sur les valeurs mesurées de S_g en tenant compte de la précision de mesure du scanner. L'erreur absolue dS_g^2 s'écrit :

$$dS_g^2 = [\frac{\delta S_g}{\delta CT} dCT]^2 + [\frac{\delta S_g}{\delta CT_{air}} dCT_{air}]^2 + [\frac{\delta S_g}{\delta CT_{sat}} dCT_{sat}]^2 \quad \text{(II.13)}$$

Par ailleurs, les différentielles de la saturation de gaz par rapport aux CT : $\frac{\delta S_g}{\delta CT}$, $\frac{\delta S_g}{\delta CT_{air}}$ et $\frac{\delta S_g}{\delta CT_{sat}}$ peuvent être calculées par les équations suivantes :

$$\frac{\delta S_g}{\delta CT} = \frac{CT_{air} - CT_{sat}}{(CT_{air} - CT_{sat})^2} \quad \text{(II.14)}$$

$$\frac{\delta S_g}{\delta CT_{sat}} = \frac{CT - CT_{air}}{(CT_{air} - CT_{sat})^2} \quad \text{(II.15)}$$

$$\frac{\delta S_g}{\delta CT_{air}} = \frac{CT_{sat} - CT}{(CT_{air} - CT_{sat})^2} \quad \text{(II.16)}$$

Un exemple de calcul d'incertitudes sur les saturations de gaz est illustré dans le tableau ci-dessous. Pour illustrer ce calcul d'incertitudes, nous avons utilisé différentes valeurs issues des expériences réalisées avec l'injection de mousse dans le milieu poreux. Nous remarquons que l'erreur absolue totale dS_g se situe à peu près à 0.5% et reste constante. On remarque aussi que $\frac{\delta S_g}{\delta CT}$ ne change pas en fonction de S_g. En revanche, les erreurs absolues dues aux valeurs mesurées de CT_{air} et CT_{sat} augmentent en fonction des valeurs de S_g. L'erreur relative $\frac{dS_g}{S_g}$ quant à elle se situe entre 0.6 et 0.9 %.

S_g	CT_{air}	CT_{sat}	CT	$\frac{\delta S_g}{\delta CT_{air}}$	$\frac{\delta S_g}{\delta CT_{sat}}$	$\frac{\delta S_g}{\delta CT}$	dS_g (%)	$\frac{dS_g}{S_g}$ (%)
0.722	1245	1491	1313	0.0029	0.0011	0.0041	0.51	0.71
0.803	1245	1491	1293	0.0033	0.0008	0.0041	0.53	0.66
0.694	1243	1485	1317	0.0029	0.0013	0.0041	0.52	0.75
0.767	1243	1486	1300	0.0032	0.0010	0.0041	0.53	0.69
0.548	1245	1491	1356	0.0022	0.0018	0.0041	0.50	0.91

Tableau 5 : Calcul de l'erreur absolue et relative de la saturation de gaz S_g.

C. Expériences d'écoulement de mousses sous Scanner X

Une expérience consiste à co-injecter du gaz N_2 et la solution de tensioactifs à un débit total Q_t fixe et à différentes qualités de mousse f_g successives (de 0.5 à 0.9). La qualité de mousse f_g est changée à chaque fois que l'état stationnaire est atteint pour la qualité de mousse précédente. Les débits de gaz et de liquide ne sont contrôlés qu'à l'entrée du milieu poreux. On utilise la pression enregistrée en amont de la cellule pour calculer le débit volumique de gaz ciblé correspondant à une qualité de mousse voulue. A cause des effets de compressibilité, le débit volumique de gaz change avec la pression, mais la qualité de mousse peut être calculée à tout moment en entrée du milieu poreux, en calculant le débit volumique de gaz correspondant. Une augmentation de la pression observée lors de l'écoulement, induit une diminution du débit volumique de gaz, ce qui se traduit par une diminution de la qualité de mousse, car f_g peut être aussi écrite en fonction du débit de gaz de la manière suivante :

$$f_g = \frac{1}{1 + (\frac{Q_l}{Q_g})} \qquad \text{(II.17)}$$

Par ailleurs, il est possible d'estimer une qualité de mousse en sortie en faisant l'hypothèse de l'application de la loi de Boyle-Mariotte entre l'entrée et la sortie du milieu poreux (la validation de cette hypothèse est détaillée en Annexe E). Le débit volumique de gaz en sortie est finalement déterminé par l'équation suivante :

$$Q_{g_{av}} = Q_{g_{am}} \frac{P_{am}}{P_{av}} \tag{II.18}$$

Où $Q_{g_{am}}$et $Q_{g_{av}}$ correspondent aux débits de gaz en amont et en aval respectivement, et P_{am} et P_{av} correspondent aux pressions amont et aval du milieu poreux respectivement.

On prend en compte les effets de pression en recalculant la qualité de mousse moyenne à un instant donné en considérant le débit de gaz moyen entre l'entrée et la sortie du milieu poreux. Ceci permet d'estimer une qualité de mousse moyenne sur l'ensemble de la carotte à un instant donné. Ainsi, pour éviter toute confusion, on utilisera dans ce manuscrit la qualité de mousse injectée au départ lorsqu'on parle de f_g, et on le dissociera de la qualité de mousse à un état donné (typiquement l'état stationnaire[2]) qui sera utilisée notamment pour les calculs de viscosité apparente.

Un ensemble d'expériences a été réalisé à différents débits totaux, compris entre 4.9 mL/h et 75.7 mL/h (i.e. des vitesses interstitielles totales entre 17.5 µm/s et 271 µm/s). Chaque expérience consiste en une série d'injections à des débits de liquide et de gaz fixes tout en augmentant la qualité de mousse de manière successive. Le Tableau 6 résume les différents paramètres d'expérience. Pour les expériences N° 2 et 3, la qualité de mousse a été diminuée après avoir atteint la qualité de mousse la plus grande à 0.9, pour investiguer sur d'éventuels effets d'hystérésis [97]. Les expériences de 1 à 3 consistaient en une injection de mousse après un état de carotte saturée en saumure, tandis que pour les expériences de 4 à 7, la mousse a été injectée après une co-injection gaz-saumure.

[2] La qualité de mousse à l'état stationnaire est calculée à partir du débit de gaz moyen entre l'amont et l'aval du milieu poreux avec les pressions enregistrés en amont et en aval pendant cet état.

Numéro d'expérience	Q_t **(mL/h)**	Q_g **(mL/h)**	Q_l **(mL/h)**	f_g **injectée**	V_{int_t} **(µm/s)**
1	4.9	2.4	2.4	0.50	17.5
	4.9	2.0	2.9	0.60	17.5
	4.9	1.5	3.4	0.70	17.5
	4.9	1.0	3.9	0.80	17.5
	4.9	0.5	4.4	0.90	17.5
2	9.8	4.9	4.9	0.50	35.1
	9.8	5.9	3.9	0.60	35.1
	9.8	6.8	2.9	0.70	35.1
	9.8	7.8	2.0	0.80	35.1
	9.8	8.8	1.0	0.90	35.1
	9.8	6.8	2.9	0.70	35.1
	9.8	4.9	4.9	0.50	35.1
3	14.6	7.3	7.3	0.50	52.3
	14.6	8.9	5.9	0.60	52.3
	14.6	10.2	4.4	0.70	52.3
	14.6	11.7	2.9	0.80	52.3
	14.6	13.2	1.5	0.90	52.3
	14.6	10.3	4.4	0.70	52.3
	14.6	7.3	7.3	0.50	52.3
4	75.3	30.1	45.2	0.40	269.5
5	75.2	45.2	30.0	0.60	269.2
6	75.7	52.7	23.0	0.70	271.0
7	74.8	67.8	7.0	0.91	267.8

Tableau 6 : Paramètres d'expériences pour la co-injection du gaz et de la solution de tensioactifs.

III. Caractérisation macroscopique de la mousse en écoulement

Dans cette section, nous présentons les résultats de la série d'expériences décrites précédemment. En premier lieu, nous visualiserons les écoulements d'une co-injection du gaz et de la saumure sans tensioactifs. Ceci permettra de comparer par la suite avec les écoulements de mousse en milieu poreux. Nous décrirons ensuite la dynamique de formation de la mousse pendant les premiers instants de son injection dans la carotte, puis nous présenterons les principaux résultats concernant la rhéologie de la mousse à l'état stationnaire. Enfin, nous discuterons les phénomènes de coalescence en lien avec les pressions capillaires limites estimées pour ce système roche-fluides.

A. Écoulement diphasique gaz-saumure

Un écoulement diphasique gaz-saumure a été réalisé dans les mêmes conditions que les expériences d'injection de mousses, i.e. aux mêmes débits de gaz et de liquide. Pendant ces expériences, on co-injecte le gaz et la solution de saumure à 4% en masse en NaCl au lieu de la solution de tensioactifs. Les images acquises au Scanner X pendant ces expériences sont illustrées sur la Figure 35. Les coupes représentées sur cette figure sont les images sagittales (i.e. le plan médian de la coupe centrale) qui donnent une représentation complète des phénomènes d'écoulement (sur lesquels on peut notamment détecter les effets gravitaires). Nous considérerons cette représentation pour la suite. L'échelle de saturation de gaz est représentée en couleur en bas de la Figure 35. La couleur rouge correspond à une saturation de gaz élevée et la couleur bleu foncée correspond à une saturation de gaz nulle (100% liquide).

D'après les images de la Figure 35, la co-injection gaz-saumure dans un milieu initialement saturé en saumure (couleur bleue) montre que le gaz trouve des chemins préférentiels dans le milieu poreux et a tendance à migrer vers le haut par gravité. L'effet inverse est observé pour la phase liquide qui a tendance à se diriger vers le bas. En plus, sur ces mêmes images on peut remarquer des effets de rétention liquide importants au bout de la carotte. Ces phénomènes caractérisent les effets de capillarité à la sortie du milieu poreux qu'on nomme effets de rétention capillaire et qui sont souvent observés dans des expériences

de drainage d'un liquide par un gaz. Ils seront discutés en détails dans le cas des écoulements de mousse dans un milieu poreux (voir plus loin).

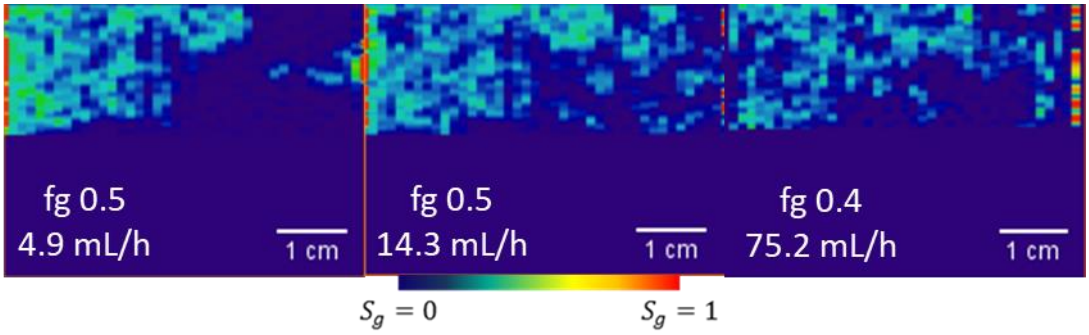


Figure 35 : Co-injection du gaz et la saumure à 4% en masse dans la carotte de Bentheimer.

Les valeurs de pressions relevées pendant ces expériences sont faibles et elles sont 40 à 80 fois moins élevées (cf. Figure 36.a) que les valeurs mesurées pendant l'écoulement de la mousse. Ici f_g représente le flux fractionnaire de gaz c'est-à-dire le débit de gaz rapporté au débit total injecté. En comparaison avec la mousse, f_g décrit le même rapport de débits et désigne la « qualité de mousse ». On garde la même notation pour la simplicité. Il est bon de noter que sauf pour l'expérience à grande vitesse (75.3 mL/h) où on observe une légère augmentation de ΔP, les valeurs des pressions sont quasi-constantes et restent proches des mesures de pression lors de l'injection d'une phase liquide homogène. La non-variation du différentiel de pression en fonction de f_g pour les différents débits totaux est dûe au fait qu'à partir d'un flux fractionnaire de 0.6, nous avons atteint une saturation liquide résiduelle fixe et que même si on augmentait le débit de gaz au-delà, on ne pourrait mobiliser que très peu de liquide car le gaz s'est frayé un chemin préférentiel dans le réseau poreux. Les saturations de gaz mesurées pendant ces expériences restent aussi plus faibles (cf. Figure 36.b), comprises entre 0 et 0.5, par rapport aux expériences d'injection de mousse, comme on va le voir par la suite.

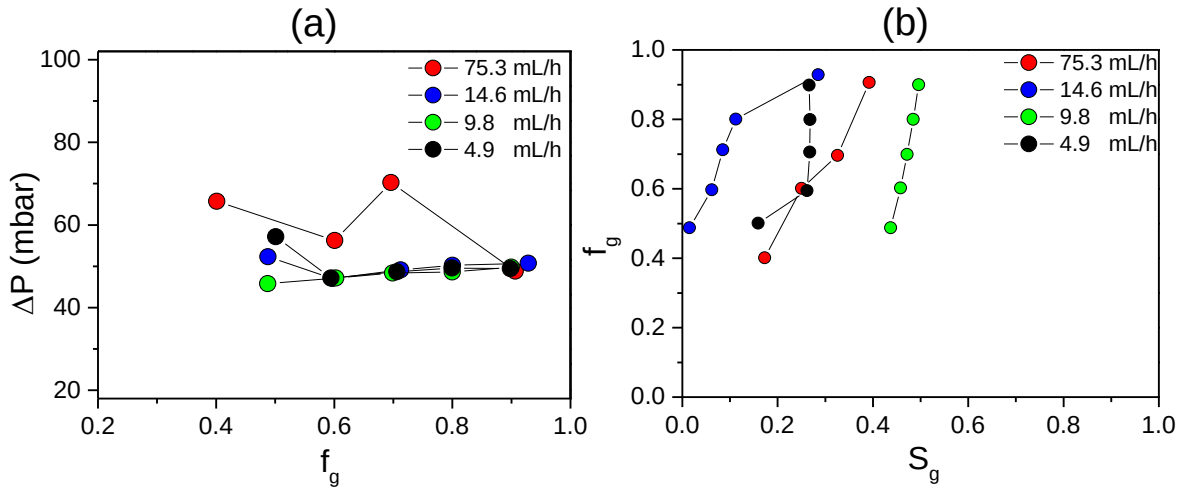


Figure 36 : (a) ΔP en fonction du rapport de débit de gaz par rapport au débit total (équivalent f_g) à différents débits totaux. (b) f_g en fonction de la saturation de gaz S_g.

B. Formation de la mousse

1. Etat transitoire

Sur la Figure 37, on illustre un exemple de co-injection du gaz et de la solution de tensioactifs, pour l'expérience N°3 à f_g 0.5. La carotte est initialement saturée en saumure (couleur bleue sur la figure). Dès que le gaz et la solution de tensioactifs sont co-injectés, il se forme un front net qui va pousser le liquide vers l'aval de la carotte à la manière d'un piston. Dans cet exemple, la qualité de la mousse injectée est de 0.5, ainsi on remarque qu'il faudrait 2 volumes de pore pour que la mousse puisse atteindre la sortie ($PV = \frac{Q_t t}{V_p}$ où V_p est le volume poreux et t le temps). La saturation moyenne en gaz sur l'ensemble de la carotte augmente significativement dès le démarrage de la co-injection. Cette augmentation s'accélère après l'injection d'environ 1 PV (cf. courbe rouge sur la Figure 38.a), c'est-à-dire lorsque le front est à mi-distance entre l'entrée et la sortie du milieu poreux. La pression reste aussi relativement faible durant ce premier volume de pore injecté, et commence à s'accroitre significativement après, en corrélation avec l'augmentation de la saturation en gaz de la dernière moitié avale de la carotte (cf. Figure 38.b). Une mousse est déjà formée pendant cette première étape et elle mobilise le liquide *in situ*. Ceci est révélé à la fois par la forme piston du front et par la mesure de ΔP (241 mbar en moyenne) qui vaut 74 fois la pression mesurée avec la saumure seule au même débit (3 mbar). Ces images et ces mesures renseignent sur les conditions favorables de déplacement de la phase liquide par la phase mousse pour dé-saturer

une bonne partie du liquide initialement en place. En effet, la mousse possède cette particularité de se déplacer à la manière d'un front net en mobilisant la phase liquide vers l'aval. Durant cette première phase, les forces visqueuses sont déjà suffisamment grandes pour créer des conditions de mobilité favorables, en évitant les effets gravitaires et de digitations visqueuses que présente le cas d'une co-injection gaz-saumure sans tensioactifs.

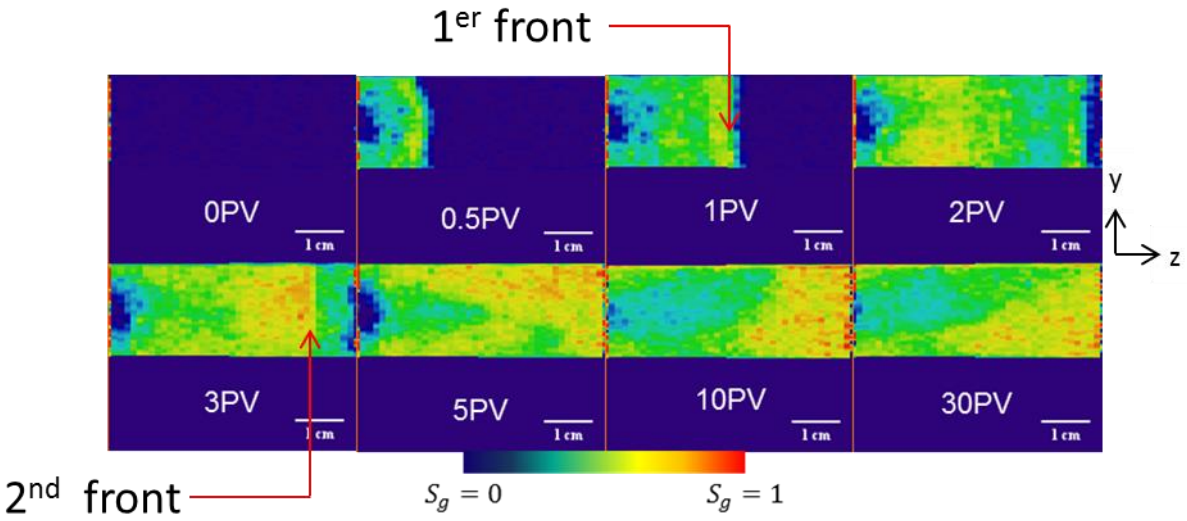


Figure 37 : Déplacement de la mousse (vert/jaune) dans une carotte de grès de Bentheimer, initialement saturée en saumure (phase bleue). Le tensioactif et l'azote sont directement co-injectés dans la carotte à Q_l= 7.3 mL/h et Q_g= 7.3 mL/h. Sens de l'injection de gauche à droite.

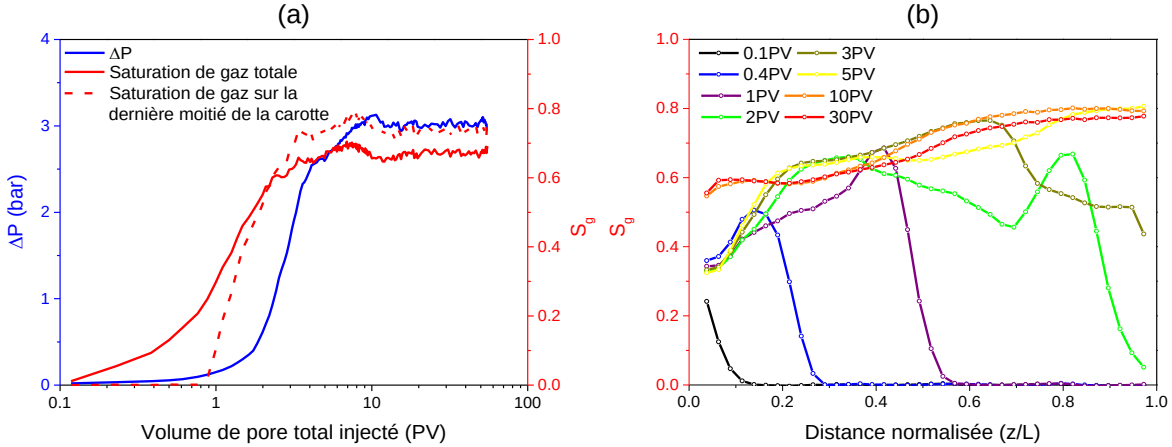


Figure 38 : Expérience 3 à f_g = 0.5 : évolution (a) de la pression ΔP et (b) de la saturation de gaz en fonction du volume de pore injecté.

2. Phase de formation de la « mousse forte »

La transition de la première phase transitoire caractérisant une mousse faible à une mousse forte arrive souvent au-delà de 2 PV d'injection. Ceci est illustré par la forte augmentation de ΔP représentée par la courbe bleue sur la Figure 39 pour les différentes expériences 2, 3 et 4. Le début de cette phase est marqué par les traits en pointillés noir sur la même figure. On observe une décélération de la saturation de gaz après le début de cette phase jusqu'à une stabilisation à l'état stationnaire. Cette phase de transition est caractérisée par l'apparition d'un second front qui balaye la carotte après que le premier front ait atteint la sortie (cf. Figure 37). Ce phénomène décrit un mécanisme de transition entre une phase initiale où une mousse grossière se propage à travers de larges pores, puis une désaturation liquide secondaire qui intervient pour forcer les bulles à entrer dans des pores de plus en plus petits qui contiendraient du liquide[54]. Selon certains auteurs [99], en l'absence de cette phase de désaturation liquide secondaire, la mousse se comporterait comme un fluide Newtonien pour une qualité de mousse fixée. D'autres auteurs [100] affirment que l'apparition de ce second front serait le résultat de l'augmentation de la fréquence des mécanismes de *Snap-off* qui surviennent en aval du milieu poreux, à cause du changement de perméabilité entre la dernière face du milieu et les tubings de sortie des fluides. Toutefois, les temps caractéristiques d'apparition et la durée de cette phase ainsi que la position où apparait ce second front dans le milieu poreux diffèrent d'un auteur à l'autre [51, 99, 100].

Dans le cas de l'expérience N°4, le débit total d'injection était élevé, les deux fronts se sont alors succédé très rapidement, ce qui explique que la saturation de gaz a cru de manière accélérée en corrélation avec l'augmentation de la pression. On remarque sur cette même courbe (cf. Figure 39 en bas à droite), que la saturation de gaz moyenne à l'état stationnaire a tendance à diminuer en fonction du temps à cause de la formation d'effets d'entrée persistants sur une bonne distance, en comparaison avec la saturation de gaz mesurée sur la dernière moitié de la carotte qui reste moins affectée.

Dans le cas de l'expérience N°1 ($Q_t = 4.9\, mL/h$), nous avons bien observé un 1er front net. En revanche, le 2nd front de mousse n'est jamais apparu même en augmentant la qualité de mousse et en injectant plusieurs dizaines de volume de pore. En comparaison avec les autres expériences, les faibles mesures de pression à 4.9 mL/h et faibles saturations de gaz (autour de 0.45) (cf. Figure 40) indiquent que le gaz et le tensioactif doivent être injectés à des vitesses suffisamment élevées pour développer la mousse forte. En d'autres termes, il est

nécessaire d'appliquer un gradient de pression suffisamment élevé pour diviser les bulles et créer assez de lamelles pour affiner la texture de la mousse [27, 55, 86]. Par ailleurs, puisqu'on ne dépasse pas un gradient de pression minimum pour cette expérience à cause du faible flux, les bulles de gaz ne pénètrent pas dans les canaux les plus étroits du réseau poreux [101].

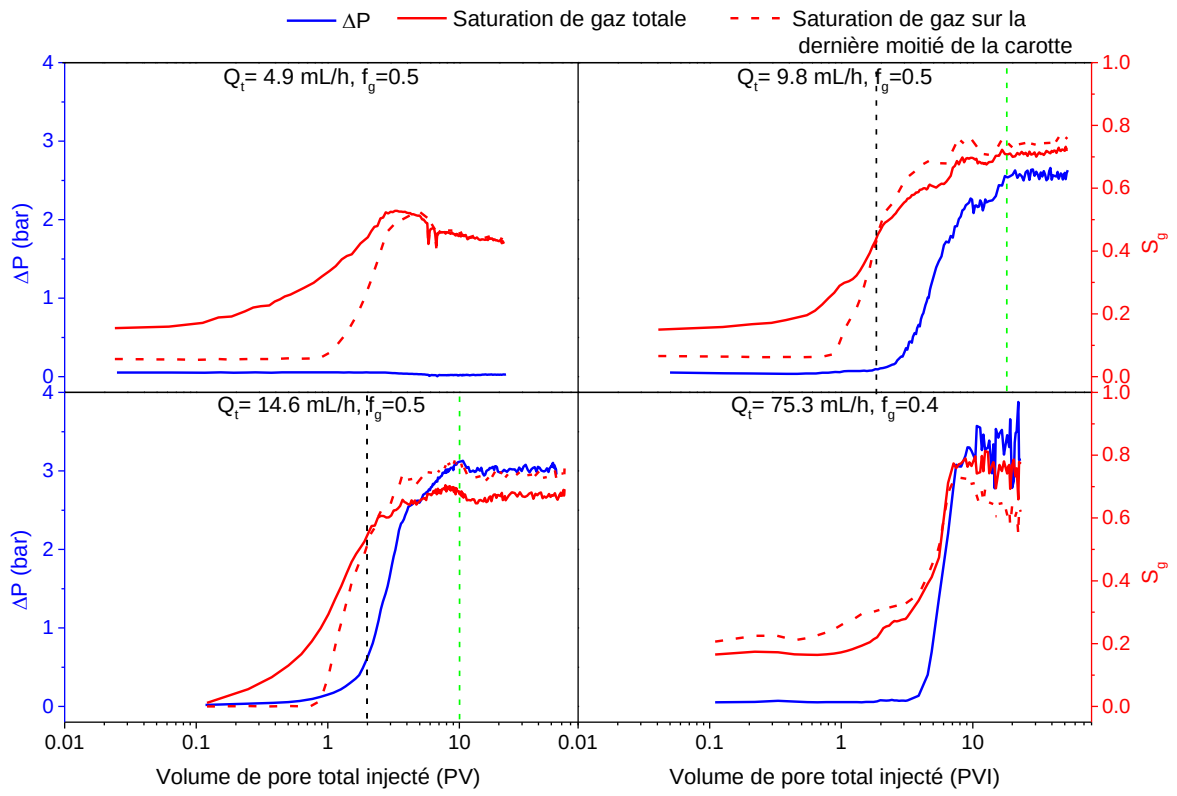


Figure 39 : Passage de l'état transitoire à l'état stationnaire pour les différentes expériences d'écoulement de mousse. Le trait en pointillé noir marque le début de la formation de la mousse forte et le trait en pointillés vert marque le début de l'état stationnaire.

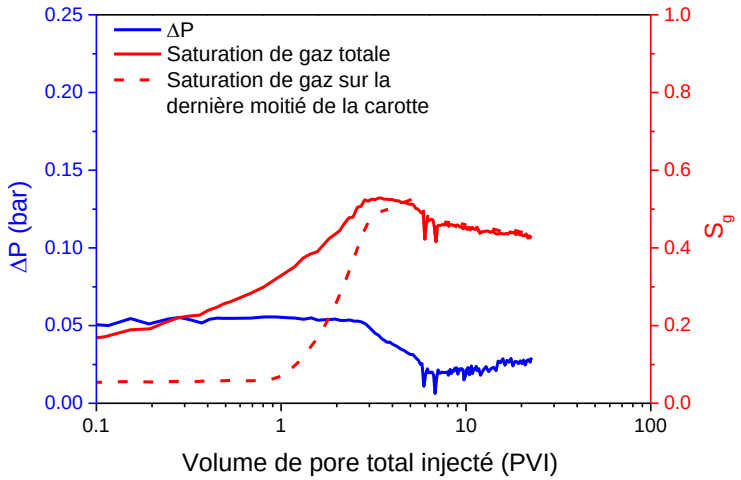


Figure 40 : Zoom sur l'expérience N°1 ($Q_t = 4.9\ mL/h$, $f_g = 0.5$).

3. Effets d'entrée

Lors de ces expériences, nous avons remarqué l'existence d'effets d'entrée qui se manifestent à des degrés divers selon la qualité de mousse injectée ou le débit total. En effet, la saturation de gaz à l'entrée de la carotte est élevée au départ et diminue après l'injection de plusieurs volumes de pore. Les effets d'entrée diminuent si la qualité de mousse augmente (cf. Figure 41) ou si le débit total diminue (cf. Figure 42). Ces effets d'entrée seraient intrinsèquement liés au processus de génération de la mousse qui a lieu dans le milieu poreux, car le tensioactif et le gaz sont injectés en tant que phases séparées à l'entrée. Il faut alors une certaine distance pour que la mousse adopte une texture finale en fonction du milieu poreux et des conditions d'injections. Ainsi, la mobilité du gaz à l'échelle de la carotte dépend de la distance depuis l'entrée du milieu poreux, i.e. un gradient de mobilité décroissant du gaz se forme de l'amont vers l'aval de la carotte. La mouillabilité favorable de la roche à l'eau pourrait aussi être responsable de ce phénomène. Dans notre cas, nous n'avons pas eu la possibilité de mesurer finement des pressions à différentes positions depuis le point d'injection, mais plusieurs études ont montré que si la mousse n'est pas pré-générée, la région d'entrée serait caractérisée par une saturation liquide élevée [53, 98] et par un faible gradient de pression[56, 58] qui reste en dessous du gradient de pression minimum nécessaire pour la génération de la mousse forte. La mousse à l'entrée du milieu poreux résulterait alors d'une compétition entre les mécanismes de génération et de destruction des lamelles qui rendent la mousse en entrée totalement différente de celle en sortie [65]. Ces effets d'entrée sont aussi liés au déséquilibre notable de saturation entre le mélange injecté et la mousse formée où la saturation en gaz est plus forte. Ces effets d'entrée ont été observés pour toutes les expériences réalisées. En revanche, ils étaient réduits lorsque le débit total est diminué (cf. Figure 42). Ce dernier point nous montre que pour avoir une répartition spatiale uniforme d'une mousse forte dans l'espace, il faudrait injecter à une qualité de mousse suffisamment élevée tout en restant en régime basse qualité et à une vitesse à peine au-dessus de la vitesse minimale de formation de la mousse forte. Finalement, l'état stationnaire qui correspond, en terme de mesure, à un gradient de pression global constant sur toute la carotte, peut être obtenu mais à une certaine distance de l'entrée de la carotte. Cette distance correspond plus au moins à la distance à mi-chemin entre l'entrée et la sortie de la carotte.

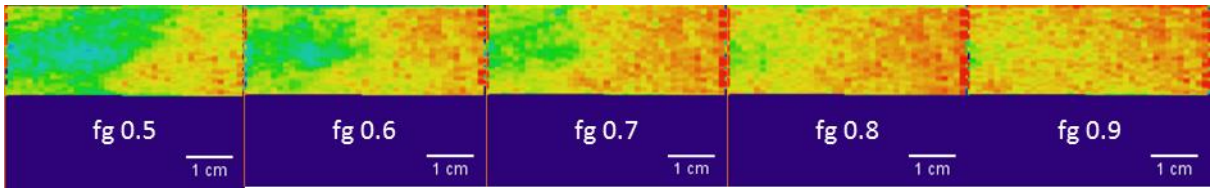


Figure 41 : Effets d'entrée en fonction de la qualité de la mousse à l'état stationnaire pour l'expérience 2. Sens de l'injection de gauche à droite.

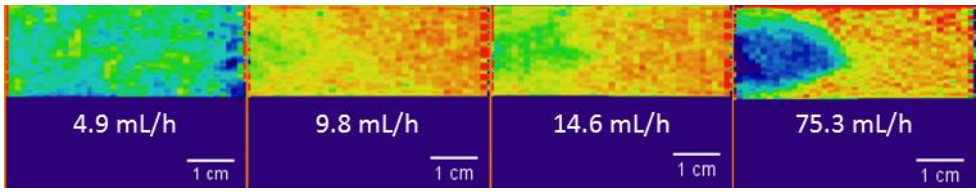


Figure 42 : Effets d'entrée à f_g = 0.7 pour différents débits à l'état stationnaire. Sens de l'injection de gauche à droite.

4. Effets capillaires de sortie

Le deuxième effet observé sur les images Scanner est la rétention liquide à la sortie de la carotte durant les premiers PV d'injection. Ceci est illustré par les faibles valeurs de saturation de gaz en sortie sur la Figure 38.b : Il s'agit d'un cas typique de phénomènes de capillarité qui surviennent au bout de la carotte durant le processus de drainage, i.e. lorsqu'un fluide mouillant est déplacé par un fluide non mouillant. Le fluide mouillant (le liquide) s'accumule en aval de la carotte car les pressions du gaz et de la phase liquide deviennent égales de part et d'autre de la façade avale du milieu poreux. Notre cas de figure est légèrement différent d'un cas classique, car le tensioactif et le gaz sont tous les deux co-injectés et sont supposés se mélanger et former une mousse *in situ* au sein du milieu poreux. Néanmoins, cette étape représenterait un processus de drainage car la saturation de la phase non mouillante (le gaz) croît lors du déplacement du front, ainsi la rétention liquide en sortie de la carotte pourrait être interprétée comme un phénomène de capillarité de ce point de vue. En revanche, après l'injection de plusieurs PV, la saturation liquide diminue et les effets capillaires en sortie s'estompent, ce qui aboutit à une situation inverse où la saturation de gaz est maximale en sortie de la carotte (cf. Figure 37 et Figure 38.b).

L'évolution globale de la saturation pourrait être interprétée finalement comme un comportement d'écoulement transitoire entre (1) un drainage initial par une phase gazeuse considérée comme une mousse faible avec très peu de films liquides et de bulles (ce qui aboutit à une rétention capillaire au bout de la carotte), et (2) un état stationnaire d'une

mousse forte considérée comme une phase visqueuse, avec un ratio de mobilité entre le liquide et la mousse qui favorise la mobilisation du liquide retenu par capillarité au bout de la carotte.

Tandis que les effets de rétention capillaire en sortie disparaissent complètement après quelques PV (5PV sur la Figure 38.b), les effets d'entrée sont maintenus même après l'injection d'un large volume de pore. Selon les interprétations précédentes, les effets d'entrée seraient plutôt reliés à la méthode et aux conditions d'injection, alors que le comportement dynamique de la mousse en sortie serait relié à une texture finale qui se développe en fonction des caractéristiques du milieu poreux, à travers le balayage répétitif de ce milieu.

Pour résumer, nous avons observé pendant ces expériences trois phases qui caractérisent l'écoulement de la mousse dans une carotte :

- Une mobilisation du liquide à travers un 1er front net caractérisant une « mousse faible ». La saturation en gaz est proche de la saturation au point d'injection. Le ΔP reste très faible malgré l'augmentation de saturation en gaz.
- Le développement d'un deuxième front de mousse avec une saturation de gaz qui continue d'augmenter mais avec une pente plus faible que celle de la première phase.
- L'établissement d'un régime stationnaire caractérisé par une pression et une saturation globalement constantes.

Pour une même expérience, le passage d'une qualité de mousse à l'autre est toujours marqué par un régime transitoire puis un régime stationnaire. Un exemple de variation de la pression et de la saturation de gaz est donné sur la Figure 43. Ces nouveaux régimes transitoires durent moins longtemps que le régime transitoire à la première qualité de mousse injectée. Une expérience peut être décrite ainsi par les différents paliers de pression atteints aux régimes stationnaires. Sur la Figure 43, on peut facilement voir que la pression monte jusqu'à une qualité de mousse de 0.7 puis diminue à des qualités de mousse supérieures. Ce comportement rhéologique de la mousse sera décrit plus en détails dans les paragraphes suivants.

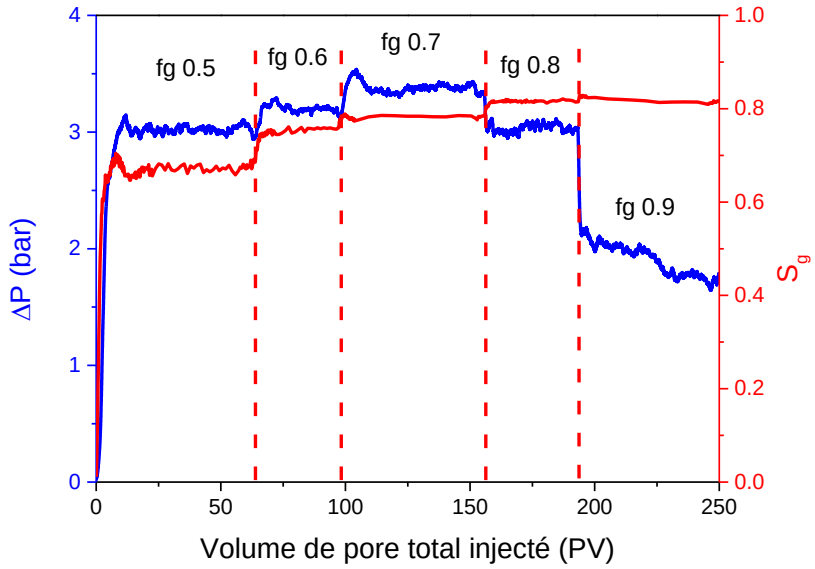


Figure 43 : Exemple d'évolution continue de la pression et de la saturation de gaz totale à différentes qualités de mousse (Expérience N°3, $Q_t = 14.6\, mL/h$). La différence de pression est représentée en bleu et la saturation de gaz en rouge.

C. Rhéologie de la mousse à l'état stationnaire

Lorsque la mousse atteint un palier de pression, on considère que l'état stationnaire est atteint. La dynamique de la mousse à l'échelle globale de la carotte devient ainsi constante car les valeurs de pressions et de saturations de gaz ne changent plus, ou oscillent autour d'une valeur moyenne. Afin de comparer les résultats entre expériences, nous introduisons dans ce paragraphe, les paramètres de viscosité apparente et de réduction de mobilité du gaz qui permettront de décrire l'influence de la qualité de la mousse et des vitesses d'injection sur le comportement rhéologique de la mousse.

1. Profils spatiaux des saturations à l'état stationnaire

Avant de décrire la rhéologie de la mousse à l'état stationnaire, il est important de décrire les profils de saturation de gaz en fonction de la distance depuis l'entrée du milieu poreux pendant l'état stationnaire de l'écoulement (cf. Figure 44). Tout d'abord, on remarque que la saturation de gaz augmente légèrement lorsque la qualité de mousse augmente. Ceci est vrai pour toutes les vitesses. L'expérience N°1 montre que les saturations de gaz restent plus faibles (entre 0.4 et 0.6) en comparaison avec les autres expériences où les saturations de gaz varient entre 0.6 et 0.8. En plus l'effet de rétention liquide capillaire est plus marqué pour la plus faible vitesse, comme discuté auparavant. Sur les courbes de saturations, on peut voir

aussi les effets d'entrée très marqués pour l'expérience N°4. Globalement ces effets d'entrée s'estompent à mi-distance entre l'entrée et la sortie. Ces résultats nous montrent aussi que l'augmentation de la saturation de gaz, une fois que l'état stationnaire du 1er f_g est atteint, existe bien mais reste faible.

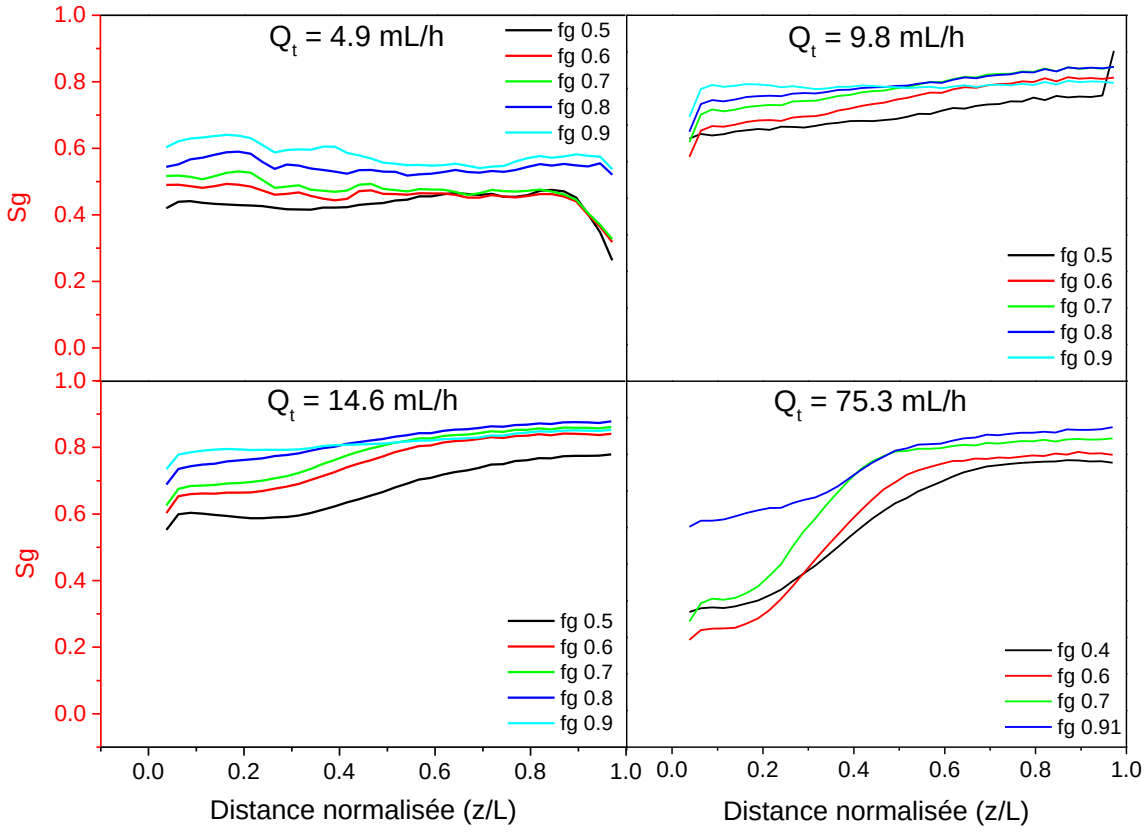


Figure 44 : Saturation de gaz en fonction de la distance normalisée pour les différentes expériences à l'état stationnaire.

2. Influence de la qualité de la mousse

L'évolution du gradient de pression ($\frac{\Delta P}{L}$) à l'état stationnaire est représentée sur la Figure 45.a pour les quatre expériences aux différents débits (un zoom sur l'expérience N°1 est représenté sur la Figure 45.b). Pour une qualité de mousse fixée, le gradient de pression augmente en fonction de la vitesse totale. On remarque que pour toutes les expériences, $\frac{\Delta P}{L}$ augmente légèrement avec la qualité de mousse dans le régime basse qualité, puis décroît significativement en régime haute qualité. La transition entre les deux régimes a lieu graduellement sur une faible plage de f_g autour d'une qualité de mousse critique f_g^* estimée à 0.7.

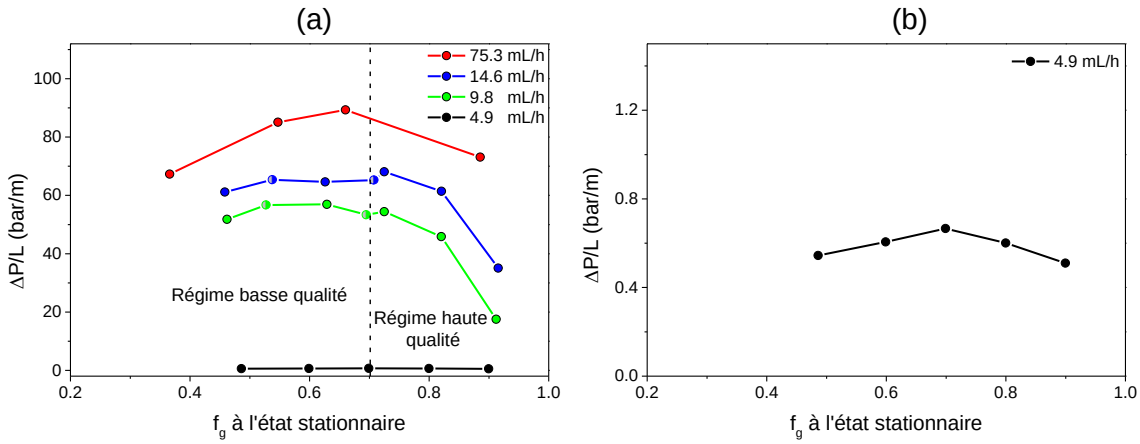


Figure 45 : (a) Gradient de pression $\Delta P/L$ en fonction des qualités de mousse à l'état stationnaire pour les différents débits totaux. Les points en demi-teinte représentent les expériences à faible f_g après avoir atteint le f_g le plus élevé. (b) zoom sur l'expérience N°1.

Par ailleurs, la viscosité apparente (représentée sur la Figure 46 en fonction de la qualité de mousse) est un paramètre qui permet d'apprécier la réduction de la mobilité du gaz par la mousse. Cette viscosité est nommée apparente car elle représente la viscosité de la mousse en la considérant comme un fluide simple constitué d'une seule phase. Il s'agit d'une représentation simplifiée de la viscosité de la mousse mais qui rend bien compte des régimes d'écoulement observés. Ainsi en utilisant la loi de Darcy pour un écoulement monophasique simple, on obtient :

$$\mu_{app} = \frac{KS\Delta P}{LQ_t} \qquad \text{(II.19)}$$

Où K, S et L représentent la perméabilité, la section et la longueur de la carotte respectivement. ΔP représente la différence de pression entre l'amont et l'aval et Q_t le débit total. Les valeurs sont calculées à l'état stationnaire.

Cette viscosité apparente peut s'écrire en fonction de f_g en partant de l'équation (I.2) :

$$\mu_{app} = \frac{KS\Delta P}{LQ_g} f_g \qquad \text{(II.20)}$$

Où Q_g est le débit de gaz à l'état stationnaire.

D'après la Figure 46, on remarque que μ_{app} est plus ou moins constante pour les qualités de mousses en dessous de 0.7. La transition vers le régime haute qualité est plus visible pour les expériences à 9.8 et 14.6 mL/h que pour les autres expériences, où on

remarque une diminution significative de μ_{app}. Pour l'expérience N°4 à grande vitesse (75.3 mL/h), on peut à peine déceler une petite différence entre les régimes basse et haute qualité.

Par ailleurs, lorsqu'on réduit les qualités de mousse à 0.7 puis à 0.5 après avoir atteint la qualité de mousse la plus grande, on remarque que les valeurs de pression et de viscosité apparente ne changent pas beaucoup par rapport aux qualités de mousse initialement injectées (cf. les points en demi-couleur sur les Figure 45.a et Figure 46). Ceci confirme l'absence d'effets d'hystérésis en fonction de la qualité de mousse. Les effets d'hystérésis sont généralement observés en changeant le débit total à qualité de mousse fixée [97], contrairement à notre étude où on change la qualité de mousse à débit total fixé. Enfin, l'absence de tout effet d'hystérésis, montre que la mousse coalescente qui s'est formée au-delà du $f_g^* \approx 0.7$ peut effectivement redevenir une mousse forte en diminuant la qualité de mousse à nouveau.

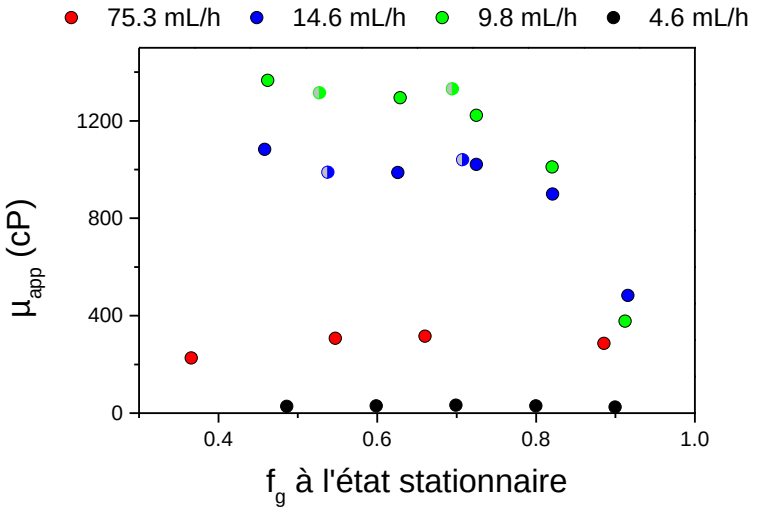


Figure 46 : Viscosité apparente μ_{app} en fonction des qualités de mousse à l'état stationnaire pour les différents débits. Les points en demi-teinte représentent les expériences à faible f_g après avoir atteint le f_g le plus élevé.

3. Influence de la vitesse de gaz

Sur la Figure 47, on donne une représentation en log-log de la variation de la viscosité apparente en fonction de la vitesse interstitielle moyenne du gaz qu'on définit par la relation suivante :

$$v_{int_g} = \frac{Q_g}{\Phi\, S\, \overline{S_g}} \tag{II.21}$$

Où Φ est la porosité et $\overline{S_g}$ la saturation de gaz moyenne sur l'ensemble de la carotte à l'état stationnaire.

On dissocie les données du régime basse qualité (points noirs) des données du régime haute qualité (points bleus) sur cette figure. Il est clair que la mousse se comporte comme un fluide rhéo-fluidifiant si on considère uniquement le régime basse qualité (μ_{app} décroît en fonction de v_{int_g}). Une régression linéaire ($R^2 = 0.90$) nous permet de modéliser les données issus de la mousse forte en régime basse qualité par une fonction en puissance, selon :

$$\mu_{app} = \mu_g + \alpha(v_{int_g})^{-\gamma} \approx \alpha(v_{int_g})^{-\gamma} \tag{II.22}$$

Où $\alpha = 2.07\ 10^5$ et $\gamma = 0.83$. $\mu_g = 1.76\ 10^{-2}\ cP$ représente la viscosité du gaz N_2 dans des conditions normales de température et de pression. On fait l'hypothèse dans ce cas que la contribution de la phase liquide à la viscosité apparente est négligeable.

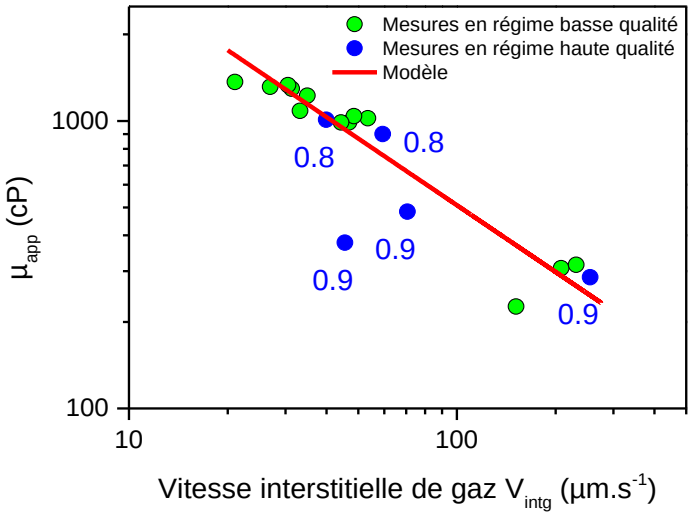


Figure 47 : Représentation en log-log de la viscosité apparente en fonction de la vitesse interstitielle de gaz moyenne pour les données de mousses fortes. La courbe en rouge représente un ajustement des mesures en régime basse qualité. Les qualités de mousse sont indiquées en labels pour le régime haute qualité.

Le modèle trouvé est similaire à celui proposé par Hirasaki et Lawson [21] ainsi que d'autres auteurs [21, 22, 79] qui ont montré que la viscosité apparente de la mousse dans des

tubes capillaires variait quasi-linéairement en fonction de la texture de la mousse, et était liée par une loi de puissance à l'inverse de la vitesse des bulles de gaz (ou plus exactement à la vitesse des lamelles [101]) selon :

$$\mu_{app} \approx \frac{\beta\, n_f}{{v_{int}}_g{}^{c_f}} \tag{II.23}$$

Où n_f représente la texture de la mousse et β un coefficient qui dépend de la solution de tensioactifs et de sa concentration. Selon le milieu poreux, les auteurs trouvent un exposant c_f qui varie entre 1/3 et 1 [21, 22, 87]. Une des raisons qui expliquent ce fort comportement rhéo-fluidifiant de la mousse dans les milieux poreux est la variation de la quantité de gaz piégée avec la vitesse d'écoulement de la mousse. Plus la quantité de gaz piégé est grande, moins il y'a de canaux disponibles pour l'écoulement de la mousse. Par conséquent, un fort gradient de pression se développe ce qui donne une viscosité apparente élevée [102].

On remarque que les points en régime haute qualité sont plus dispersés autour du modèle rhéo-fluidifiant. En effet, il est couramment admis que la taille de bulle (et donc la texture) ne change pas en régime basse qualité ($f_g < f_g^*$) [59], mais serait déterminée par les propriétés pétro-physiques de la roche en étant plus ou moins égale à la taille de pore à l'état stationnaire [103]. Dans ce régime, la mousse serait plus sensible à la mobilisation et au piégeage du gaz. Ainsi, la viscosité du gaz serait uniquement influencée par la vitesse d'écoulement et la quantité de gaz piégé. En revanche, le phénomène de coalescence induit certainement un comportement complexe qui implique des bulles de tailles probablement très variables et une diffusion du gaz à travers les lamelles qui provoquerait leurs ruptures. Il est probable aussi qu'une plus grande sensibilité de la texture de la mousse à la vitesse du gaz ait lieu pendant le régime de coalescence. Ce qui pourrait expliquer l'écart des données en régime haute qualité par rapport au modèle de l'équation (II.22).

4. Évolution de la mobilité de la mousse

En considérant le déplacement de la mousse comme un écoulement diphasique de gaz et de liquide contenant le tensioactif, le débit de gaz peut être exprimé par la relation généralisée de Darcy :

$$Q_g = \frac{K M_g^f A \Delta P}{L} \tag{II.24}$$

Où on introduit M_g^f qui représente la mobilité relative de la phase gazeuse de la mousse (i.e. le ratio entre perméabilité relative et viscosité du gaz en écoulement sous forme de mousse). Ainsi, on peut définir une mobilité absolue du gaz Λ_g^f où :

$$\Lambda_g^f = K M_g^f \tag{II.25}$$

D'après les équations (II.19), (II.23) et (II.24) on peut en déduire que la mobilité absolue du gaz peut s'écrire à l'aide de la formule suivant**e :**

$$\Lambda_g^f = \frac{K}{\mu_{app}} f_g \tag{II.26}$$

Sur la Figure 48, on reporte toutes les valeurs de mobilité absolue du gaz, déterminées pour les différentes expériences et qui résument les discussions précédentes, en fonction de la saturation du gaz, moyennée sur la dernière moitié de la carotte pour éviter les effets d'entrée. Premièrement, on remarque que les valeurs représentant l'expérience N° 1 (4.9 mL/h) montrent clairement que la mobilité du gaz est élevée lorsqu'une mousse faible est générée au lieu d'une mousse forte. Deuxièmement, Les données des expériences aux plus grandes vitesses (9.8 à 75.3 mL/h) montrent que plus la vitesse totale augmente plus la mobilité absolue augmente. Troisièmement, on remarque que l'augmentation de la mobilité à plus grandes saturations pour les expériences à 9.8 et 14.6 mL/h marque les effets de coalescence et le passage en régime haute qualité (montré par les flèches sur la Figure 48). Ce dernier point sera discuté dans les paragraphes suivants.

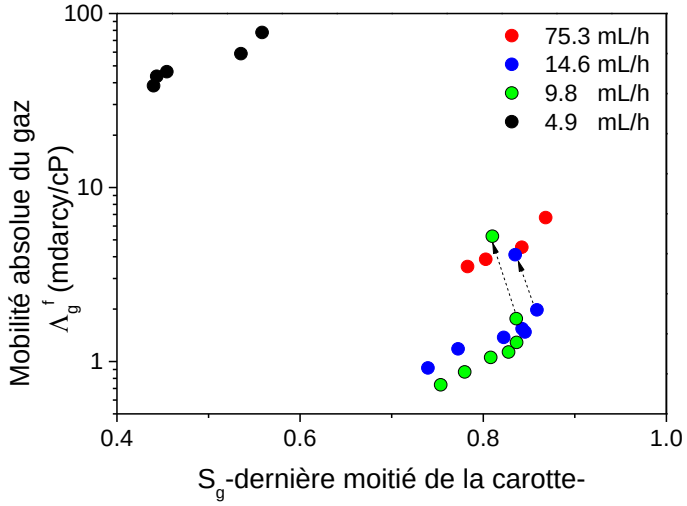


Figure 48 : Mobilité absolue du gaz dans la mousse en fonction de la saturation de gaz.

D. Coalescence de la mousse en milieu poreux

Dans les sections précédentes, nous avons vu qu'il existe une transition entre le régime basse qualité et le régime haute qualité, qui serait plus ou moins marquée selon la vitesse totale d'injection. On s'intéresse dans ce qui suit à l'analyse de cette transition, d'abord en termes de relation entre la saturation de gaz et la qualité de la mousse puis en termes d'influence des caractéristiques pétro-physiques de la roche sur cette transition.

1. Relation entre qualité de mousse et saturation de gaz

Les Figure 49.a et Figure 49.b présentent les données de qualité de mousse en fonction de la saturation de gaz à l'état stationnaire. Pour toutes les expériences, on remarque qu'au premier ordre, la tendance globale est l'augmentation de S_g lorsque f_g augmente de 0.4 à 0.7-0.8, i.e dans le régime basse qualité. L'expérience à 4.9 mL/h montre une saturation de gaz plus faible que pour les autres expériences, car elle représente une mousse faible (grande mobilité). Si on se focalise sur les déplacements de mousse forte (expériences aux plus grandes vitesses), on peut observer que l'augmentation de f_g de 0.4 à 0.7-0.8 induit une augmentation de la saturation de gaz inférieure à 10% (cf. Figure 49.b).

Selon l'hypothèse généralement admise de non variation de la taille de bulle moyenne en régime basse qualité [59], on pourrait affirmer que l'augmentation de la saturation de gaz serait attribuée à un accroissement du nombre de lamelles par unité de volume de gaz (ou de

la texture), lorsque f_g augmente. En première approximation, si on considère la Figure 49.a, on peut dire qu'en moyenne la saturation de gaz totale ne change pas et reste constante. Ceci implique que, si en plus, la saturation de gaz piégé ne change pas, la saturation de gaz mobile ne changerait pas non plus (par principe de conservation). Ainsi, le nombre de lamelles par unité de volume de gaz devrait être invariant. Ceci conforte bien les valeurs de la viscosité apparente qui restent globalement constantes (cf. Figure 46) en régime basse qualité. Par conséquent, en première approximation, on peut bien affirmer que la saturation de gaz piégée ne change pas lorsque f_g augmente. Mais en réalité, on s'aperçoit d'après la Figure 49.b, que S_g n'est pas strictement constante et augmente légèrement en fonction de f_g. Ce raisonnement nous indique finalement, que :

- Soit la quantité de gaz piégée doit croître en fonction de la qualité de mousse. Mais ceci est en contradiction avec les travaux d'autres auteurs [87] qui trouvent que la fraction de gaz piégée augmente lorsque la qualité de mousse diminue.
- Soit l'hypothèse de non variation de la texture de la mousse en régime basse qualité doit être remise en question et donc doit être vérifiée (cf. chapitre 3).

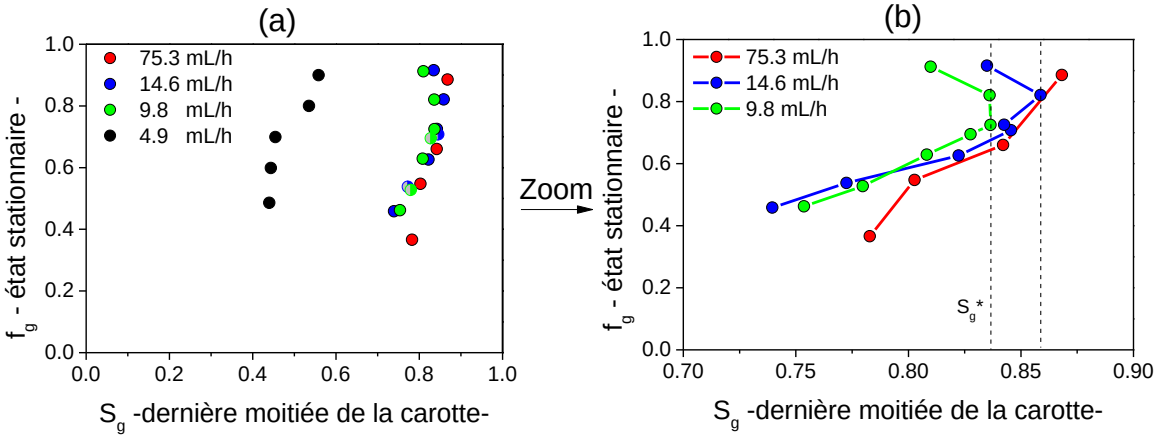


Figure 49 : (a) f_g en fonction de S_g à l'état stationnaire. (b) Zoom sur les expériences 2, 3 et 4. Les points en demi-teinte représentent les expériences à faible f_g après avoir atteint le f_g le plus élevé.

Sur la Figure 49.b, on remarque pour les expériences aux plus grands débits totaux (points rouges sur la figure) une augmentation de la saturation de gaz sans atteindre un maximum alors qu'une analyse fine des résultats des expériences à 9.8 mL/h et 14.6 mL/h révèlent que la saturation de gaz décroît aux qualités de mousse élevées, après avoir atteint un maximum, qu'on peut noter S_g^*, et qui correspond à la valeur de S_g de transition entre les deux

régimes. Ce comportement particulier de la mousse a aussi été observé par différents auteurs [52, 104–106]. Kibodeaux et al [104] attestent qu'on pourrait avoir différents états stationnaires pour la même valeur de S_g, ce qui confirme la non-monotonie de f_g en fonction de S_g. Ce comportement en régime haute qualité, pourrait être expliqué par le collapse des lamelles de la mousse qui augmente la mobilité du gaz, et qui engendre par ailleurs une ré-imbibition du milieu poreux avec le liquide.

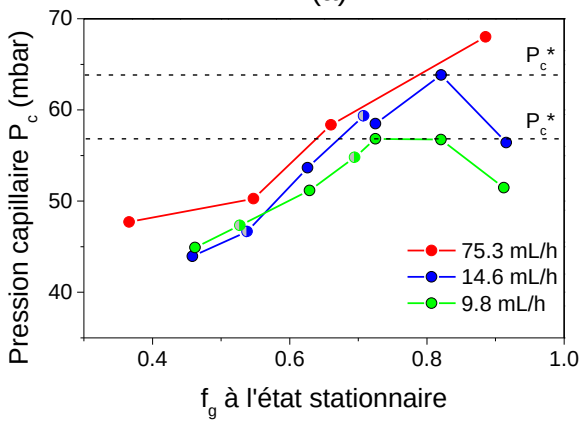
2. Estimation des pressions capillaires limites

A l'aide des saturations de gaz mesurées, on peut utiliser la courbe de pression capillaire de référence mesurée par porosimétrie mercure et transposée au cas d'un écoulement tensioactif / gaz dans notre carotte de roche (cf. Figure 30.b), pour estimer les pressions capillaires associées à chaque qualité de mousse (cf. Figure 50.a). Pour les expériences à 9.8 et 14.3 mL/h, les pressions capillaires augmentent en fonction de f_g dans le régime basse qualité, atteignent un maximum vers S_g^* puis décroissent dans le régime haute qualité. Cette valeur maximale de pression capillaire pourrait être considérée comme la pression capillaire critique $P_c^* = P_c(S_g^*)$. La Figure 50.a et le tableau de la Figure 50.b montrent que les valeurs de P_c^* restent tout de même proches, mais qu'elles sont atteintes à différentes qualités de mousse en fonction du débit. Pour l'expérience à plus grande vitesse, P_c^*serait atteinte à une qualité de mousse supérieure à 0.9. A première vue, cette variation de P_c^* en fonction de f_g semble en contradiction avec l'unicité de la valeur de la qualité de mousse critique f_g^* (autour de 0.7, cf. Figure 46). Cela pourrait s'expliquer par nos mesures qui montrent que, la transition du régime basse qualité vers le régime haute qualité, a lieu sur une faible gamme de qualités de mousse, au lieu d'avoir lieu en une qualité de mousse fixe. En plus, les mesures de ΔP sont réalisées sur l'ensemble de la carotte alors que les valeurs de saturations de gaz utiles ont été considérées sur la dernière moitié de la carotte. Ainsi une interprétation sûre des variations de la pression capillaire en fonction de la qualité de mousse grâce à ces expériences serait difficile.

En plus de ces limitations expérimentales, les phénomènes sous-jacents au concept de Pc* sont complexes. Ils ont fait l'objet de plusieurs interprétations dans la littérature [39, 60]. Par exemple, Khatib et al., [9] ont observé une diminution de la pression capillaire lorsque le débit de gaz augmente. Ce comportement serait le résultat de perturbations mécaniques auxquelles seraient soumises les lamelles lorsqu'elles traversent des pores de géométries

variables [39]. D'après nos expériences, nous n'avons pas observé une telle décroissance de P_c^* en fonction de la vitesse de gaz pour une qualité de mousse donnée. Notons aussi que les pressions capillaires limites pour les expériences à 9.8 et 14.6 mL/h semblent être proches et que d'autres vitesses devraient être étudiées pour confirmer une tendance claire des variations de P_c^* en fonction des vitesses d'écoulement. Enfin, on pourrait rappeler que le milieu poreux étudié ici est beaucoup moins perméable que celui de Khatib et al., [9]. Ces différences entres les milieux poreux et la complexité de la géométrie des canaux d'écoulement dans le réseau poreux pourraient changer considérablement la propagation de la mousse, comme suggéré par Géraud et al., [84, 107].

(a)



(b)

Débit total (mL/h)	Sg*	Pc*
9.8	~ 0.77	~ 57
14.6	0.82	64
75.3	> 0.88	> 68

Figure 50 : (a) Variations de la pression capillaire en fonction de la qualité de mousse à l'état stationnaire, (b) Paramètres caractérisant la limite entre les régimes basse et haute qualité.

IV. Conclusion du deuxième chapitre

Dans ce chapitre nous avons décrit les expériences d'écoulement de mousses dans une carotte de roche (Bentheimer) à différentes qualités de mousse et à différents débits sous Scanner X. Les cartographies et profils de saturations ont permis de visualiser et de décrire à l'échelle macroscopique (quelques millimètres) la génération et la propagation de la mousse dans un milieu poreux naturel. Les principaux résultats sont résumés ainsi :

- Le déplacement du liquide saturant la carotte par la mousse s'effectue en 2 phases d'écoulements successives : un premier front de « mousse faible » suivi d'un deuxième front plus diffus qui caractérise la formation d'une « mousse forte ».
- Les profils de saturation révèlent des effets d'entrée et des effets capillaires en bout de la carotte :

  (a) Les effets d'entrée sont reliés à la procédure et aux conditions d'injection, et ils sont atténués pour des grandes qualités de mousse et/ou pour des débits totaux faibles.

  (b) Les effets de rétention capillaire en bout de carotte s'amenuisent lors de la formation de mousse forte
- Une vitesse critique (ou un gradient de pression critique) doit être dépassée pour générer la mousse forte.
- L'évolution de la viscosité apparente en fonction de la qualité de mousse montre l'existence d'une transition entre un régime basse qualité et un régime haute qualité, caractérisée par des viscosités apparentes constantes et décroissantes respectivement.
- La mousse possède un comportement rhéo-fluidifiant dans le régime basse qualité.
- La valeur de qualité de mousse critique au-delà de laquelle la viscosité apparente de la mousse décroît, est reliée à une saturation de gaz critique, qui pourrait être reliée à une pression capillaire critique marquant le début de coalescence. L'analyse des petites différences dans les valeurs de Pc* déterminées sont difficilement interprétables au regard des inhomogénéités de l'écoulement à l'échelle de la carotte et à la complexité des phénomènes intervenant en régime haute qualité.
- Le régime haute qualité est marqué principalement par une grande mobilité du gaz et une diminution de la viscosité apparente en fonction de la qualité de mousse.

Chapitre III : Caractérisation de l'écoulement des mousses dans un milieu granulaire par diffusion des neutrons aux petits angles

I. Introduction 88
A. Généralités sur la diffusion des neutrons aux petits angles 88
1. Les neutrons 88
2. L'expérience de diffusion des neutrons aux petits angles 89
a) Principe 89
b) Traitement des données 91
c) Diffusion cohérente et incohérente 92
d) Utilisation de la méthode de variation de contraste 94
e) Lois caractéristiques 95
(i) Domaine de Guinier 96
(ii) Domaine intermédiaire 96
(iii) Domaine de Porod 97
B. Caractérisation des mousses « Bulk » par SANS 97

II. Matériels et méthodes 102
A. Travail préparatoire 102
1. Milieu granulaire 102
a) Choix du matériau 102
b) Préparation de milieux identifiés en taille 103
(i) Étape de broyage 103
(ii) Étapes de tamisage et lavage 103
(iii) Étape de séchage 104
c) Caractéristiques géométriques des grains préparés 104
2. Conception d'une cellule adaptée au rayonnement neutronique 106
a) La cellule SANS 106
b) Remplissage de la cellule et mesure de la porosité 107
3. Détermination expérimentale de l'optimum pour le contrast matching 108
a) Expérience 110
b) Paramètres d'acquisition pour l'optimisation du contrast matching 111
c) Détermination de la limite de linéarité 113
d) Variation du facteur de Porod en fonction de la fraction H/D 115
B. Expériences d'écoulement de mousses sous acquisitions SANS 119
1. Choix de la formulation de tensioactifs 119
2. Montage expérimental 120
3. Description des expériences 121
a) Expérience sur la ligne PAXY (LLB) 122
b) Expérience sur la ligne D22 (ILL) 123

III. Texture de la mousse en écoulement 126
A. Analyse des spectres de diffusion 126
1. Mesures de références 126
2. Description des spectres de diffusion de la mousse en écoulement 128
3. Approche par modélisation 130
a) Diffusion incohérente 131
b) Échelle de la bulle 131
c) Échelle de la lamelle 135
d) Échelle des micelles 138
B. Influence de la qualité de la mousse sur son écoulement (Expérience LLB) 140
1. Évolution du gradient de pression 140
2. Exemple de spectres modélisés 141
3. Évolution de la saturation de gaz locale 143
4. Évolutions de la surface spécifique et de la taille moyenne des bulles 144
a) Surface spécifique moyenne des bulles 144
b) Rayon de Porod des bulles 146
(i) Régime basse qualité 146
(ii) Régime haute qualité 147
(iii) Reformation d'une mousse forte 147
C. Comportement de la mousse le long du milieu poreux (Expérience ILL) 148
1. Description de l'expérience 148
2. Modélisation des spectres de diffusion 150
3. Évolution de la saturation de gaz locale 152
4. Évolution de la taille des bulles en fonction du gradient de pression 153
5. Modèle de fragmentation des bulles 155

IV. Relation entre la géométrie du réseau poreux et la structure de la mousse 158
A. Évolution de la taille de bulle moyenne 159
1. Dans le milieu poreux C (71-112 µm) 159
2. Dans le milieu poreux D (112-150 µm) 161
B. Densités volumiques des bulles et des lamelles 162
C. Nombre de lamelles par bulle 166

V. Conclusion du troisième chapitre 168

I. Introduction

La diffusion des neutrons aux petits angles est une technique qui a l'avantage de donner des informations multi-échelles, jusqu'à trois ordres de grandeur, sur des volumes importants très supérieurs au volume élémentaire représentatif. Cette technique très utilisée en physico-chimie pour caractériser des espèces en solution est par ailleurs très peu connue et peu utilisée dans le domaine des écoulements de fluides en milieux poreux et *a fortiori* dans le domaine pétro-physique. Dans ce chapitre, nous présentons les résultats issus des expériences d'écoulement de mousses dans un milieu granulaire 3D en utilisant la diffusion de neutrons aux petits angles. Ces expériences ont eu lieu sur grands instruments au Laboratoire de Léon Brillouin au CEA à Saclay (LLB) et à l'Institut Laue Langevin à Grenoble (ILL). Les mesures réalisées pendant l'écoulement de la mousse dans le milieu poreux ont nécessité la conception d'une cellule spécifique adaptée au rayonnement neutronique et aux techniques de diffusion. Dans ce chapitre, nous introduirons la technique de diffusion des neutrons aux petits angles puis nous présenterons le matériel et la méthodologie spécifique à cette étude expérimentale. Enfin, nous présenterons les résultats issus de cette étude pour décrire la texture de la mousse pendant son écoulement dans le milieu poreux.

A. Généralités sur la diffusion des neutrons aux petits angles

1. Les neutrons

Les neutrons sont des particules massives ($m \approx 1,67.10^{-27}$ kg) de charge électrique nulle dont la découverte expérimentale revient à James Chadwick en 1932. Les neutrons sont très utiles pour sonder des systèmes de matières molles ou condensée et ont été utilisés depuis des décennies pour déterminer la structure de la matière à des hétérogénéités allant jusqu'à l'échelle du nanomètre.

Les neutrons interagissent avec les noyaux des atomes (dans le cas d'atomes non magnétiques), contrairement aux rayons X qui eux interagissent avec le cortège électronique. Du point de vue de l'absorption, ceci confère aux neutrons une grande capacité de pénétration des éléments lourds tels que le plomb, le fer ou le cuivre, en comparaison avec les rayons X qui seront fortement absorbés par ces éléments. En plus, pour une même longueur d'onde, les rayons X sont beaucoup plus énergétiques que les neutrons. Par conséquent, les neutrons sont

préférés aux rayons X lorsqu'il s'agit d'étudier des matériaux biologiques sensibles ou organiques.

Les neutrons peuvent être produits de manière continue par des réacteurs nucléaires ou en mode *pulse* par des sources à spallation. Aujourd'hui les technologies utilisées dans les réacteurs nucléaires à flux continu sont arrivés à maturité, et on s'attend à peu d'amélioration du flux de neutrons par cette méthode. Les sources à spallation sont en revanche en développement dans le monde car elles permettent d'atteindre des flux plus élevés que ceux des réacteurs nucléaires en contrôlant plus facilement le système d'évacuation de chaleur. Elles seront certainement de plus en plus utilisées dans le futur et apporteront certainement de nouveaux éclairages sur la dynamique de la matière molle.

2. L'expérience de diffusion des neutrons aux petits angles

a) Principe

La technique de diffusion des neutrons aux petits angles est utilisée pour déterminer les grandeurs moyennes qui caractérisent la taille et la forme des objets ainsi que leurs interactions. Elle permet d'étudier l'organisation en volume de ces systèmes, mais aussi en couches minces, sur des couches adsorbées ou greffées et même dans des milieux confinés [108].

L'expérience de diffusion des neutrons aux petits angles consiste à envoyer un faisceau de neutrons de faible divergence incidente, de longueur d'onde λ (et vecteur d'onde $\overrightarrow{k_i}$), sur l'échantillon à étudier (c. Figure 51). Une partie du rayonnement change de direction de propagation : c'est le phénomène de diffusion. Une autre partie du rayonnement est transmise. Dans les deux cas, le rayonnement est en partie absorbé par l'échantillon. On mesure grâce à un détecteur 2D la variation d'intensité diffusée $I(q)$ en fonction d'un vecteur d'onde $\vec{q}$. Ce dernier est défini par la différence entre le vecteur du rayon incident $\overrightarrow{k_i}$ et le vecteur du rayon diffusé $\overrightarrow{k_d}$ selon la formule suivante :

$$\vec{q} = \overrightarrow{k_d} - \overrightarrow{k_i} \qquad \text{(III.1)}$$

Ainsi, l'angle de diffusion θ est relié à la norme q du vecteur $\vec{q}$ par la loi géométrique :

$$q = \frac{4\pi}{\lambda}\sin(\theta) \quad \text{(III.2)}$$

La diffusion est généralement générée par un échantillon qui possède un certain volume V. On peut associer à chaque élément de ce volume de matière, une intensité diffusée dI dans la direction $\vec{q}$ et dans l'angle solide $d\Omega$, par la relation suivante :

$$dI \sim \frac{d\sigma_s}{d\Omega} d\Omega \quad \text{(III.3)}$$

Où $\frac{d\sigma_s}{d\Omega}$ est la section efficace différentielle de diffusion qui dépend de l'angle de diffusion 2θ. Cette section efficace contient l'information sur les inhomogénéités qui vont diffuser et la manière dont elles sont distribuées dans l'échantillon. La section efficace a pour unité le barn (où 1 barn = 10^{-24} cm^{-2}). La section efficace totale qui rend compte de la diffusion dans tout l'espace se définit alors par l'intégrale sur tous les angles solides :

$$\sigma_s = \int \frac{d\sigma_s}{d\Omega} d\Omega \quad \text{(III.4)}$$

En tenant compte du nombre d'éléments diffuseurs par unité de volume $\frac{N}{V}$, on peut définir une section efficace macroscopique Σ_s reliée à σ_s par [109] :

$$\Sigma_s = (\frac{N}{V})\, \sigma_s \quad \text{(III.5)}$$

Où Σ_s s'exprime en cm^{-1}. Les données SANS sont souvent représentées par la différentielle de cette section efficace macroscopique « absolue », en tenant compte de l'intensité transmise par le faisceau vide (sans échantillon) I_0, de la transmission de l'échantillon T et de son épaisseur d. Ainsi, l'intensité de diffusion mesurée peut être exprimée (en cm^{-1}) par [109] :

$$I(q)(cm^{-1}) = I_0 T d \, \frac{d\Sigma_s}{d\Omega} \Delta\Omega \quad \text{(III.6)}$$

Où $\frac{d\Sigma_s}{d\Omega}$ la section efficace macroscopique de diffusion et $\Delta\Omega$, l'angle solide défini par la surface d'une cellule du détecteur et la distance échantillon-détecteur.

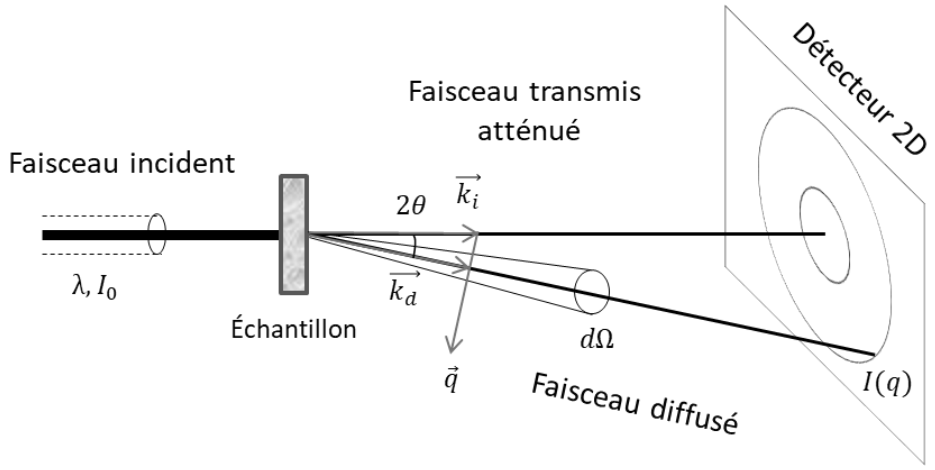


Figure 51 : Représentation schématique d'une expérience de diffusion des neutrons aux petits angles.

Par ailleurs, $\vec{q}$ est dénommé vecteur de diffusion, et son module a la dimension de l'inverse d'une longueur (Å^{-1}). Le module du vecteur de diffusion q agit simplement comme une loupe qui permet de déterminer la structure d'un objet à l'échelle q^{-1}, échelle que l'on peut faire varier facilement sur 2 ou 3 ordres de grandeurs. Généralement, avec cette technique on sonde les hétérogénéités de la matière allant de 1 nm (10Å) à 100 nm (1000 Å) avec des modules de vecteurs d'ondes q typiquement entre 10^{-3} Å^{-1} et 0.6 Å^{-1} [110].

b) Traitement des données

A l'issue d'une seule mesure SANS, on obtient une figure de diffusion sur le détecteur 2D qui ressemble à celle représentée sur la Figure 52.a. Le détecteur de taille minimum de 64 x 64 cm^2 est composé d'un gaz qui permet de convertir les neutrons en rayons γ détectables par effet photoélectrique. Le détecteur est une grille de pixels dont la taille vaut 0.5 x 0.5 cm^2 ou 1 x 1 cm^2 selon les instruments. D'autres types de détecteurs de type annulaire existent (comme sur l'instrument PACE au LLB). Afin de détecter le faisceau diffusé seulement, on met un cache de 3 ou 4 cm à l'endroit où le faisceau direct est transmis, afin d'absorber ce dernier. Lorsqu'on veut réaliser des mesures du faisceau vide ou des mesures de transmission, on enlève le cache.

Le signal de diffusion de l'échantillon doit être corrigé car il existe différents signaux qui contribuent à cette diffusion et qui sont indépendants de l'échantillon. Ces contributions sont soustraites au signal de diffusion de l'échantillon : La diffusion du témoin, la diffusion du faisceau vide et la diffusion de la cellule contenant l'échantillon (le contenant). Par

exemple, dans le cas de particules colloïdales en suspension, le témoin est le solvant. Lorsque l'échantillon (par exemple un solide) n'est pas placé dans un contenant, seul le faisceau vide est soustrait.

Le passage de la Figure 52.a en 2D au spectre 1D sur la Figure 52.b, est réalisé à travers une opération de moyenne radiale. Chaque élément annulaire correspond à un point sur le spectre de la Figure 52.b. Il faut noter que dans ce cas, la diffusion est isotrope. Une mesure définit alors une gamme de q et est moyennée sur la taille du faisceau qui est souvent de l'ordre de 1 cm^2. On obtient alors une mesure statistique moyenne sur un volume sondé relativement important (Généralement l'épaisseur ne dépasse pas quelques millimètres) ce qui est un des avantages de la technique de diffusion. En revanche, les flux de neutrons faibles (en moyenne 10^7 neutrons/cm^2/s) imposent souvent un temps d'acquisition relativement long (de quelques minutes) et donc une résolution temporelle limitée, surtout pour des phénomènes dynamiques.

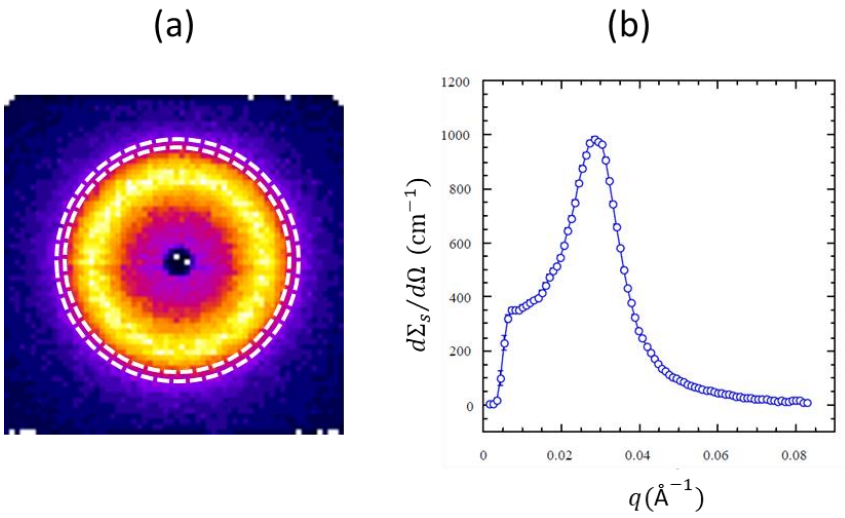


Figure 52 : (a) Exemple d'une figure de diffusion et (b) spectre de diffusion associé.

c) Diffusion cohérente et incohérente

On caractérise la probabilité de diffusion d'un neutron par un atome, par une longueur de diffusion notée b. La valeur de b est différente non seulement d'un atome à l'autre mais aussi d'un isotope à l'autre. Ceci est attribué au fait que la section efficace de diffusion varie de manière non linéaire en fonction du nombre atomique, contrairement aux rayons X. Ainsi la longueur de diffusion de l'hydrogène (-3.74 10^{-15} m) est très différente de celle du deutérium (6.67 10^{-15} m). Toutefois, les échelles sondées avec la diffusion aux petits angles

sont plus grandes que l'échelle atomique et les longueurs de diffusion sont généralement moyennées. Pour cela, on définit pour un volume V représentatif d'une phase où les propriétés de diffusion de la matière ne varient pas, une densité de longueur de diffusion neutronique moyenne $\overline{SLD}$ (*Scattering length density*) par la formule suivante [110] :

$$\overline{SLD} = \frac{1}{V}\sum_i n_i b_i \qquad \text{(III.7)}$$

Où n_i et b_i représentent le nombre d'atomes et la longueur de diffusion de l'atome de type i.

Lorsque les neutrons interagissent avec des atomes, il se produit une diffusion qui peut être cohérente ou incohérente. La diffusion cohérente dépend de q et contient l'information sur la structure du système étudié. La diffusion incohérente est indépendante de q et donne lieu à un bruit de fond plat. La diffusion cohérente est plus importante que la diffusion incohérente pour la plupart des atomes sauf dans le cas de l'hydrogène. Ce dernier contribue à 97% à la diffusion par diffusion incohérente. Souvent, on s'affranchit du signal de l'intensité incohérente en le soustrayant de la partie du signal de l'intensité cohérente. Ainsi de manière générale, on peut décrire l'intensité diffusée par l'échantillon de la manière suivante [111] :

$$I(q)_{mesurée} = I(q)_{coh} + I_{inc} \qquad \text{(III.8)}$$

Où $I(q)_{coh}$ et I_{inc} représentent le signal de la diffusion cohérente et le signal de la diffusion incohérente, respectivement.

La technique de diffusion des neutrons aux petits angles est très bien adaptée lorsque l'échantillon est constitué de deux phases uniquement. Par exemple des particules polymériques dans un solvant [108], ou des micelles de tensioactif dans une solution [112, 113]. L'intensité diffusée est proportionnelle à la différence des densités des longueurs de diffusion neutroniques entre les deux phases présentes, au carré, noté $\Delta(\overline{\mathrm{SLD}})^2$. Le terme $\Delta(\overline{\mathrm{SLD}})$ traduit l'écart de la densité de longueur de diffusion et est appelé contraste. Dans le cas d'un système à deux phases[3] (des particules notées p dans un solvant par exemple),

[3] Il s'agit ici de donner un exemple. Le lecteur peut se référer à différents ouvrages [108, 110, 114, 115] pour une description plus détaillée sur la théorie de la diffusion du rayonnement

l'intensité de diffusion est proportionnelle au carré de la différence entre les densités de longueurs de diffusion neutroniques des particules et du solvant et s'écrit comme [114] :

$$I(q) = \Phi_p v_p \Delta(\overline{SLD})^2 S(q) P(q) \qquad \text{(III.9)}$$

Où Φ_p est la fraction volumique des particules/diffuseurs présents en solution, v_p le volume élémentaire de la particule p. P(q) est le facteur de forme du diffuseur qui décrit sa géométrie et sa taille. Notons que lorsque $q \to 0$, $P(q) \to 1$. Le facteur de structure S(q) est un terme qui décrit l'interaction entre les différents diffuseurs. Il s'agit d'une fonction oscillante qui tend vers 1 lorsqu'il y'a absence d'interactions ou pour des solutions diluées.

D'après la formule (III.9), on déduit que la probabilité de diffusion d'un neutron représentée par l'intensité diffusée dépend de la taille des particules, de leur fraction volumique et du terme de contraste. Plus la taille des particules ou leur concentration est élevée, plus l'intensité diffusée est grande. De la même manière, plus le contraste entre les constituants est grand plus la probabilité de diffuser est grande. En revanche, un signal de diffusion très fort n'est pas forcément une bonne chose, car des phénomènes de multidiffusion peuvent apparaître, c'est à dire la diffusion d'un neutron plusieurs fois dans l'échantillon. Pour éviter ce problème, il est souvent recommandé de réduire l'épaisseur de l'échantillon, car la probabilité de diffusion de neutrons est proportionnelle au trajet optique, ou de réduire au mieux le contraste entre les éléments diffuseurs. On peut aussi penser à réduire la taille des particules v_p ou leur fraction volumique Φ_p, mais souvent en pratique, cela n'est pas possible car ce sont les paramètres qu'on voudrait mesurer à travers l'analyse des échantillons.

d) Utilisation de la méthode de variation de contraste

Le principe de la méthode de variation de contraste repose sur le remplacement d'un noyau par l'un de ses isotopes. L'objectif est de pouvoir observer la structure d'un seul objet au milieu des autres en effaçant un des contrastes en particulier. Souvent, il s'agit d'utiliser du deutérium D à la place de l'hydrogène H [108]. L'un des avantages d'utiliser le deutérium réside dans sa longueur de diffusion neutronique qui est très différente de celle de l'hydrogène.

Rappelons que la SLD d'un mélange binaire d'eau hydrogénée et d'eau deutérée par exemple est définie par la somme des densités de longueur de diffusion neutronique de chaque constituant ou phase, SLD_i, pondérée par sa fraction volumique Φ_i :

$$SLD_{mel} = \Phi_H SLD_H + (1 - \Phi_H) SLD_D \quad \text{(III.10)}$$

Où SLD_H et SLD_D représentent les densités de longueur de diffusion de H_2O et de D_2O respectivement. Comme la fraction volumique de l'eau hydrogénée Φ_H varie entre 0 et 1, il est possible de faire varier $SLD_{mélange}$ entre SLD_H et SLD_D. Pour une entité se trouvant dans un mélange formé d'eau hydrogénée H_2O et d'eau deutérée D_2O, et dont la longueur de diffusion neutronique se trouve entre celle de H_2O et de D_2O, il est possible de trouver la fraction volumique Φ_V^* qui permet de « matcher » le mélange à ce constituant, de telle sorte que :

$$SLD_{mel} = SLD_{constituant} \quad \text{(III.11)}$$

C'est la technique de « *contrast matching* ». La détermination de Φ_V^* est faite par calcul à travers les valeurs tabulées des densités de longueur de diffusion neutronique et des volumes molaires [116] si l'on connait $SLD_{constituant}$. Ou expérimentalement si l'on peut faire varier la fraction volumique d'une espèce dans le solvant et mesurer la fraction volumique qui annule l'intensité de diffusion du mélange binaire solvant-espèce [108].

e) Lois caractéristiques

Selon le vecteur de diffusion, la courbe de diffusion aux petits angles possède une forme caractéristique qui peut être divisée en trois parties. Les domaines de q associés à ces parties sont représentées sur la Figure 53. Chaque domaine peut être représenté par une loi qui simplifie l'expression générale de l'intensité diffusée.

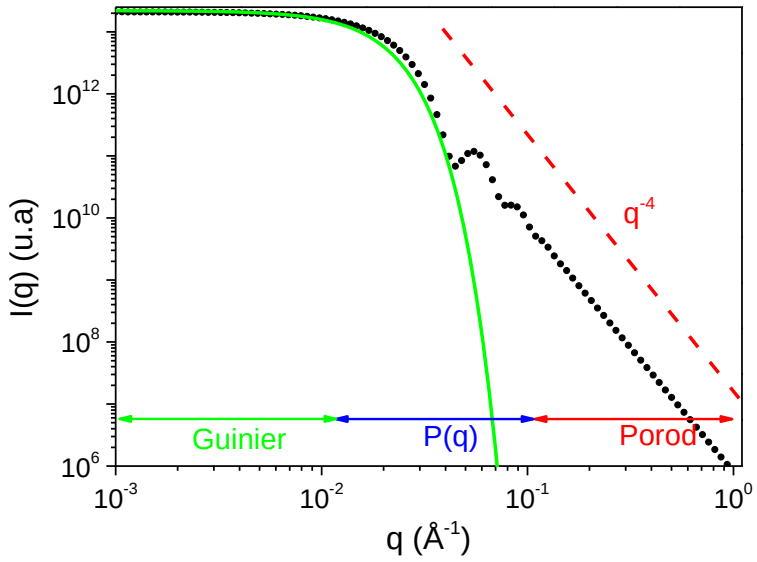


Figure 53 : Spectre de diffusion simulé d'une solution de sphères polydisperses (s = 0.1) de rayon moyen 100 Å. Les trois domaines de q sont indiqués de manière approximative.

(i) Domaine de Guinier

Ce domaine concerne les très petites valeurs de q et permet de caractériser la taille des particules diluées en solution. Ceci nécessite de sonder des échelles de taille plus grandes que la taille caractéristique des particules($qR_g \ll 1$). Dans ce cas, l'intensité diffusée peut être exprimée par la loi de Guinier [114] :

$$I(q) \approx I(0)[1 - \frac{q^2 R_g^2}{3} + \cdots] \approx I(0)\exp(-\frac{q^2 R_g^2}{3}) \quad \text{(III.12)}$$

Avec

$$I(0) = \Phi_p v_p \Delta(\overline{SLD})^2 \quad \text{(III.13)}$$

Où R_g est le rayon de giration de la particule, qui renferme une information sur la taille et la géométrie des particules. Il est relié de manière plus ou moins complexe aux paramètres géométriques définissant la forme de la particule et il suffit de tracer $\ln(I(q))$ en fonction de q^2 pour pouvoir le mesurer.

(ii) Domaine intermédiaire

Le domaine intermédiaire est sensible à la forme des particules et est régi par le facteur de forme $P(q)$ des particules.

(iii) Domaine de Porod

Pour ce domaine, les valeurs de q sont suffisamment grandes pour observer des distances petites par rapport à la taille de la particule. Ce domaine est caractéristique de l'interface entre la particule et le solvant. Lorsque l'interface est bien définie, l'intensité diffusée obéit à la loi de Porod où on observe une décroissance en q^{-4} :

$$I(q \to \infty) = \frac{A}{q^4} \tag{III.14}$$

Avec

$$A = 2\pi\Delta(\overline{SLD})^2 \frac{S}{V} \tag{III.15}$$

A est nommé facteur de Porod. Le tracé de $q^4 I(q)$ en fonction de q permet de voir un palier égal à $2\pi\Delta(\overline{SLD})^2 \frac{S}{V}$, d'où on obtient la surface spécifique volumique $\frac{S}{V}$ qui décrit la somme des surfaces de toutes les particules par unité de volume. Pour des particules sphériques de rayon R et de fraction volumique Φ_p , on peut écrire la surface spécifique à l'aide de l'équation suivante :

$$\frac{S}{V} = \frac{3\Phi_p}{R} \tag{III.16}$$

B. Caractérisation des mousses « Bulk » par SANS

Les mousses bulk représentent un cas particulier de milieux dispersés pour lequel la technique de diffusion des neutrons aux petits angles se révèle efficace pour sonder la taille des bulles et des films liquides [117–119]. Il s'agit d'ailleurs de la seule méthode optique capable de réaliser des mesures *in situ* pour décrire la structure de la mousse [118].

En effet, en exploitant la grande sensibilité des neutrons à l'hydrogène et aux interfaces gaz/liquide grâce à la différence entre la densité de longueur de diffusion neutronique entre le gaz et la phase aqueuse formée d'eau deutérée ($\Delta SLD_{D_2O/air} = 6.345\ 10^{10}\ cm^{-2}$), la structure de la mousse peut effectivement donner un signal de diffusion

qui varie en fonction de la géométrie et de la composition des deux phases (fractions liquide et gaz) qui forment la mousse [118].

Axelos et al., [117] ont réalisé des expériences de SANS sur une mousse générée en injectant du gaz dans une solution de tensioactifs de *Sodium Dodecyl Sulfate* deutéré (ou SDS-d). Ils ont ainsi étudié le régime stationnaire par un bullage constant du gaz dans la solution, et le régime de drainage libre en arrêtant l'injection. Ils ont montré que l'intensité diffusée variait comme q^{-4} dans la gamme des q relativement faibles (6.10^{-3} *et* 5.10^{-2} $Å^{-1}$) (cf. Figure 54.a), et que cette décroissance pouvait être interprétée en terme de loi de Porod [108] et donner le rayon moyen des bulles aussi bien dans le cas d'une mousse humide que dans le cas d'une mousse sèche, sous l'hypothèse d'une géométrie sphérique pour les bulles. Pour la mousse humide, ils observent aussi le signal des micelles sous la forme d'un pic qui apparaît à grands q vers 0.1 $Å^{-1}$. Ce dernier est atténué en diminuant la concentration de tensioactifs. Pour les très grandes valeurs de q, ils ont remarqué une deuxième décroissance en q^{-4}. Dans le cas d'une mousse sèche, Ils ont aussi observé un pic qui apparaît à un q intermédiaire vers 0.01 $Å^{-1}$. En même temps, il apparaissait sur le détecteur des pics d'une intensité qui varie radialement (cf. Figure 54.b). Ils ont attribué la forme de ce signal aux phénomènes de réflectivités sur les films.

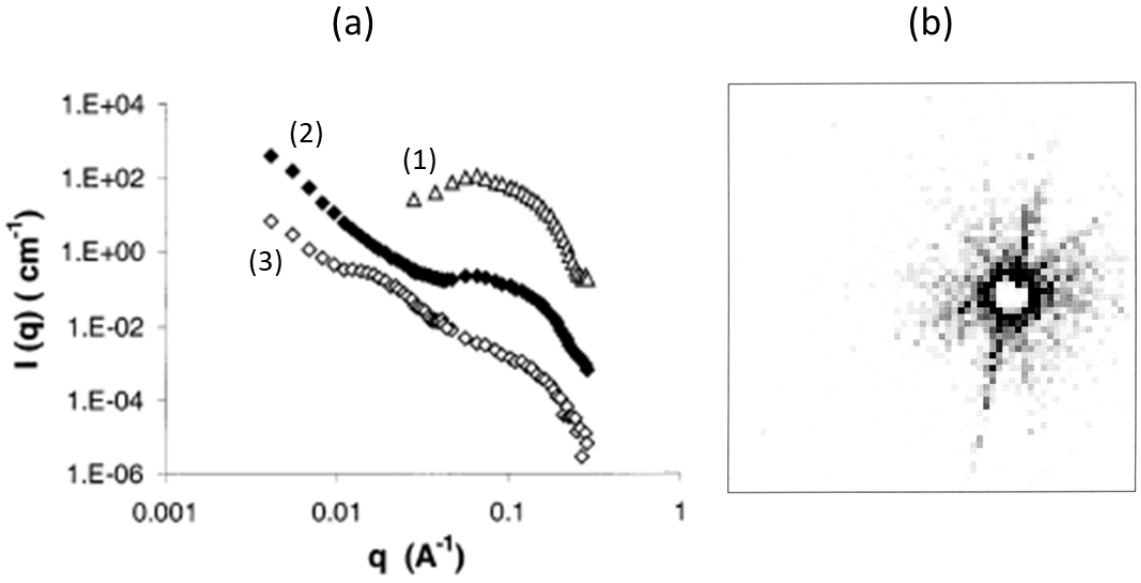


Figure 54 : (a) Signal d'intensité diffusée par les micelles de SDS (1), mousse à l'état stationnaire durant le bullage (2) et mousse pendant le drainage (3) (modifié de [117]). (b) Image de l'intensité mesurée sur un détecteur 2D pour une mousse très sèche. Les pics sont très visibles. (modifié de [117]).

Mikhailovskaya et al., [118] ont cherché à donner une interprétation générale aux intensités diffusées par une mousse *Bulk* à l'issue d'une expérience de SANS. Ils affirment qu'une multitude d'interactions existent entre le faisceau de neutrons et les interfaces des objets qui constituent la mousse (cf. Figure 56.b). Ces interactions peuvent rendre compte de phénomènes de diffusion ou de réflexion/réfraction sur les interfaces plates des films, si toutefois ces films existent. Notons que la mousse est formée de plusieurs interfaces de géométrie et structure variables. Selon que ces interfaces font partie d'un film fin (les lamelles typiquement) ou de surfaces libres (autour des bords de Plateau), le résultat du signal de diffusion n'est pas le même. En effet, on peut distinguer globalement deux types d'événements différents lorsque le rayon de neutrons arrive sur un élément de volume de la mousse (cf. Figure 56) :

- Les neutrons sont réfléchis par les interfaces air/liquide (cas (i)). Plus l'angle d'incidence est petit, plus la réflectivité est grande. Par conséquent, le phénomène de réflectivité est important en présence de surfaces plates et orientées de films liquides, comme dans le cas d'une mousse sèche. En revanche, ce phénomène est atténué lorsqu'on est en présence d'interfaces incurvées formées entre les bords de Plateau et les bulles, typiquement dans le cas d'une mousse humide.
- Les neutrons non réfléchis (i.e réfractés) sont diffusés par les (ii) films fins de liquide, par (iii) les interfaces libres (bords de Plateau) et par (iv) les objets présents dans la phase liquide (les micelles en particulier).

La diffusion et la réflexion par les films liquides fins sont difficilement dissociables à travers la seule étude des intensités diffusées. En effet, la deuxième décroissance en q^{-4} observée par Axelos et al., [117] (aux grands angles θ) et qui traduit un deuxième signal de Porod est en réalité une autre écriture de la loi de la réflectivité de Fresnel. Cette dernière s'applique lorsqu'on dépasse un certain angle d'incidence critique θ_c . Une partie du faisceau est alors réfractée puis réfléchie par le deuxième dioptre du film liquide (cf. Figure 55).

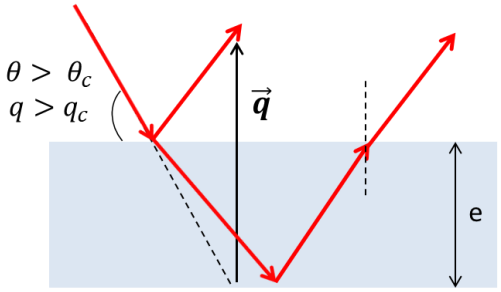


Figure 55 : Schéma de principe de réflectivité de Fresnel du faisceau de neutrons sur les films de mousse.

Les multiples réflexions sur les différentes interfaces plates des films liquides peuvent produire des interférences constructives, qu'on appelle les franges de Kiessieg et qui se traduisent par des oscillations (d'où les deux signaux de Porod) au niveau du signal d'intensité [120]. La largeur du pic (ou la période) serait reliée à l'épaisseur du film par la relation suivante :

$$e = \frac{2\pi}{\Delta q} \qquad \text{(III.17)}$$

Où e est l'épaisseur du film et Δq la période d'oscillation. En réalité, les films liquides ne sont jamais infiniment plat et possède une certaine courbure. A cause de ces courbures, la réflexion sur les films génère des « *spikes* » sur le détecteur 2D (cf. Figure 54.b) [118].

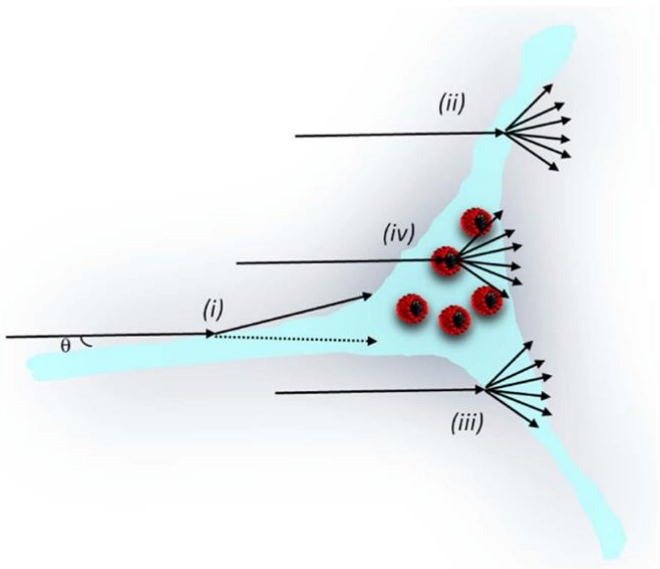


Figure 56 : (a) Signal d'intensité diffusée par les micelles de SDS (1), mousse à l'état stationnaire durant le bullage (2) et mousse pendant le drainage (3) (modifié de [117]).

(b) Schéma des interactions du faisceau avec la mousse : (i) réflexion du rayon par un film , (ii) diffusion issue des interfaces liquide/gaz au niveau des films liquides fins, (iii) diffusion des interfaces air/liquide au niveau des bords de Plateau, (iv) diffusion des micelles au sein du liquide [118].

II. Matériels et méthodes

Afin de pouvoir sonder la mousse dans des milieux poreux, il est nécessaire de bien choisir à la fois la matière solide qui sera utilisée pour former le milieu poreux et les fluides qui seront utilisés pour former la mousse *in situ*.

A. Travail préparatoire

1. Milieu granulaire

a) Choix du matériau

En diffusion des neutrons aux petits angles, on doit de préférence se ramener à un système constitué de deux densités de longueurs de diffusion pour pouvoir en caractériser les interfaces. L'utilisation d'un milieu poreux naturel (roche) est à éviter car sa composition minérale est rarement homogène. Un grès par exemple est majoritairement constitué de quartz mais contient aussi des traces d'autres minéraux comme les argiles, des feldspaths ou des oxydes. Il est donc préférable de travailler sur des milieux granulaires synthétiques réalisés à partir de matériaux purs. En plus, travailler avec des milieux poreux naturels nécessite le développement de cellules type « Hassler » avec des gaines de confinement qui ne diffusent pas les neutrons et qui résistent aux grandes pressions. Il est difficile de trouver de tels types de matériaux.

La silice fondue i.e amorphe (SiO_2 sous sa forme générique) est un matériau produit par fusion de la silice cristalline (quartz) à haute température. Ce matériau est adapté aux mesures SANS car il présente une densité volumique homogène et une faible absorption des neutrons (coefficient de transmission = 0.97 pour une épaisseur de 1mm) et surtout, il ne diffuse pas les neutrons car il est homogène à petite échelle. La silice fondue utilisée ici est fournie par Dupré Minerals avec une pureté garantie dépassant 99.8%.

La densité structurale mesurée à l'aide de la technique du pycnomètre (cf. Annexe F) donne une valeur de 2.23 g/cm^3 qui est très proche de la valeur théorique donnée dans la littérature et qui est de 2.196 g/cm^3 [121].

b) Préparation de milieux identifiés en taille

Afin d'obtenir des milieux poreux bien identifiés, les grains de silice ont été broyés et tamisés. Différentes classes granulométriques ont été séparées et contrôlées par micro-tomographie X.

(i) Étape de broyage

La silice est broyée par broyage planétaire, une catégorie de broyage à haute énergie. La machine utilisée pour cette opération est un équipement FRITSCH. Le procédé consiste à mettre les grains dans un récipient contenant des billes en oxyde de zirconium. Ensuite, le récipient est mis sous rotation rapide afin que les billes s'entrechoquent et cassent les grains.

(ii) Étapes de tamisage et lavage

Quatre distributions granulométriques (cf. Tableau 7), ont été choisies afin de générer des milieux poreux différents dans la cellule d'écoulement qui contiendra un empilement de ces grains. Le tamisage est réalisé à l'aide d'une tamiseuse à vibrations haute fréquence dans laquelle on a superposé différents tamis de tailles de mailles croissantes de bas en hau**t :** 32µm, 45µm, 71µm, 112µm et 150µm. Le tamisage dure au moins une heure. La silice est récupérée et le tamisage est répété au moins dix fois. A la fin, on récupère les grains dans chaque tamis et on les répartit par petites fractions dans des flacons puis on les lave à l'eau milli-Q à plusieurs reprises. L'étape de lavage consiste à ajouter de l'eau aux grains, agiter le flacon et éliminer, après sédimentation, les particules fines dans le surnageant en pipetant à l'aide d'une micropipette. Le lavage est répétée plus d'une dizaine de fois.

Nom granulométrie	Tailles cibles
A	32-45µm
B	45-71µm
C	71-112µm
D	112-150µm

Tableau 7 : Récapitulatif des lots de grains de silices préparées.

(iii) Étape de séchage

Les grains lavés sont mis dans des flacons en verre et séchés à l'étuve à 120°C pendant 48h.

c) Caractéristiques géométriques des grains préparés

La Figure 57 présente une micro-tomographie 3D réalisée sur une cellule SANS remplie de grains (taille de pixel égale à 1.1 µm) : à gauche, une représentation 3D en niveaux de gris, à droite une image 3D dans laquelle les grains ont été isolés et labellisés. Une fois les grains isolés, on peut faire une analyse statistique des caractéristiques des grains : calculer la surface et le volume de chaque grain, le diamètre équivalent des grains, leur surface spécifique et leur sphéricité (ces différents paramètres sont détaillés en Annexe G). Ces mesures ont été répétées pour les différents lots de grains préparés. Les volumes présentés sur la Figure 58 concernent la granulométrie D (112-150 µm). Les résultats pour les autres granulométries sont présentés en Annexe H.

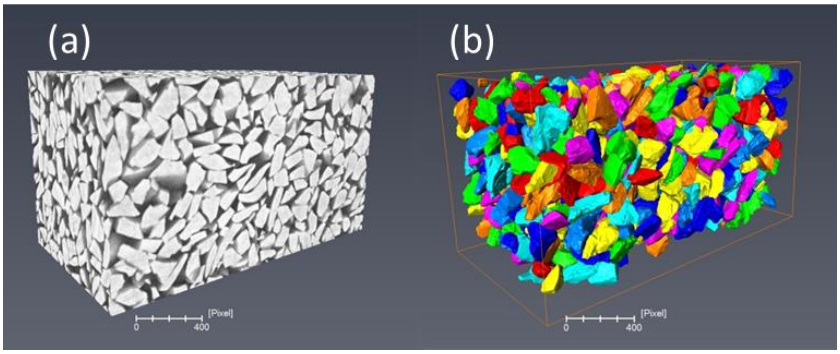


Figure 57 : (a) Image 3D des grains de silice et (b) reconstruction de la surface des grains après segmentation et séparation des grains. Taille pixel = 1.1 µm. Taille du volume = 1000 x 1000 x 1850 pixels^3.

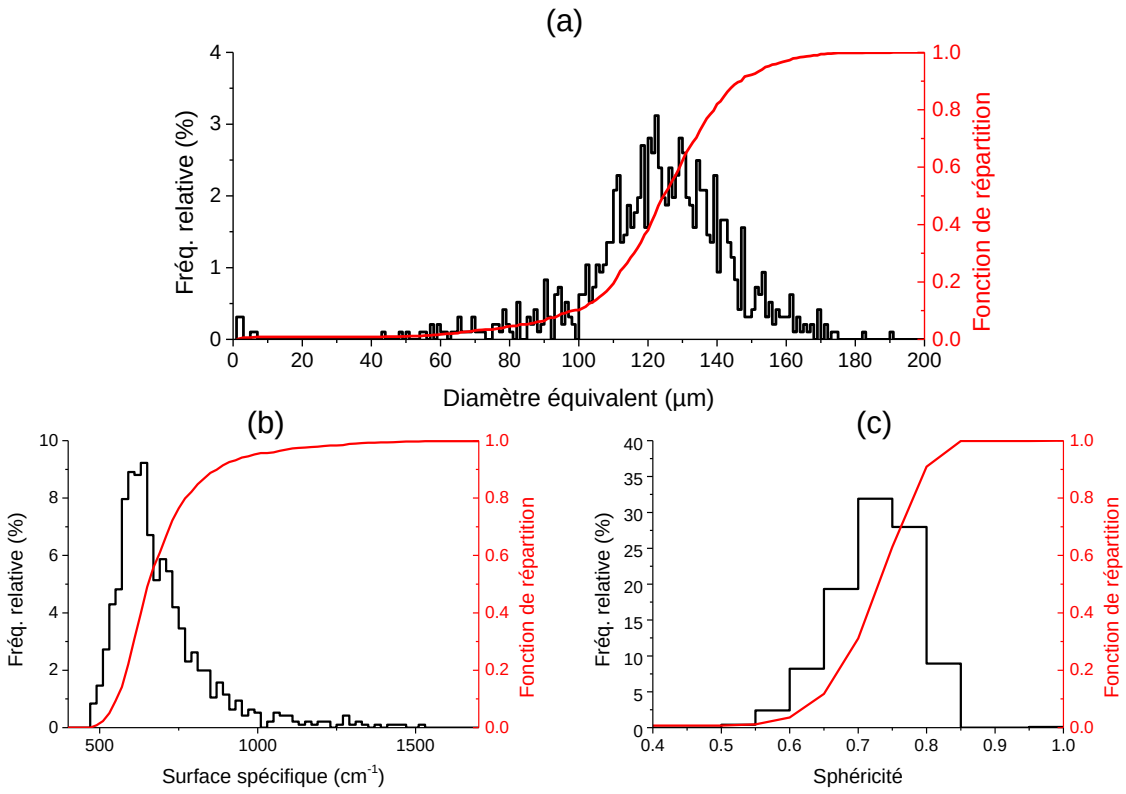


Figure 58 : Caractéristiques géométriques issues du traitement des images de µ-tomographie X sur les grains pour la granulométrie D (112-150) : Distribution statistique du (a) diamètre équivalent, (b) de la surface spécifique et (c) de la sphéricité.

On remarque que les diamètres équivalents des grains présentent une statistique proche d'une distribution gaussienne (cf. Figure 58.a). Pour cette granulométrie, la majeure partie des grains ont une taille qui se situe entre 112 et 150 µm ce qui correspond à la cible visée par tamisage (cf. Figure 58). On note que la distribution est un peu plus étalée autour de cette gamme-là. Les tailles qui s'en écartent peuvent s'expliquer par une séparation imparfaite des grains lors du traitement d'image, en particulier par la présence de quelques doublets visibles sur l'image (diamètre équivalent multiplié par un facteur racine cubique de 2 soit 1.25 qui conduit à un léger épaulement de la distribution entre 140 à 190 microns mais qui n'a aucune réalité physique). De même, une séparation trop poussée peut conduire à une population de petits grains sans réalité physique.

Les valeurs moyennes arithmétiques et les médianes du diamètre équivalent de grains, de la surface spécifique et de la sphéricité sont présentées dans le Tableau 8 ci-dessous. On remarque que les valeurs moyennes en diamètre équivalent tendent vers les valeurs définies par le tamis inférieur et ceci est d'autant plus vrai qu'on va vers des granulométries de petites

tailles (par exemple, la granulométrie B présente un diamètre équivalent moyen de 45 µm pour une distribution visée entre 45 et 71 µm). Ceci serait dû à la forme allongée des grains qui arrivent à traverser les pores du tamis (on remarque une sphéricité moyenne de 0.7), ce qui a pour conséquence de décaler la distribution vers les petites tailles et d'avoir une distribution plus large que les bornes définies par les tamis. Par ailleurs, et comme attendu, la surface spécifique qui définit le rapport de la surface totale des grains sur le volume étudié, augmente lorsqu'on va vers des petites granulométries.

	Diamètre équivalent (µm)		**Surface spécifique (cm^{-1})**		**Sphéricité**	
Granulométrie	**Moyenne**	**Médiane**	**Moyenne**	**Médiane**	**Moyenne**	**Médiane**
A (32-45µm)	37	36	2774	2591	0.6	0.6
B (45-71µm)	45	46	2561	1885	0.7	0.7
C (71-112µm)	80	78	960	1008	0.7	0.8
D (112-150µm)	123	124	860	654	0.7	0.7

Tableau 8 : Caractéristiques géométriques moyennes et médianes des grains pour les différentes granulométries.

2. Conception d'une cellule adaptée au rayonnement neutronique

a) La cellule SANS

La composition et le dimensionnement de la cellule sont des paramètres importants pour réussir une expérience de diffusion des neutrons aux petits angles. En effet, l'épaisseur de la matière traversée par faisceau doit être suffisamment grande pour maximiser le nombre de neutrons diffusés et assurer une bonne représentativité de la mesure, mais pas trop grande pour éviter une trop forte atténuation du faisceau et surtout éviter des diffusions multiples.

La cellule d'écoulement « cellule SANS » est présentée sur la Figure 59. Elle consiste en un tube central de silice fondue de 3 mm d'épaisseur et de 4.2 mm de diamètre interne. Le choix de ce diamètre impose de réduire le diamètre du faisceau incident de neutrons à une valeur de 0.4 cm. Ce dernier est habituellement de l'ordre de 1 cm^2. Par conséquent, un soin particulier doit être apporté au centrage de la cellule face au faisceau de neutrons et un temps de comptage plus grand est nécessaire pour optimiser l'acquisition. La longueur de la cellule est comprise entre 64 et 130 mm avec des embouts en PEEK en entrée (où peuvent s'insérer les clapets anti-retours comme pour la cellule Hassler (cf. Chapitre1)) et en sortie. Deux

piquages transversaux permettent d'insérer des connecteurs à l'entrée et à la sortie de la cellule pour réaliser des mesures de pression. Pour éviter que les grains ne bouchent les canaux d'écoulement, on utilise un tissu en nylon perméable et très fin de la marque SEFARNITEX®, avec une taille de maille calibrée de 15 µm. Cette cellule a été conçue pour travailler jusqu'à une pression limite de 30 bars.

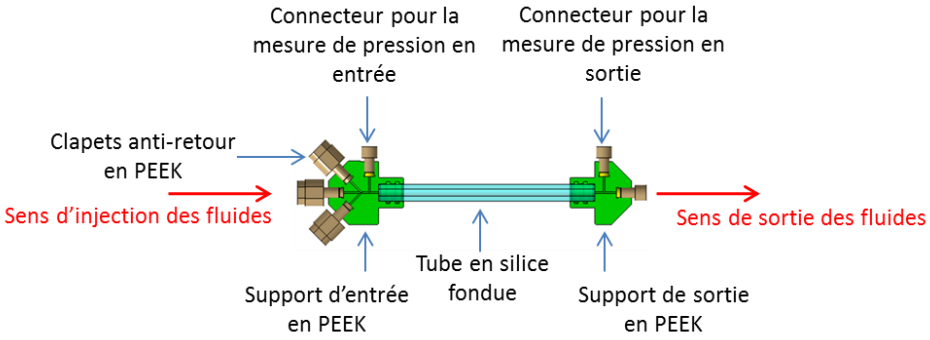


Figure 59 : Cellule d'écoulement utilisée pour les expériences de diffusion des neutrons aux petits angles.

b) Remplissage de la cellule et mesure de la porosité

La cellule est tenue verticalement lors du remplissage avec les grains. Ces derniers sont ajoutés en petites fractions puis tassés à l'aide d'une tige en verre. A chaque ajout, on fait vibrer la cellule pour améliorer la sédimentation des grains et leur répartition. La Figure 60 montre une photo de l'étape de préparation du milieu poreux.

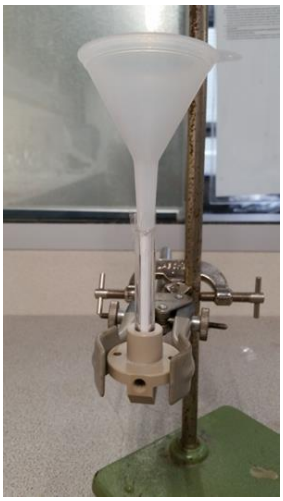


Figure 60 : Remplissage de la cellule avec les grains de silice.

La mesure de la porosité est réalisée par pesée en considérant le tube vide et le tube rempli d'un empilement de grains :

$$\Phi = 1 - \frac{m_g}{V_{tu} d_g} \qquad \text{(III.18)}$$

Où V_{tu} est le volume du tube, m_g la masse des grains qui remplissent le tube et d_g la densité de grains.

3. Détermination expérimentale de l'optimum pour le contrast matching

L'utilisation de la technique de *contrast matching* dans le cas des écoulements en milieux poreux n'est pas classique. Des études SANS sur des milieux poreux ont été réalisées par le passé mais dans des cas statiques où on s'intéressait à la mesure de la porosité [122][123] ou plus récemment dans une étude de mélanges de liquides confinés [124]. D'autres études SANS ont été réalisées sur les écoulements de fluides dans des puces micro-fluidiques [125, 126]. Aucune étude n'est reportée sur l'étude d'écoulement en milieu poreux 3D.

Par ailleurs, la mousse liquide est formée de 2 phases : le liquide contenant le tensioactif et la phase gazeuse. A cela se rajoute la phase solide du milieu poreux. Ainsi, dans le cas des mousses dans les milieux poreux, le faisceau de neutrons doit traverser au total 3 phase**s :** les grains de silice, le gaz, et la solution liquide contenant les tensioactifs. Dans ce cas de figure, et même en considérant une mouillabilité parfaite de la surface de la silice par le liquide, il existe plus d'une seule interface qui peut diffuser : gaz/liquide, liquide/solide, tensioactif/gaz, tensioactifs/liquide (cf. Tableau 9 ci-dessous). Ainsi, si on veut se ramener au seul type d'interface gaz/liquide que forme la mousse, il est nécessaire d'éteindre le signal de diffusion des autres interfaces.

Le signal de diffusion issu de l'interface entre le solide et la phase liquide formé de molécules d'eau peut être éliminé en rajoutant une fraction volumique adéquate d'eau lourde D_2O à la solution liquide de H_2O contenant les tensioactifs. Ceci permet de *matcher* la phase liquide à la phase solide. Du point de vue des neutrons, ceci permet de réduire notre système formé de 3 phases à uniquement 2 phases (cf. Figure 61).

En réalité, la présence de molécules de tensioactifs crée aussi un contraste entre la solution liquide et les micelles qui se forment en solution car la mousse est générée à l'aide d'une solution contenant une concentration de tensioactifs supérieure à la CMC. Idéalement l'utilisation d'un tensioactif deutéré dans les bonnes proportions de *match* de la phase micellaire avec le solvant liquide est préconisée pour s'affranchir du signal de diffusion des micelles. Toutefois, il est possible de minimiser le signal des micelles en réduisant leur quantité (cf. équation (III.9)). En pratique, cela est difficile, car il faut mettre suffisamment de tensioactifs pour accroitre le caractère moussant de la solution. Or, l'augmentation de la concentration en tensioactifs accroît la présence de micelles en solution. Dans notre cas, nous avons utilisé un tensioactif non deutéré (SDS) et la formation de micelles devra être pris en compte dans l'interprétation des spectres SANS [117].

Molécule	**Masse molaire (g/mol)**	**Densité (g/cm^3)**	**SLD (cm^{-2}x 10^{10})**
D_2O	20	1.1	6.39
H_2O	18	1	-0.561
Sodium dodecyl sulfate SDS (tensioactif)	288.4	1	0.337
SiO_2(Silice amorphe)	60	2.2	3.48
Gaz N_2 (1bar, 20°C)	28	$4.6\ 10^{-9}$	~ 0

Tableau 9 : Densités de longueur de diffusion (SLD) pour différentes molécules. Les SLD sont calculées à l'aide du logiciel SASview [116].

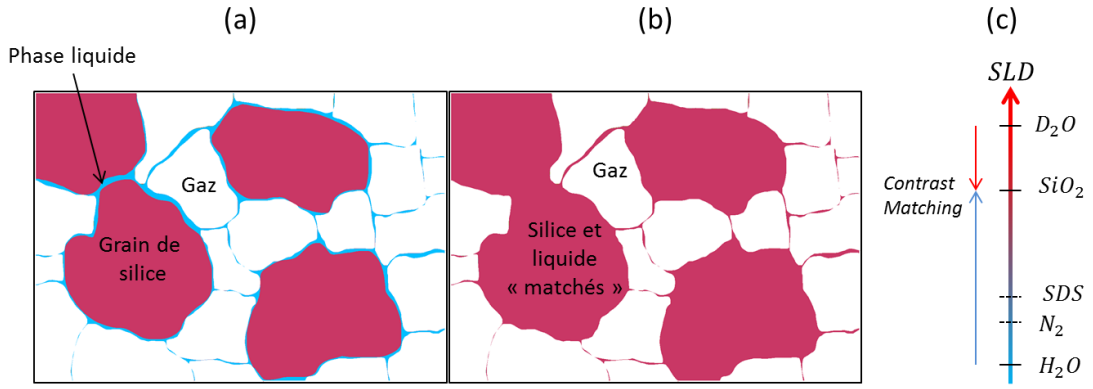


Figure 61 : Principe du *contrast matching* : Schéma représentatif de la mousse en milieu poreux avant (a) et après (b) «*contrast matching*». (c) Illustration des niveaux de densité de longueur de diffusion pour les éléments présents dans notre système .

Pour déterminer expérimentalement la fraction optimale de D_2O dans H_2O et masquer tous les contrastes indésirables, souvent on mesure le signal de diffusion de différents mélanges d'eau H_2O et d'eau lourde D_2O. On utilise généralement des cuves de silice fondue (type cuves HELLMA®) remplies de ces mélanges. Cette méthode est couteuse en temps de préparation et de mesure. Nous avons testé dans le cadre des écoulements une nouvelle approche pour détecter les conditions de « *match* » en continu. Cette approche nous permet de :

- Vérifier l'annulation du signal en condition de « Match » pendant l'écoulement continu de l'eau et de l'eau lourde dans un milieu poreux de grains de silice
- S'assurer de l'absence de bulles lors de la saturation du milieu
- Mesurer la fraction d'eau et d'eau lourde (H/D) relative en conditions de « match »

a) Expérience

Le milieu granulaire utilisé lors de cette expérience est le milieu granulaire D (112-150 µm). Pour ce milieu poreux on trouve une porosité de 41.4%. On co-injecte directement H_2O avec une pompe Vindum et D_2O avec une pompe Pharmacia dans le milieu poreux à différents débits. Un premier ensemble de co-injections a été réalisé d'abord avec une contre-pression de 10 bars puis avec une contre-pression de 1 bar (cf. Figure 62.a et Figure 62.b). Lors de cette expérience, nous avons fait varier Φ_H entre 0.2 et 1 en faisant varier les débits de l'eau et de l'eau lourde et en maintenant le débit total à une valeur constante de 60 mL/h.

Le tube de la cellule possède une longueur de 6.4 cm. Seuls les ports d'injection et de sortie sont ouverts, tous les autres connecteurs étant fermés (on ne réalise pas de mesures de pression).

La fraction volumique H_2O injectée est définie par la formule suivante :

$$\Phi_H = \frac{Q_{H_2O}}{Q_{H_2O} + Q_{D_2O}} \qquad \text{(III.19)}$$

Où Q_{H_2O} et Q_{D_2O} représentent les débits volumiques de H_2O et de D_2O respectivement.

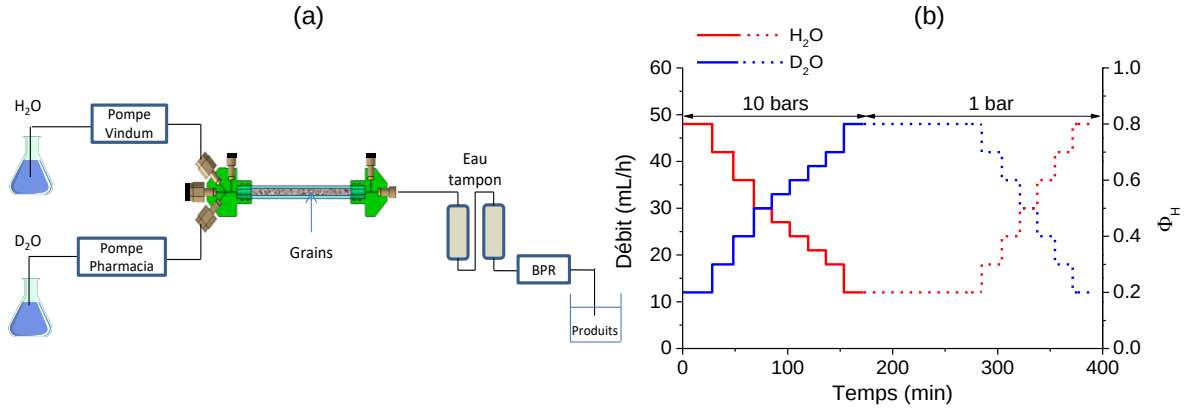


Figure 62 : (a) Montage expérimental utilisé pour l'expérience de contrast matching et (b) Évolution des débits de H_2O et de D_2O pendant l'expérience.

b) Paramètres d'acquisition pour l'optimisation du contrast matching

Les mesures SANS ont été réalisées au laboratoire Léon Brillouin au CEA à Saclay (LLB) sur le spectromètre nommé PACE lié au réacteur Orphée. Il s'agit d'un spectromètre qui possède une distance échantillon-détecteur maximale de 5m et un détecteur de 30 anneaux concentriques de 1 cm d'épaisseur chacun. Le domaine de q accessible est compris entre 2.10^{-3} Å^{-1} et 0.5 Å^{-1}.

La cellule de longueur 6.4 cm est insérée dans un porte-échantillon à l'aide de deux entretoises qui traversent les embouts en PEEK de la cellule. Ce porte échantillon est ensuite posé sur la plateforme motorisée qui sert de support au porte-échantillon. Dans notre cas, les

mesures ont été réalisées sur une seule gamme[4] de q (une seule configuration) entre 7.10^{-3} Å^{-1} et 7.10^{-2} Å^{-1}. Pour atteindre cette gamme de q, nous avons choisi une distance entre l'échantillon et le détecteur égale à 4.7 m et nous avons travaillé à une longueur d'onde de 6 Å. Un diaphragme de 4 mm a été utilisé pour avoir un faisceau de taille inférieure au diamètre interne de la cellule.

Après avoir centré le faisceau sur la cellule, des mesures de transmissions et de diffusion ont été réalisées pour chaque couple de débits. Le faisceau incident a été positionné à mi-chemin entre l'entrée et la sortie comme cela est schématisée sur la Figure 63. Le temps de mélange entre H_2O et D_2O à chaque palier avant la prise de mesure vaut 4 min. Le Tableau 10 ci-dessous, résume les conditions opératoires de cette expérience.

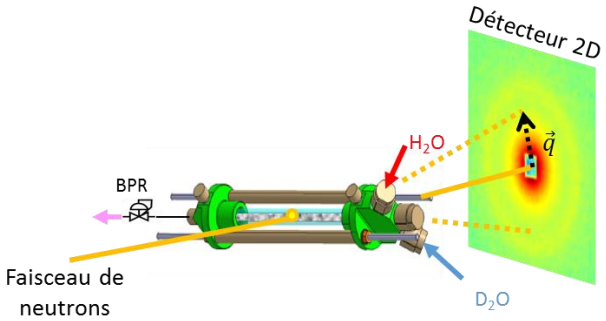


Figure 63 : Schéma de l'expérience de diffusion des neutrons avec la cellule d'écoulement.

Config	**Diamètre faisceau (mm)**	**λ (Å)**	**Distance échantillon -détecteur (m)**	**Gamme en q(Å^{-1})**	**Temps de mélange (min)**	**Temps de comptage Transmission (min)**	**Temps de comptage Diffusion (min)**
Une seule	4	6	4.7	7.10-3 → 7.10-2	4	2	10

Tableau 10 : Récapitulatif des conditions d'acquisition sur le spectromètre PACE pour l'expérience de *contrast matching*.

[4] Le choix de travailler avec une seule gamme provient du fait que l'expérience a eu lieu en fin de cycle des opérations du réacteur nucléaire Orphée. Travailler sur deux gammes de q aurait nécessité plus de temps d'expériences et donc moins de points de mesures.

c) Détermination de la limite de linéarité

Dans un premier temps, on s'intéresse à décrire l'évolution de la transmission en fonction de la fraction H_2O injectée. Ceci permet de connaître la limite de linéarité de notre système d'une part et de mesurer un coefficient d'atténuation des neutrons d'autre part. A partir de la loi de Beer-Lambert, on peut calculer la transmission de l'échantillon T à l'aide de l'équation suivant**e :**

$$T = \frac{I}{I_0} = e^{-(\mu_{H/D} x_{H/D} + \mu_s x_S + \mu_t x_t)} \quad \text{(III.20)}$$

Où I et I_0 représentent les faisceaux transmis et incident respectivement. $\mu_{H/D}$, μ_S, μ_t représentent les coefficients d'atténuations linéaires de la phase liquide, de la silice et du tube[5] respectivement. $x_{H/D}$, x_S, x_t sont les distances traversées de la phase liquide, de la silice et du tube respectivement.

On peut alors déduire la forme logarithmique de la transmission qui permet d'exprimer le coefficient d'absorbance selon l'équation suivante :

$$A = -\ln(T) \quad \text{(III.21)}$$

Les variations de l'absorbance et de la diffusion incohérente en fonction de Φ_H sont données en Figure 64.a et Figure 64.b. On remarque que les deux courbes sont quasi-linéaires jusqu'à une certaine fraction volumique de H_2O estimée dans notre cas à environ 0.5. La déviation de la courbe à la linéarité est due principalement aux phénomènes de diffusions multiples et de diffusion incohérente, qui deviennent prépondérants lorsque la fraction d'hydrogène dans notre échantillon augmente. Il est important de noter que la présence de mousse en milieu poreux génère des fractions liquides généralement faibles, bien en dessous de 0.5 pour la plupart des qualités de mousses. Ceci nous a permis de valider la géométrie de notre cellule pour l'étude des mousses en milieux poreux.

[5] La transmission du tube seul vaut environ 0.88

A partir du domaine linéaire de la Figure 64.a, on peut calculer un coefficient d'atténuation linéaire $\mu_{H/D}$ en tenant compte de la porosité du milieu poreux et du diamètre interne du tube selon l'équation suivante :

$$\mu_{H/D} = \frac{\frac{\Delta[-\ln(T)]}{\Delta\Phi_H}}{\Phi * D_{int}} \quad \text{(III.22)}$$

On trouve une valeur de $\mu_{H/D} = 0.388 \pm 0.045\ mm^{-1}$.

La limite de linéarité nous permet aussi d'estimer un trajet optique équivalent à une longueur limite d'eau au-delà de laquelle il apparaît le phénomène de multidiffusion qui crée des non linéarités :

$$l_{lim} = \Phi_H^l\ D_{int}\ \Phi \approx 0.87\ mm \quad \text{(III.23)}$$

Où Φ_H^l= 0.5, $\Phi = 41.4\%$ et D_{int} = 4.2 mm.

Le phénomène de multidiffusion traduit la probabilité qu'un neutron soit diffusé plus d'une fois. Or il est impossible de déterminer les angles de diffusion des neutrons qui ont subi plusieurs diffusions au sein de l'échantillon et ceci est d'autant plus vrai que l'épaisseur de l'échantillon est grande [110]. En effet, en présence de la multidiffusion, on ne peut associer à un angle d'observation donné un vecteur d'onde unique. En travaillant dans le domaine de linéarité des courbes des Figure 64.a et Figure 64.b, on s'assure que ce phénomène est réduit. En plus, l_{lim} nous renseigne sur l'épaisseur maximale d'eau que doit traverser le faisceau neutron. Dans le cas des écoulements de mousses dans un milieu poreux, le gaz occupe une bonne partie du volume poreux, comme cela a été démontré à travers les mesures de saturations de gaz dans le chapitre 2. Ainsi, si on considère par exemple un milieu poreux homogène de 41% de porosité avec une saturation de gaz entre 80 et 95%, la longueur maximale d'eau traversée dans le volume poreux se situerait entre 8 et 344 µm. Des valeurs qui restent bien en dessous de l_{lim}. Si en plus, on rajoute de l'eau lourde dans la phase liquide de la mousse, on serait capable de réduire encore plus les longueurs réelles d'eau H_2O traversée par le faisceau de neutrons et donc d'atténuer fortement le phénomène de multidiffusion des neutrons.

Par ailleurs, on remarque que la pression de pore a peu d'influence sur les courbes tracées qui se superposent. En effet, le liquide est peu compressible et donc le signal de diffusion reste quasiment inchangé. Ceci permet aussi de valider l'absence de bulles pendant l'écoulement d'une phase liquide homogène dans le milieu poreux.

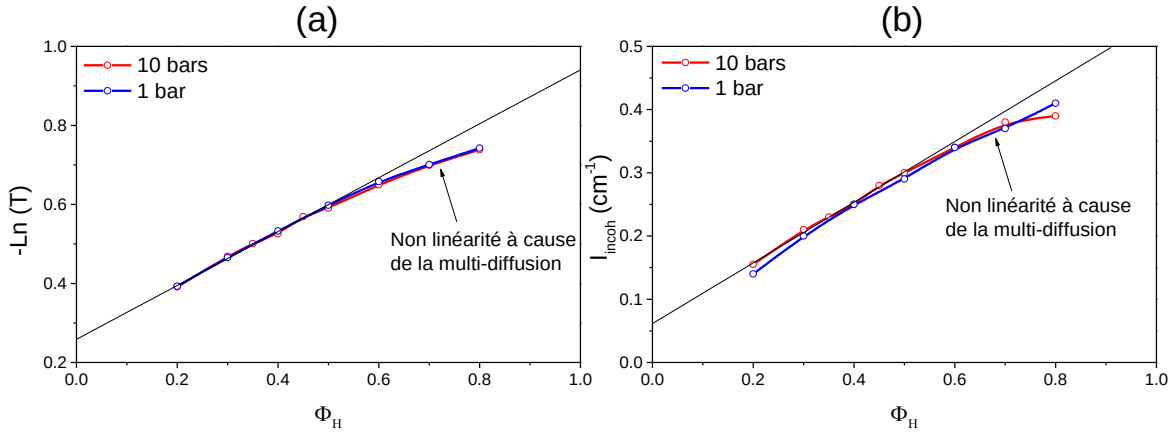


Figure 64 : Mesure de (a) la transmission et de (b) l'intensité de diffusion incohérente I_{inc} en fonction de la fraction de H_2O, Φ_H. L'intensité incohérente correspond au fond plat du signal de diffusion à grands q.

d) Variation du facteur de Porod en fonction de la fraction H/D

Les spectres de diffusion mesurés lors des expériences de *contrast matching* sous écoulement sont présentés dans la Figure 66. Il s'agit de l'intensité calculée après avoir soustrait la diffusion du tube vide seul et après normalisation par les mesures de transmission et le diamètre interne de notre cellule pour obtenir une échelle en cm^{-1}. Toutes les courbes vérifient la loi de Porod (cf. équation (III.14)), avec un palier aux grands q qui représente la diffusion incohérente. La partie de la diffusion cohérente en q^{-4} décrit les interfaces lisses entre le liquide et les grains de silice.

La Figure 67 représente la variation du facteur de Porod A en fonction de la fraction Φ_H pour les deux contre-pressions 1 et 10 bars. Nous remarquons qu'il n'existe pas de différences significatives entre les courbes à 1 bar et à 10 bars. Le préfacteur A suit une fonction parabolique en fonction de Φ_H pour les deux contre-pressions. En effet, d'après l'équation (III.15), le facteur de Porod s'écrit dans ce cas particulier :

$$A = 2\pi \frac{S}{V} (SLD_{SiO_2} - SLD_{mel})^2 \qquad \text{(III.24)}$$

Où SLD_{SiO_2} est la longueur de diffusion neutronique de la silice et SLD_{mel} a été décrite dans l'équation (III.10). Or la somme des fractions de H_2O et de D_2O dans la phase liquide est définie par l'équation du bilan :

$$\Phi_H + \Phi_D = 1 \qquad \text{(III.25)}$$

Où Φ_H et Φ_D représentent les fractions volumiques de l'eau et de l'eau lourde respectivement. Ainsi, en développant l'équation (III.24) et en utilisant l'équation (III.25), le facteur de Porod devient :

$$A = 2\pi \frac{S}{V}(SLD_H + SLD_D)[\Phi_H - \beta]^2 \qquad \text{(III.26)}$$

Où

$$\beta = \frac{SLD_{SiO_2} + SLD_D}{SLD_H + SLD_D} \qquad \text{(III.27)}$$

L'ajustement des données représentées sur la Figure 67 a permis d'estimer les deux équations suivantes :

$$\mathrm{A}(\Phi_H) = 4.28\ 10^{-7}\ (\Phi_H - 0.39)^2 + 0.61\ 10^{-8} \text{ (à 1 bar)} \qquad \text{(III.28)}$$

$$\mathrm{A}(\Phi_H) = 4.12\ 10^{-7}(\Phi_H - 0.38)^2 + 0.55\ 10^{-8} \text{ (à 10 bars)} \qquad \text{(III.29)}$$

De ces courbes, on estime que le minimum de A est observée pour une valeur de Φ_H qui vaut 0.385 et qui représente la fraction idéale de H_2O dans les conditions de *match* pour notre silice. Dans des conditions de *match* idéales, le facteur A est nul. On remarque que le signal de diffusion cohérente n'a pu être annulé complètement quelque-soit le rapport H_2O/D_2O. Au minimum, le facteur de Porod vaut $A_m = 5.3\ 10^{23}\ cm^{-5}$. Cet excès de diffusion aux conditions de *match* pourrait être expliqué à travers deux hypothèses :

- **H-1)** La présence de fissures sur les grains de silice initiées au moment du broyage. Des images en microscopie électronique à balayage montrent l'existence de ces petites fissures sur la surface externe des grains (cf. Figure 65.a). Toutefois, ces

mêmes images montrent une structure très dense de la silice. Les fissures observées sont généralement localisées en périphérie des grains et restent négligeables. Dans le cas où l'eau ne mouille pas correctement ces fissures, les micro-interfaces silice/air peuvent diffuser.

- **H-2)** La présence de microcavités dans quelques grains de silice et qui ont été révélées à l'aide de la micro-tomographie à rayons X (cf. Figure 65.b). A l'aide de ces images, nous avons pu estimer que la présence de ces cavités internes au sein même de la phase solide est de moins de 0.1% du volume total des grains.

Toutefois, il faut bien souligner que cet excès de diffusion reste négligeable devant les mesures de diffusion en présence de mousse, comme on pourra le voir dans la section III. Et qu'il suffit de soustraire ce signal représentant cet excès de diffusion pour extraire l'information utile sur la structure de la mousse dans le milieu poreux.

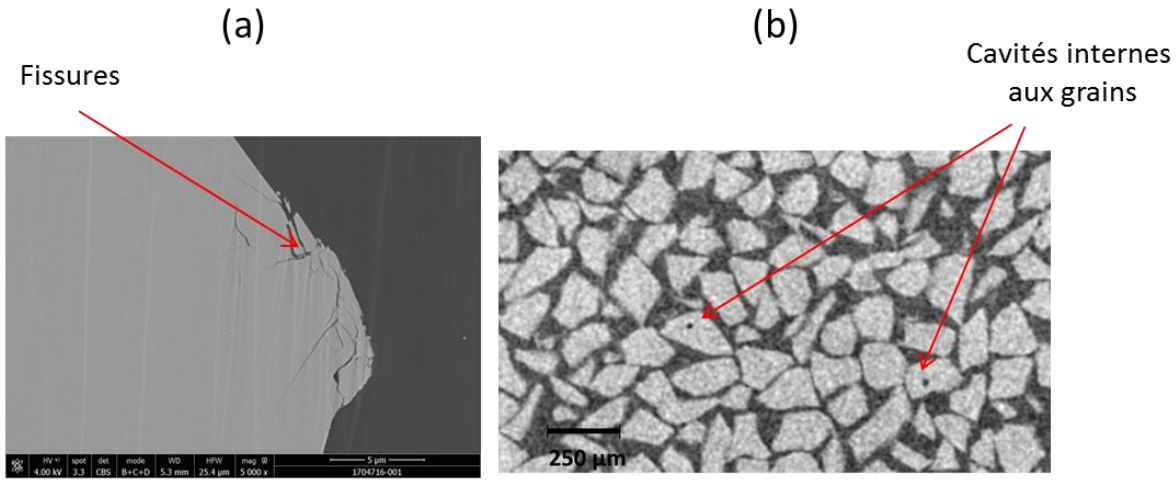


Figure 65 : (a) Image de la surface des grains par microscopie électronique à balayage montrant les fissures (Barre d'échelle 5 µm) et (b) coupe longitudinale d'une tomographie sur les grains montrant les cavités internes aux grains (Barre d'échelle 250 µm).

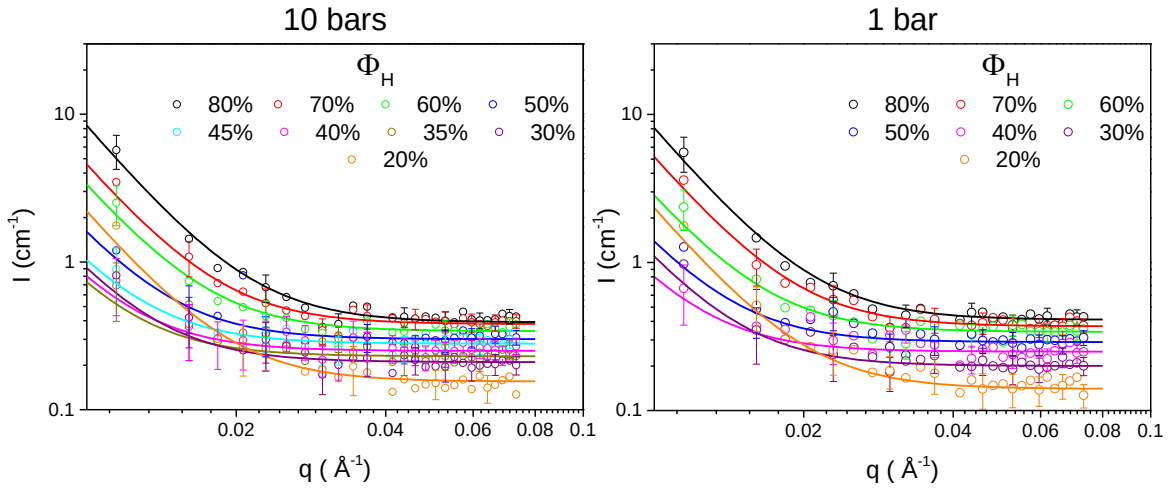


Figure 66 : Spectres d'intensités $I(q)$ mesurées pendant l'expérience de contrast matching à 1 bar et à 10 bars.

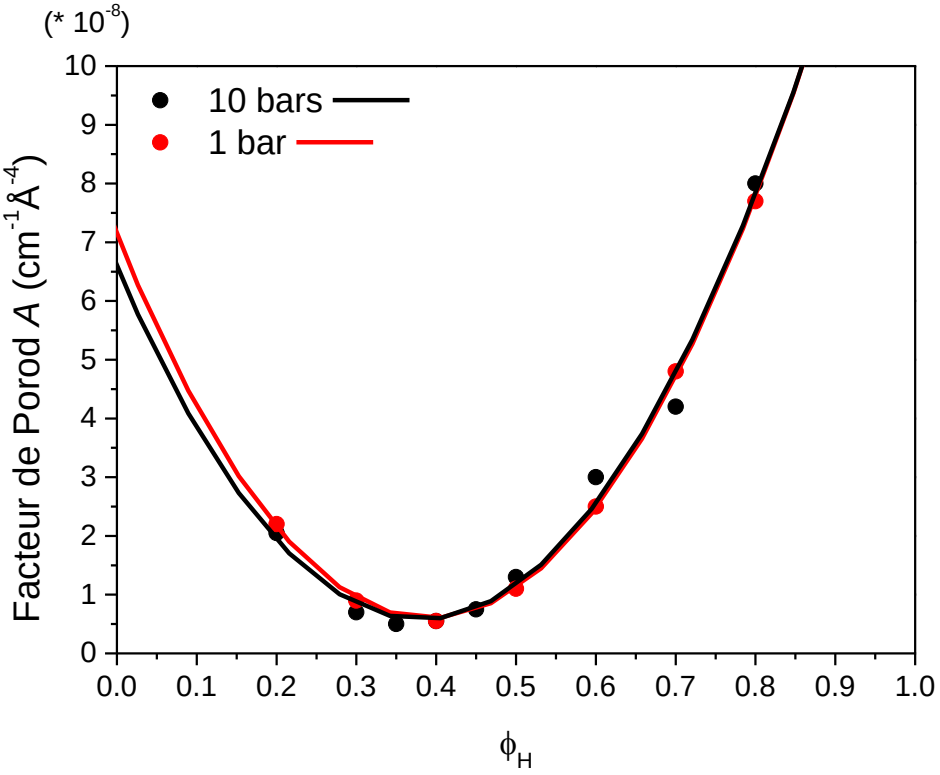


Figure 67 : Variation du facteur de Porod A en fonction de Φ_H.

B. Expériences d'écoulement de mousses sous acquisitions SANS

1. Choix de la formulation de tensioactifs

Pour les écoulements de mousse en milieu poreux, nous avons choisi le tensioactif SDS (Sodium Dodecyl Sulfate) dont la formule chimique est représentée sur la Figure 68.b. Ce tensioactif a été utilisé plusieurs fois dans les expériences de diffusion des neutrons aux petits angles et notamment pour l'étude des mousses *Bulk* [117, 120, 127]. D'autres auteurs [113, 128, 129] ont largement étudié, les micelles de SDS en solution à l'aide de la diffusion aux petits angles (cf. Annexe I pour la description des phases micellaires du SDS). Le SDS que nous avons utilisé provient de Fisher Scientific et se présente sous la forme d'une poudre blanche. Il a été utilisé sans aucun prétraitement. Afin de déterminer la CMC, nous avons utilisé la méthode de la lame de Wilhelmy (présentée dans le chapitre 2). Les mesures ont été réalisées pour trois salinités en NaCl : 0%, 0.2% et 0.5% en masse (cf. Figure 68.a). A ces concentrations de salinité très proches, la valeur de la CMC est quasi-constante et vaut 0.1% en masse. Afin de favoriser la moussabilité de la solution, nous avons travaillé à une concentration cinq fois supérieure à la CMC. Il faut noter qu'à cette concentration, les mesures SANS font apparaître le signal des micelles de manière inévitable aux grandes valeurs de q. Le Tableau 11 récapitule les paramètres physico-chimiques caractéristiques de la solution utilisée.

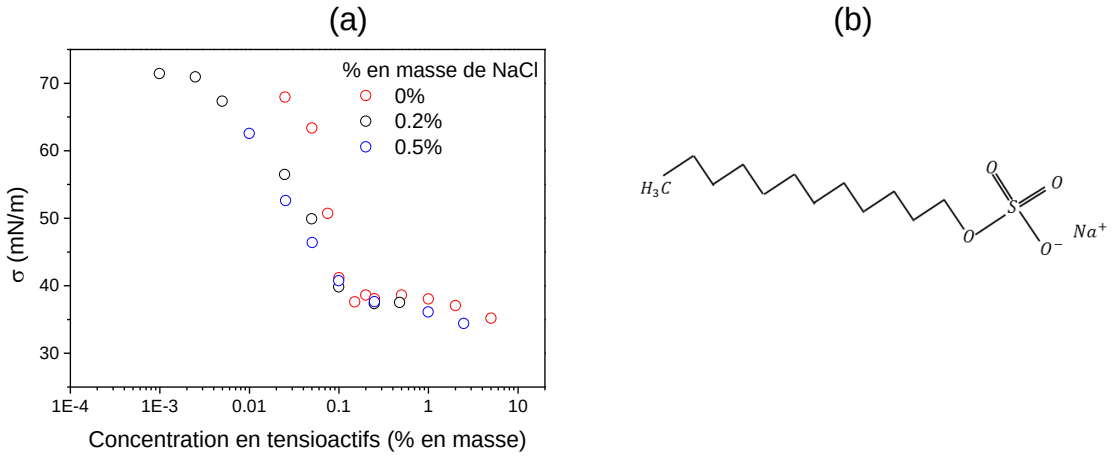


Figure 68 : (a) Tension de surface en fonction de la concentration en tensioactifs SDS à différentes salinités et (b) formule chimique de la molécule de SDS.

Formulation	Concentration en tensioactifs (% en masse)	C/CMC	Salinité (% en masse de NaCl)	Tension de surface (mN/m)	Utilisation dans la thèse
SDS	0.5%	5	0.2%	37.5	Chapitres 2 et 3

Tableau 11 : Formulation utilisée pour les écoulements de mousse en milieu poreux sous acquisition SANS.

2. Montage expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est celui qui a été présenté dans le chapitre 2 dans lequel on a remplacé la cellule Hassler par la cellule SANS (cf. Figure 69). La seule différence est que nous n'avons pas eu besoin d'appliquer une pression de confinement sur le milieu poreux (car il s'agit d'un milieu inconsolidé). Le gaz utilisé pour la formation de la mousse est de l'azote N_2. La solution de tensioactifs est injectée à l'aide d'une pompe Vindum, tandis que la solution de référence à base de saumure NaCl à 0.2% en masse est injectée avec une pompe Pharmacia. Le gaz est injecté à l'aide du débitmètre massique Brooks modèle SLA5850S.

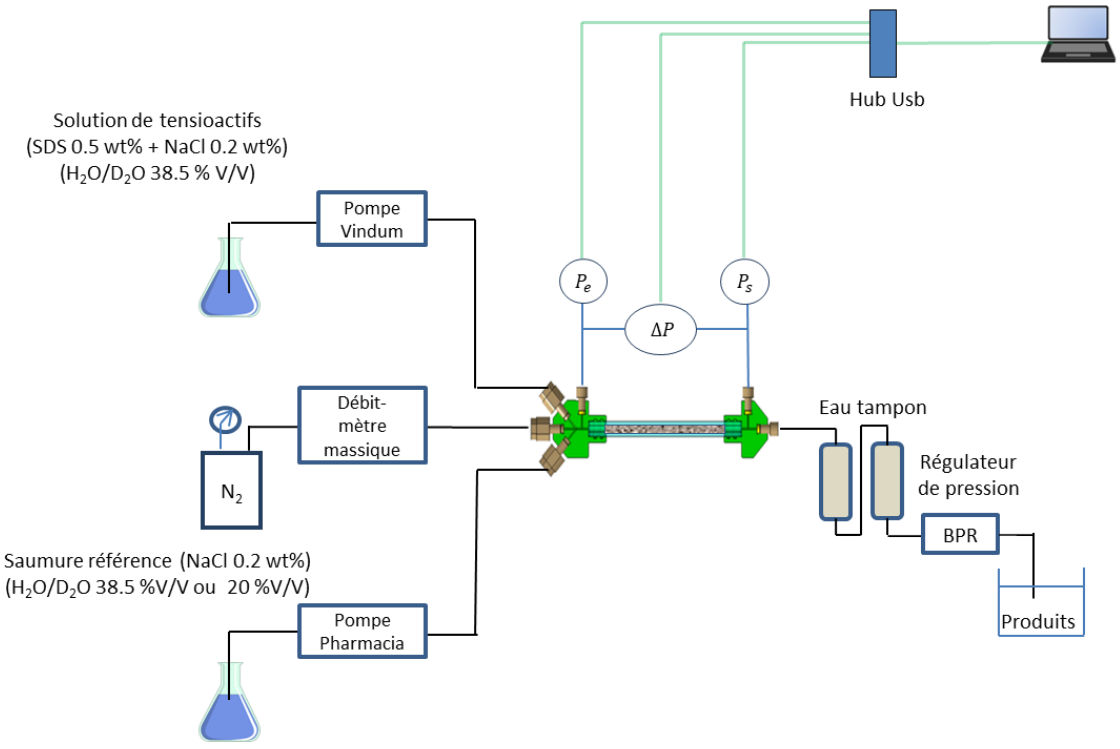


Figure 69 : Montage expérimental utilisé pour l'injection des mousses dans les cellules SANS.

3. Description des expériences

Les acquisitions de spectres de diffusion de neutrons aux petits angles pendant les écoulements de mousse ont été réalisées avec les milieux granulaires C (71-112 µm) et D (112-150 µm) à une vitesse interstitielle totale de 241 µm/s. Ces granulométries ont été choisies à la suite de plusieurs tests d'écoulement de mousse dans les différents milieux granulaires qui ont montré que les petites granulométries A (32-45 µm) et B (45-71 µm) engendraient des pressions d'écoulement qui dépassaient les pressions de sécurité admises par la cellule et le montage expérimental (cf. Annexe J). Nous avions une deuxième contrainte imposée par la durée des RUN limitée dans le temps. Nous avons bénéficié en effet d'un temps de 4 jours sur le spectromètre de la ligne PAXY au LLB à Saclay et de 2 jours sur le spectromètre de la ligne D22 de l'ILL à Grenoble. Le choix des conditions expérimentales et la répartition des expériences s'est fait en fonction du temps de faisceau alloué sur chaque instrument. Ainsi, l'objectif des expériences au LLB était de suivre de manière temporelle la variation de la texture de la mousse à une position donnée de la cellule et de tester différentes qualités de mousse. Pour cette expérience, nous avons utilisé la granulométrie C (71-112 µm). Tandis que l'objectif des expériences à l'ILL était de mesurer la texture de mousse à différentes positions spatiales de l'entrée vers la sortie du milieu poreux. Le milieu granulaire utilisé pour l'expérience à l'ILL est le milieu D (112-150 µm) (cf. Tableau 12).

Les deux milieux poreux sont préparés de la même manière par tassage de grains dans la cellule SANS. Ces deux milieux possèdent des porosités assez proches ; 45.2% $\pm$ 2.4% pour le milieu LLB et 40.4% $\pm$ 2.2% pour le milieu ILL. En revanche, la mesure de perméabilités sur les deux milieux poreux avec une solution aqueuse de 0.2% en masse de NaCl montre une perméabilité 2.7 fois plus grande pour le milieu LLB que pour le milieu ILL. En effet avec des grains de petites tailles (Expérience LLB) on crée des seuils de pores de plus petites tailles (Loi de Kozeny-Carman [130]).

Instrument	**Longueur de cellule (cm)**	**Caractéristiques du milieu poreux**		
		Granulométrie	**Perméabilité (saumure) (D)**	**Porosité par pesée**
PAXY (LLB)	6.4	C	4. 00 $\pm$0.15	45.2% $\pm$ 2.4%
D22 (ILL)	13	D	10.8$\pm$ 0.6	40.4% $\pm$ 2.2%

Tableau 12 : Caractéristiques des cellules et des milieux poreux utilisés pour les expériences SANS.

a) Expérience sur la ligne PAXY (LLB)

Le spectromètre nommé PAXY (cf. Figure 70.a) est une des lignes dépendantes du réacteur nucléaire Orphée d'une puissance thermique de 14 MW. Il est doté d'un multi détecteur à deux dimensions d'une surface utile de 64x64 cm^2 qui se compose de 15500 cellules de 5x5 mm^2. PAXY est destiné aux expériences de diffusion aux petits angles qui requièrent une grande résolution en vecteur de diffusion, dans le domaine 3.10^{-3} $Å^{-1}$ à 1 $Å^{-1}$. Il peut être utilisé pour les études de structures périodiques à grands paramètres ou pour la diffusion, isotrope ou anisotrope, aux petits angles [131].

Dans notre configuration, la section du faisceau (0.125 cm^2) a été limitée en plaçant un diaphragme de 4 mm de diamètre juste devant l'échantillon. La longueur d'onde utilisée est de 6 Å. La distance échantillon-détecteur était de 6.7m pour les petits angles où la gamme de q sondée va de $8.10^{-3}Å^{-1}$à 7.10^{-2} $Å^{-1}$, tandis que la distance échantillon-détecteur était de 1.5 m pour les grands angles où la gamme de q sondée va de $3.10^{-2}Å^{-1}$à $0.25Å^{-1}$. Un récapitulatif des conditions d'acquisitions est présenté dans le Tableau 13. Les acquisitions sont réalisées en centrant le faisceau de neutrons sur la partie centrale de la cellule (à environ 3.2 cm de l'entrée de la cellule) (cf. Figure 70.b). La cellule a été immobilisée pendant toute la manipulation.

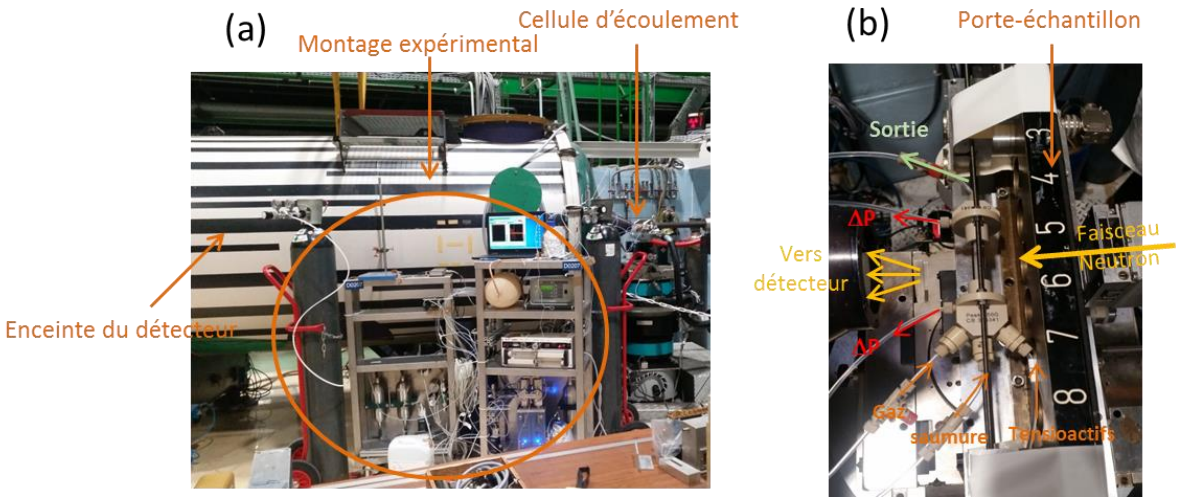


Figure 70 : (a) Photo du montage expérimental sur la ligne PAXY et (b) photo de de la cellule d'écoulement mise en place.

Config	**Diamètre faisceau (mm)**	**λ (Å)**	**Distance échantillon -détecteur (m)**	**Gamme en $q(Å^{-1})$**	**Temps de comptage Transmission (min)**	**Temps de comptage Diffusion (min)**
Petits angles	4	6	6.7	$8.10^{-3} \rightarrow 7.10^{-2}$	1	15
Grands angles	4	6	1.5	$3.10^{-2} \rightarrow 0.25$	1	25

Tableau 13 : Récapitulatif des conditions d'acquisitions SANS pour l'expérience au LLB.

Les conditions expérimentales concernant l'expérience au LLB sont résumées dans le Tableau 14. L'expérience consistait à co-injecter la solution de tensioactifs et le gaz N2 à un débit total fixe et à différentes qualités de mousse f_g successives (de 0.5 à 0.98). Après f_g 0.98, nous avons diminué la qualité de mousse une nouvelle fois à 0.7. f_g est changé à chaque fois que l'état stationnaire est atteint pour la qualité de mousse précédente.

Q_t **(mL/h)**	Q_g **(mL/h)**	Q_l **(mL/h)**	f_g **injectée**	v_{int_t} **(µm/s)**
5.77	2.9	2.9	0.5	241
5.77	4.0	1.7	0.7	241
5.77	5.2	0.1	0.9	241
5.77	5.7	0.1	0.98	241
5.77	4.0	1.7	0.7 (2)	241

Tableau 14 : Paramètres d'expériences pour la co-injection du gaz et de la solution de tensioactifs pendant l'expérience au LLB.

b) Expérience sur la ligne D22 (ILL)

Le spectromètre D22 est opéré sur le réacteur de l'institut Laue-Langevin qui est optimisé pour un flux de 1.2 10^8 n/s/cm^2 au niveau de l'échantillon. Il est équipé d'un détecteur d'une surface utile de 102.4 x 98 cm^2 avec une taille de pixel de 8 x 8 mm^2. Ce spectromètre est souvent utilisé pour des expériences qui requièrent un suivi cinétique dans le temps [112, 132].

La longueur d'onde à laquelle nous avons travaillé est de 6 Å. Deux distances échantillon-détecteur (7 et 2 m) ont été utilisées pour couvrir une gamme en q entre 5.47 10^{-3} $Å^{-1}$ et 0.472 $Å^{-1}$. Comme pour l'expérience au LLB, nous avons placé un diaphragme de 4

mm de diamètre devant l'échantillon pour avoir la même taille de faisceau (0.125 cm^2). Les conditions d'acquisitions sont résumées dans le Tableau 15.

La cellule est insérée dans un porte-échantillon conçu et réalisé spécifiquement pour s'adapter à la plateforme motorisée en x, y et z. Ainsi on pouvait contrôler la translation de la cellule pendant les acquisitions pour positionner le faisceau de neutrons à différentes distances du point d'entrée du milieu poreux.

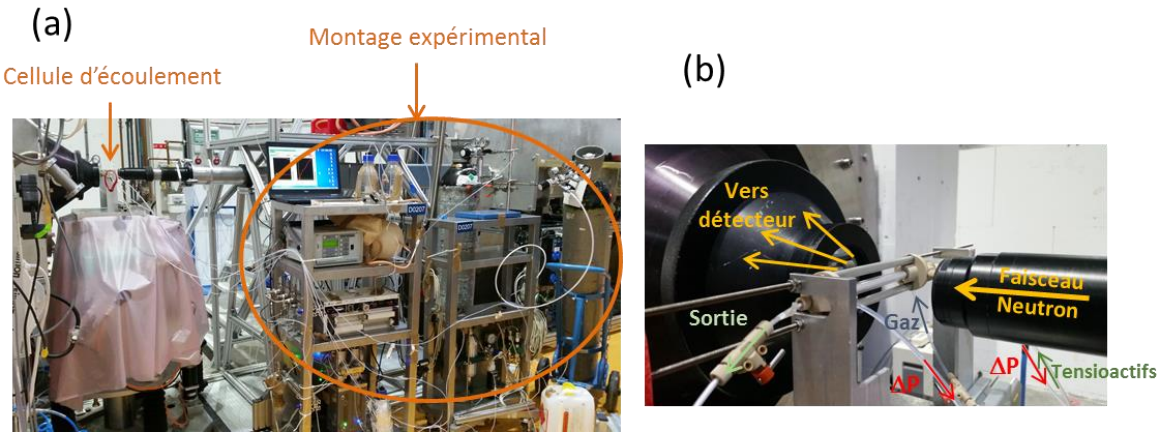


Figure 71 : (a) Photo du montage expérimental sur la ligne D22 et (b) photo de la cellule mise en place.

Config	**diamètre faisceau (mm)**	**λ (Å)**	**Distance échantillon -détecteur (m)**	**Gamme en $q(Å^{-1})$**	**Temps de comptage Transmission (min)**	**Temps de comptage Diffusion (min)**
Petits angles	4	6	7	$5.47.10^{-3} \rightarrow 6.67.10^{-2}$	2.5	10
Grands angles	4	6	2	$1.7.10^{-2} \rightarrow 0.472$	2	10

Tableau 15 : Récapitulatif des conditions d'acquisitions SANS pour l'expérience à l'ILL.

Lors de cette expérience à l'ILL, nous avons co-injecté la solution de tensioactifs et le gaz N_2 à un débit total fixe et à deux qualités de mousse différentes (cf. Tableau 16).

Q_t **(mL/h)**	Q_g **(mL/h)**	Q_l **(mL/h)**	f_g **injectée**	v_{int_t} **(µm/s)**
5.02	3.5	1.5	0.7	241
5.02	4.9	0.1	0.98	241

Tableau 16 : Paramètres d'écoulement pour la co-injection du gaz et de la solution de tensioactifs pendant l'expérience à l'ILL.

III. Texture de la mousse en écoulement

Dans cette partie, on s'intéresse à la texture de la mousse et sa variation locale le long de la cellule pour différentes conditions de co-injection. Rappelons que la texture de la mousse est définie par la densité de lamelles ; i.e. le nombre de lamelles par unité de volume de gaz. La texture peut aussi être définie par l'inverse de la taille moyenne des bulles dans le volume de mousse considéré. Les deux notions de densité de lamelles et de taille moyenne des bulles sont intimement liées car une mousse possédant des bulles fines donc de petites tailles, aura forcément un nombre de lamelles par unité de volume de gaz important et vice-versa [21]. La taille de bulle moyenne est donc un très bon indicateur de la mesure de la texture de la mousse en écoulement.

A. Analyse des spectres de diffusion

1. Mesures de références

Des mesures à l'état sec et à l'état saturé en liquide (saumure à 0.2% en masse en NaCl) sont réalisées au préalable avant la co-injection de la solution de tensioactifs et du gaz. Nous avons d'abord réalisé une acquisition en saturant le milieu avec un mélange de H_2O et de D_2O hors conditions de *match* (i.e. à une fraction volumique H_2O de 20%), puis nous avons réalisé une mesure dans le cas d'un milieu saturé avec les conditions de *match* (i.e. à une fraction volumique de H_2O de 38.5%). La comparaison entre les spectres de l'état sec et l'état saturé dans les conditions de non match nous permet de vérifier l'absence de phénomène de multidiffusion des neutrons. Les spectres acquis sont représentés sur les Figure 72.a et Figure 72.b. Les spectres à l'état sec et à l'état saturé dans les conditions hors match montrent que l'intensité diffusée $I(q)$ en fonction du vecteur d'onde q suit une loi de Porod en q^{-4}, où le facteur de Porod A dépend du terme de contraste au carré $\Delta\overline{\mathrm{SLD}}^2$ qui vaut 12.11 10^{20} cm^{-4} pour l'interface gaz/silice, et 2.31 10^{20} cm^{-4} pour l'interface liquide/silice dans le cas d'une fraction de H_2O de 20% en volume.

Pour estimer la surface spécifique, nous soustrayons l'excès de diffusion mesuré aux conditions de *match* en utilisant l'équation suivante :

$$\frac{S}{V} = \frac{A - A_m}{2\pi\ \Delta\overline{SLD}^2} \qquad \text{(III.30)}$$

Où A_m a été définie dans le paragraphe (II.A.3.d).

Les valeurs de surface spécifique mesurées pour le milieu sec et pour le milieu saturé dans les conditions hors *match* sont très proches, ce qui permet de valider l'absence de phénomènes de multidiffusion de neutrons (cf. Tableau 17). De plus, on remarque que la surface spécifique mesurée pour le milieu granulaire C (71-112 µm), est supérieure à celle du milieu granulaire D (112-150 µm), ce qui est attendu. Par ailleurs, les valeurs des surfaces spécifiques moyennes et médianes mesurées sur les grains à l'aide la micro-tomographie X et présentées dans le paragraphe (II.A.1.c), sont très proches des valeurs issues de la loi de Porod et présentées dans le Tableau 17.

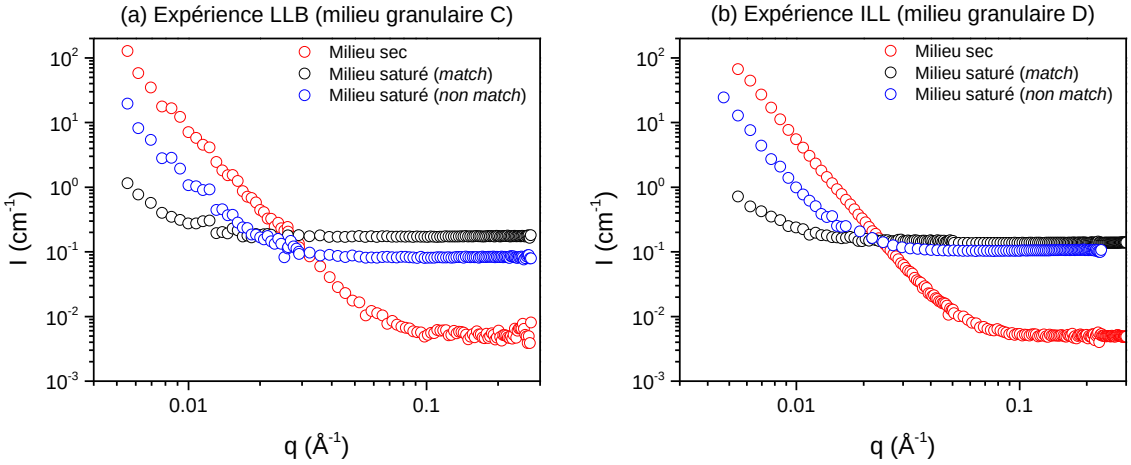


Figure 72 : Spectres de diffusion de références pour l'expérience (a) LLB avec le milieu granulaire D et pour l'expérience (b) ILL avec le milieu granulaire C.

Expérience	Conditions	Surface spécifique (cm^{-1})
LLB MG C (71-112 µm)	Milieu sec	1045
	Milieu saturé (conditions de non match)	1047
ILL MG D (112-150 µm)	Milieu sec	648
	Milieu saturé (conditions de non match)	681

Tableau 17 : Mesures de surfaces spécifiques pour les milieux de références.

2. Description des spectres de diffusion de la mousse en écoulement

La Figure 73 montre les différents spectres de $I(q)$ en fonction de q obtenus à différentes qualités de mousses sur le milieu granulaire C (71-112 µm). Les spectres de référence réalisés à l'état sec et à l'état saturé en condition de match ont été ajoutés aussi sur cette figure. Plusieurs remarques peuvent être faites concernant ces courbes.

Le signal de diffusion cohérente dans le cas du milieu saturé en condition de match est très faible ce qui montre globalement que le signal des interfaces liquides/solide a été bien annulé. Une légère remontée de pente aux très petits q serait due à l'excès de diffusion qui a été discutée dans le paragraphe (II.A.3.d).

Les signaux de diffusion de la mousse varient en fonction de la qualité de mousse injectée. On note aussi une variation du plateau de diffusion incohérente qui est dû à la présence d'hydrogène et qui nous renseigne sur la saturation en eau de la zone analysée. En effet, la solution de référence en condition de *match* contient une grande quantité d'hydrogène (38.5% du volume poreux), en comparaison avec la mousse où l'augmentation de la quantité de gaz est accompagnée de la diminution de la quantité d'hydrogène disponible dans l'espace poreux. On remarque aussi que tous les plateaux de l'incohérent dans le cas de la mousse se situent entre le signal de diffusion incohérente du milieu sec et le signal de diffusion du milieu en condition de *match*.

Tous les signaux de diffusion de la mousse semblent présenter des courbes qui suivent la loi de Porod en q^{-4} dans la gamme de q entre 6.10^{-3} et 2.10^{-2} $Å^{-1}$ caractérisant les surfaces lisses entre l'air et le liquide. Une analyse fine de la représentation graphique de ces courbes sous forme de Iq^4 en fonction de q (après soustraction du plateau incohérent) (cf. Figure 74) permet de mettre en évidence deux autres signaux à des gammes de q plus élevées :

- Le signal des micelles qui apparaît aux q élevés (> 0.06 Å^{-1}). Il s'agit d'un pic qui peut être bien résolu une fois que le bruit du fond plat à très grand q est soustrait. Ce signal est identifié en comparaison avec la courbe, avec des ronds noirs vides sur la Figure 73, et qui correspond à la mesure de la solution de tensioactif seule. On remarque que l'intensité de ce pic est inversement corrélée à la qualité de mousse injectée. En effet, plus la fraction liquide de la mousse est basse (f_g élevé), plus la quantité globale des micelles diminue.
- Un dernier signal qui est mieux visualisé dans la configuration Iq^4 en fonction de q apparaît dans un domaine intermédiaire entre la décroissance en q^{-4} et le signal des micelles, dans un domaine de q entre 0.03 Å^{-1} et 0.06 Å^{-1}. En référence, aux études de mousses sèches en Bulk vues par le SANS [117, 118], ce signal peut être attribué à des films liquides minces (ou des lamelles) qui séparent les bulles. On remarque que l'intensité de ce signal augmente en fonction de la qualité de mousse entre f_g 0.5 et f_g 0.9 puis diminue à une qualité de mousse de 0.98.

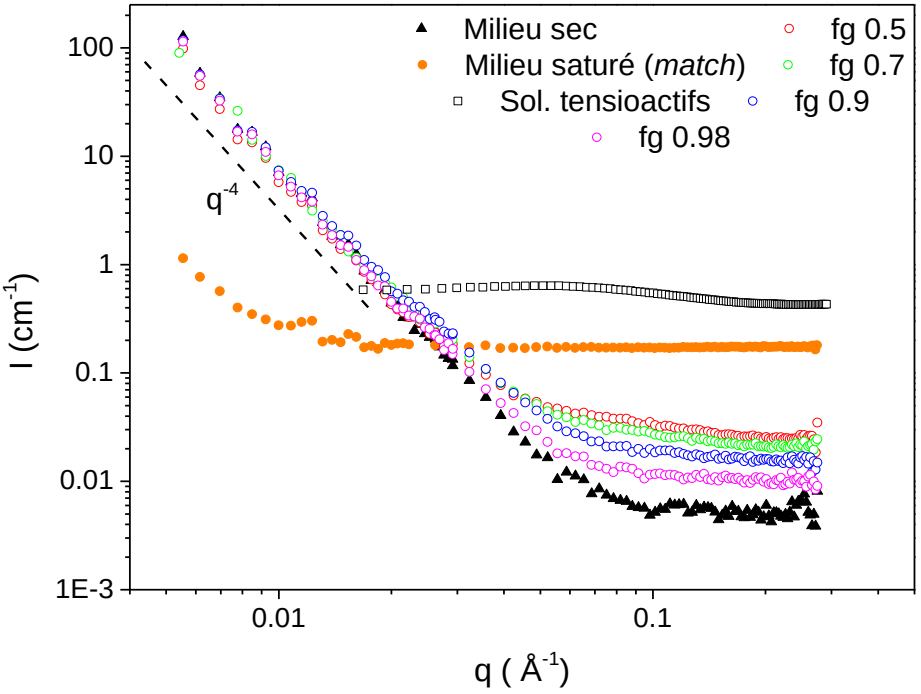


Figure 73 : Représentation des spectres de diffusion pour l'expérience LLB à différentes qualités de mousse en $I(q)$ en fonction de q. Les spectres de diffusion de la solution de tensioactifs, du milieu poreux à l'état sec et à l'état saturé en conditions de match ont été ajoutés sur cette même figure.

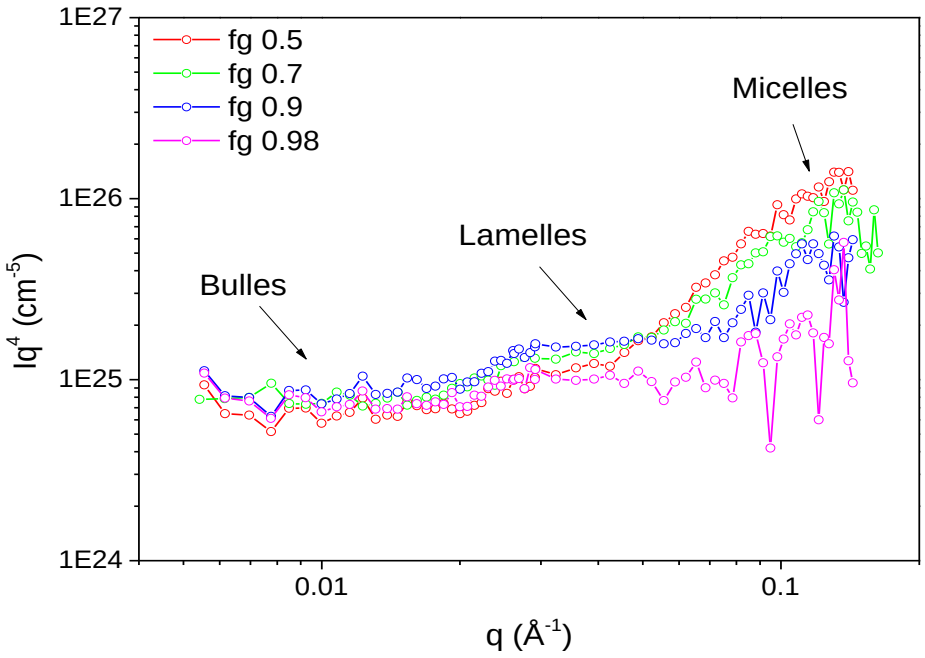


Figure 74 : Représentation des spectres de diffusion pour l'expérience LLB à différentes qualités de mousse en Iq^4 en fonction de q.

3. Approche par modélisation

La mousse telle qu'elle est vue par diffusion des neutrons aux petits angles, est formée d'un ensemble dense de bulles avec deux types de surfaces : la surface entre l'air et les bords de Plateau, et les deux interfaces formant la lamelle. A très petite échelle s'ajoute les agrégats micellaires qui baignent dans la phase liquide. Nous avons vu dans le paragraphe précédent que l'intensité diffusée représente un signal complexe qui est composée de la contribution de ces différentes interfaces. Une méthode simple pour quantifier la contribution de ces objets multi-échelles dans notre système, consiste à considérer l'intensité diffusée comme la somme des intensités de chaque objet pris séparément en négligeant les termes croisés qui pourraient exister entre eux du point de vue de la diffusion aux petits angles. Ainsi, l'intensité globale mesurée peut s'écrire par l'équation suivante :

$$I(q) = I_b(q) + I_l(q) + I_m(q) + I_{inc} \qquad \text{(III.31)}$$

Où $I_b(q)$ est l'intensité de diffusion des bulles, $I_l(q)$ l'intensité de diffusion des lamelles, $I_m(q)$ l'intensité de diffusion des micelles en interaction et I_{inc} représente le plateau

de la diffusion incohérente. Dans ce qui suit, nous détaillerons la contribution de chaque signal en détails.

a) Diffusion incohérente

Le signal de la diffusion incohérente est modélisée par une ligne horizontale à très grands q ($q > 0.15$ Å^{-1}). Ce signal est représenté sur la Figure 75.

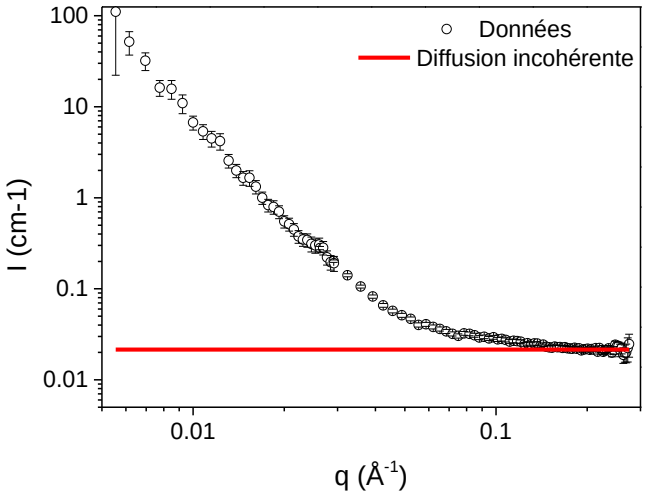


Figure 75 : Modélisation du plateau de la diffusion incohérente sur le spectre de diffusion de la mousse

b) Échelle de la bulle

Les bulles sont caractérisées par leur rayon. Dans l'hypothèse de bulles sphériques, le rayon de ces dernières est similaire au rayon de courbure des bords de Plateau (cf. Figure 76). De même, on peut considérer en première approximation que le rayon de la bulle est du même ordre de grandeur que le rayon moyen du pore R_p. Ce qui nous permet de valider la condition d'application de la loi de Porod ($qR_b \gg \pi$) en vérifiant que $qR_p \gg \pi$ où R_b est le rayon de la bulle. En effet, L'analyse du signal de diffusion de la mousse montre que la contribution des bulles apparait pour une gamme de q entre 0.006 Å^{-1} et 0.02 Å^{-1}, soit $0.01\ \mu m < \frac{\pi}{q} < 0.05\ \mu m$. Ainsi, pour un empilement de grains dont la taille est de l'ordre de quelques dizaines à une centaine de microns, les rayons des pores sont largement supérieurs à 0.05 µm.

Dans la gamme de q considérée pour les bulles, on ne sonde donc que les interfaces et on n'a pas d'informations sur la position relative des bulles les unes par rapport aux autres, ni

sur leurs interactions. De ce fait, le terme de structure $S(q)$ décrivant le facteur d'interaction entre les bulles est considéré en dehors de la fenêtre expérimentale ($S(q) = 1$). L'intensité diffusée $I_b(q)$ peut alors s'écrire de la manière suivante :

$$I_b(q) = \Delta(\overline{\mathrm{SLD}})^2{}_{g/l} \int N_b(R_b)\, P(q, R_b)\, dR_b \tag{III.32}$$

Où $\Delta(\overline{\mathrm{SLD}})^2{}_{g/l}$ représente la différence de densité de longueur de diffusion entre le gaz et le liquide au carré, R_b la taille de bulle et $P(q, R_b)$ représente le facteur de forme d'une bulle sphérique et vaut :

$$P(q, R_b) = [3\frac{\sin(qR_b) - qR\cos(qR_b)}{(qR_b)^3}]^2 \tag{III.33}$$

$N_b(R_b)$ représente la distribution de la densité volumique de bulles (nombre de bulles par unité de volume) et peut être décrite par une loi statistique log-normale :

$$N_b(R_b) = \frac{N_b}{c_b}\frac{1}{{R_b}^p}\ \exp(-\frac{\ln(R_b/\mu_b)^2}{2s^2}) \tag{III.34}$$

Avec

$$c_b = \sqrt{2\pi}\, s\, {\mu_b}^{1-p} \exp\left((1-p)^2\frac{s^2}{2}\right) \tag{III.35}$$

Où s représente l'écart-type, p le paramètre de forme de la distribution et μ_b le paramètre décrivant l'espérance de la distribution. Et c_{LN} est choisi de telle sorte que :

$$\int_0^\infty N_b(R_b)\, dR_b = N_b \tag{III.36}$$

Où N_b représente le nombre de bulles par unité de volume diffusant. Pour connaître le nombre de bulles par unité de volume de pores N_p, il faudra bien-sûr diviser par la fraction volumique de pore Φ_{po}:

$$N_p = \frac{N_b}{\Phi_{po}} \tag{III.37}$$

Pour la modélisation, nous avons choisi une distribution log-normale avec un écart-type s et un paramètre de forme p fixes. Le choix de s et p est issu de la mesure par analyse

d'image de la distribution des tailles de seuils de pores dont la meilleure modélisation a été obtenue avec une loi log-normale (cf. Annexe K et Annexe L). Dans le cas du milieu granulaire D (112-150 µm), s vaut 0.55 et p vaut 0.94, tandis que pour le milieu granulaire C (71-112 µm), s vaut 0.57 et p vaut 1. En plus, l'absence d'oscillations de l'intensité diffusée sur la gamme de q relative aux bulles justifie le choix d'un écart-type s supérieur à 0.3. Nous supposons donc que la taille des bulles est fortement influencée par la taille des seuils de pores [133]. L'ajustement des courbes de diffusion est réalisé en choisissant les bons paramètres de densité volumique de bulles N_b et d'espérance des rayons de bulles μ_b , qui caractérisent la distribution. Le Tableau 18 résume les paramètres de modélisation de l'intensité $I_b(q)$ des bulles.

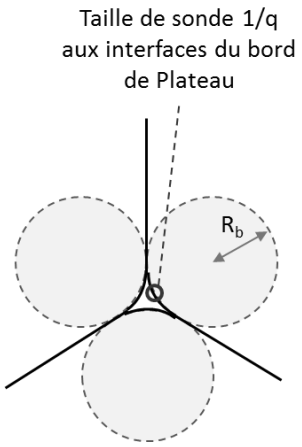


Figure 76 : Coupe transversale d'un bord de Plateau avec trois films liquides qui lui sont connectés. R_b représente le rayon de courbure des interfaces du bord de Plateau.

Lorsque $\frac{1}{q}$ est plus petit que la plus petite des tailles de bulles dans le milieu, le facteur de forme $P(q, R_b)$ tend vers une loi asymptotique en q^{-4}, qui est la loi de Porod décrite précédemment (cf. Figure 77). De cette loi, on peut aisément extraire le rapport $\frac{S}{V}$ qui décrit la surface spécifique des bulles et qui est liée à la fraction volumique des bulles et au rayon de Porod par l'équation suivante :

$$\frac{S}{V} = \frac{3\Phi_v}{R_{po}} \qquad \text{(III.38)}$$

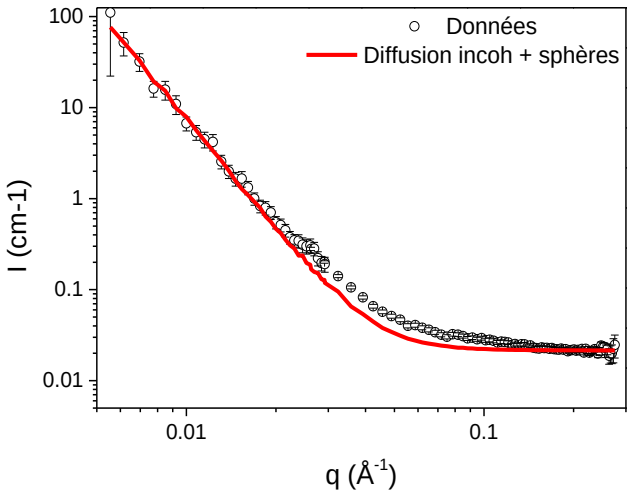


Figure 77 : Modélisation du plateau de la diffusion incohérente et des sphères sur le spectre de diffusion de la mousse.

La surface spécifique pour les bulles décrites par l'équation (III.38) désigne la contribution de toutes les surfaces de bulles considérées sphériques dans le volume sondé par le faisceau de neutrons. Ainsi la surface totale des objets présents vérifie l'équation suivante :

$$S = \sum_i n_i s_i = \sum_i 4\pi\, n_i\, {R_i}^2 \qquad \text{(III.39)}$$

Où n_i est le nombre sphères de surface s_i et ${R_i}^2$ le rayon de la bulle i au carré.

Par ailleurs, la fraction volumique de bulle dans le volume total peut être décrite par l'équation suivante :

$$\Phi_v = \frac{\sum_i n_i v_i}{V} = \frac{\sum_i 4\pi\, n_i\, {R_i}^3}{3V} \qquad \text{(III.40)}$$

Où v_i est le volume de la sphère élémentaire, V le volume sondé et ${R_i}^3$ le rayon de la bulle i au cube.

Ainsi, on obtient :

$$\frac{S}{V} = 3\Phi_v \frac{\sum_i n_i\, {R_i}^2}{\sum_i n_i\, {R_i}^3} = 3\Phi_v \frac{\langle R_b^2 \rangle}{\langle R_b^3 \rangle} \qquad \text{(III.41)}$$

Où $\langle R_b^2 \rangle$ et $\langle R_b^3 \rangle$ représentent le deuxième et le troisième moment de la distribution des rayons de bulles. Sachant que Φ_v est relié à la saturation de gaz par la porosité, selon la relation $\Phi_v = \Phi S_g$, on déduit que :

$$\frac{S}{V} = 3\Phi S_g \frac{\langle R_b^2 \rangle}{\langle R_b^3 \rangle} = \frac{3\Phi \, \mathrm{S_g}}{\mathrm{R}_{po}} \qquad \text{(III.42)}$$

Où $\mathrm{R_{po}} = \frac{\langle R_b^3 \rangle}{\langle R_b^2 \rangle}$ représente le rayon de Porod et qui équivaut au rapport du troisième moment sur le deuxième moment de la distribution des rayons de bulles $N_b(R_b)$. Axelos et al.,[117] ont associé ce rayon au rayon moyen des bulles aussi bien dans le cas de mousses *Bulk* humides que sèches. Ainsi, aux fins de simplification des termes utilisés, on décrira la taille moyenne des bulles à travers le rayon de Porod $\mathrm{R_{po}}$ qui s'exprime à l'aide de la formule suivante :

$$\mathrm{R_{po}} = \frac{3\Phi \, \mathrm{S_g}}{\mathrm{S/V}} \qquad \text{(III.43)}$$

Paramètres fixes		**Paramètres variables**	
Contraste gaz/liquide [10^{10}cm^{-2}]	3.71	N_b	μ_b
MG C (71-112 µm)			
Ecart-type de la distribution (s)	0.57		
Paramètre de forme de la distribution (p)	1		
MG D (112-150 µm)			
Ecart-type de la distribution (s)	0.55		
Paramètre de forme de la distribution (p)	0.94		

Tableau 18 : Paramètres fixes et variables de modélisation des bulles.

c) Échelle de la lamelle

On entend ici par lamelle, le film liquide mince qui se trouve à la jonction entre deux bulles adjacentes et qui les séparent (cf. Figure 78.a et Figure 78.b). Le signal d'intensité $I_l(q)$, attribué à ces lamelles, apparaît entre 0.02 et 0.03 Å^{-1}. Il traduit la quantité d'interfaces de ces lamelles dans tout le volume sondé et varie en fonction de la qualité de mousse (cf. Figure 74). Ce signal est situé entre celui des bulles et celui des micelles en interaction, et il est donc sensiblement influencé par le signal de ces dernières, d'où

l'importance de cette modélisation. Axelos et al., [117] montre en plus que le fait d'ajouter du sel dans la solution de tensioactifs décale le pic des micelles vers de plus faibles valeurs de q. Ce résultat s'appliquerait certainement à nos courbes car la solution de tensioactifs que nous avons utilisée contenait effectivement un peu de sel (0.2% en masse).

Pour la modélisation, nous avons choisi de décrire la jonction entre deux bulles par un cylindre plat de longueur $2h$ et de rayon a (cf. Figure 78.b). Dans l'hypothèse où les deux bulles adjacentes ont tendances à minimiser leur énergie surfacique, le rayon du cylindre[6] a est relié au rayon de la bulle R_b par la formule suivante[7] [11] :

$$a = \frac{\sqrt{3}}{2} R_b \tag{III.44}$$

Ainsi l'intensité diffusée par les lamelles décrite (comme pour les bulles) par la loi suivante :

$$I_l(q) = \Delta(\overline{\mathrm{SLD}})^2{}_{g/l} \int N_l(a,h)\, P(q,a,h)\; dh \tag{III.45}$$

Où $P(q,a,h)$ représente le facteur de forme d'un cylindre et vaut :

$$P(q,a,h) = 16(\pi a^2 2h)^2 \int_0^1 \left(\frac{J_1(qa\sqrt{1-x^2})\sin(qhx)}{q^2 a\sqrt{1-x^2}}\right)^2 dx \tag{III.46}$$

Où $J_1(x)$ est la fonction de Bessel de premier ordre.

La loi statistique Log-normale a aussi été choisie pour décrire la distribution du nombre de lamelles par unité de volume :

$$N_l(a,h) = \frac{N_l}{c_l}\frac{1}{h^p} \exp\left(-\frac{\ln(h/\mu_{la})^2}{2s^2}\right) \tag{III.47}$$

Avec

[6] Notons que $a \gg h$

[7] Dans la modélisation, on utilisera R_{po} à la place de R_b pour cette formule

$$c_l = \sqrt{2\pi}\, s\, {\mu_{la}}^{1-p} \exp((1-p)^2 \frac{s^2}{2}) \quad \text{(III.48)}$$

Où s représente l'écart-type, p le paramètre de forme de la distribution et μ_{la} le paramètre d'espérance de la distribution de l'épaisseur des lamelles. Et c_l est choisi de telle sorte que :

$$\int_0^\infty N_l(a,h)\, dh = N_l \quad \text{(III.49)}$$

Où N_l représente le nombre de lamelles par unité de volume diffusant.

Pour la modélisation, nous avons choisi un paramètre de forme de la distribution égal à 1 et un écart-type de 0.25. Les paramètres d'ajustement sont alors la densité volumique des lamelles N_l et l'espérance sur la distribution en épaisseur μ_{la}. On ignore là-aussi les interactions possibles entre les lamelles ($S(q) = 1$). Le Tableau 19 résume les paramètres de modélisation de l'intensité $I_l(q)$ des bulles.

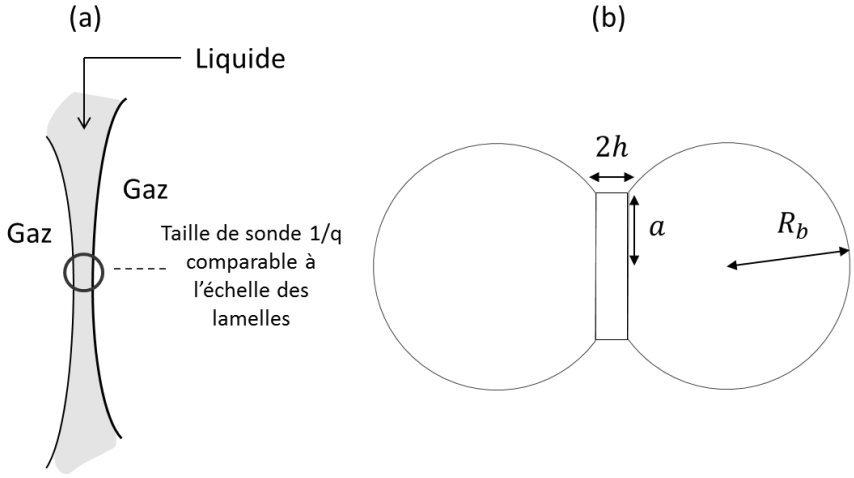


Figure 78 : (a) Schéma illustrant la lamelle de mousse avec la taille de sonde $1/q$ et (b) schéma illustrant la lamelle comme un cylindre qui représente la jonction entre les deux bulles.

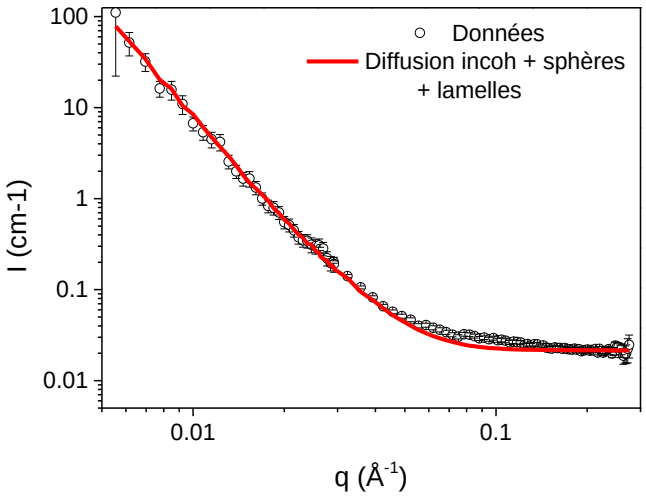


Figure 79 : Modélisation du plateau de la diffusion incohérente, des sphères et des lamelles sur le spectre de diffusion de la mousse

Paramètres fixes		**Paramètres variables**		
Contraste gaz/liquide [10^{10}cm^{-2}]	3.71	N_l	μ_{la}	a
Ecart-type de la distribution (s)	0.25			
Paramètre de forme de la distribution (p)	1			

Tableau 19 : Paramètres fixes et variables pour la modélisation des lamelles.

d) Échelle des micelles

Les micelles ont largement été étudiées par la diffusion de neutrons aux petits angles [134]. En terme de modélisation, nous avons utilisé des valeurs données dans la littérature [113, 135] et qui décrivent la forme et l'agrégation des tensioactifs de SDS en solution. Pour simplifier, nous avons considéré des modèles sphère-couronne (cf. Figure 80.b) où les têtes polaires sont non hydratées avec une distribution log-Normale d'écart-type égale à 0.25 et un paramètre de forme égal à 1. L'ajustement des courbes est obtenu en faisant varier la densité volumique de micelles N_{mic} et leur fraction volumique η Ces derniers représentent les paramètres variables. Le Tableau 20 ci-dessous résume les différents paramètres constants utilisés pour l'ajustement du signal des micelles.

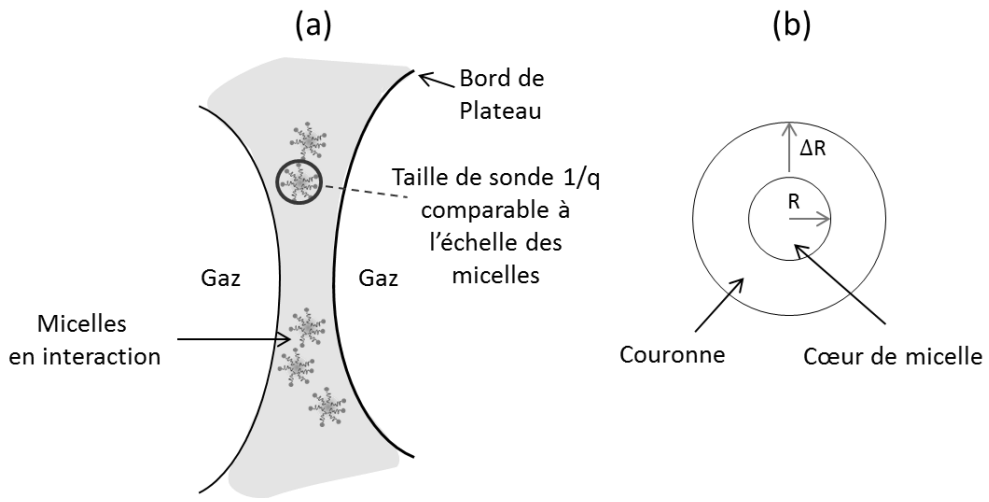


Figure 80 : (a) Schéma illustrant les micelles dans la phase liquide de la mousse avec la taille de sonde de mesure $1/q$ (b) Schéma d'une micelle sous forme de sphère-couronne.

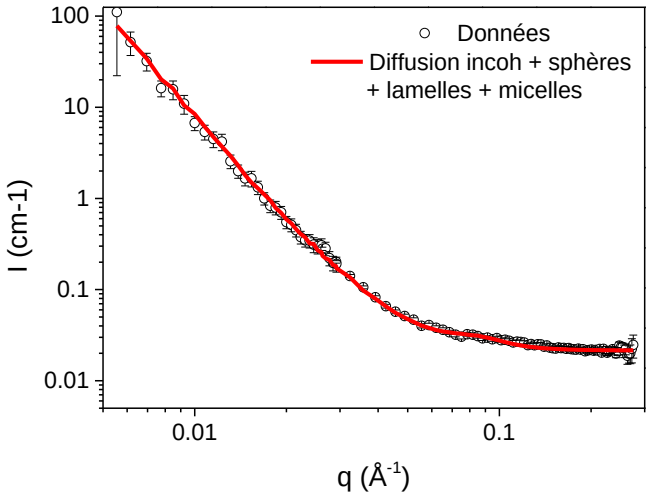


Figure 81 : Modélisation du plateau de la diffusion incohérente, des sphères, des lamelles et des micelles sur le spectre de diffusion de la mousse.

Paramètres pour la modélisation du facteur de forme $P(q)$		**Paramètres pour la modélisation du facteur de structure $S(q)$**	
Longueur de chaine [nm]	1.8	Rayon de micelle [nm]	2.2
Longueur de la couronne [nm]	0.4	Charge Z [-1.6 10^{-19} C]	26
Contraste chaîne/liquide de match [10^{10} cm^{-2}]	4.1	Température [K]	293
Contraste cœur/liquide de match [10^{10} cm^{-2}]	0.66	Constante diélectrique de l'eau (20°C)	80.4
		Sel [M]	0.034

Tableau 20 : Paramètres fixes de modélisation des micelles.

B. Influence de la qualité de la mousse sur son écoulement (Expérience LLB)

La mousse est influencée par les conditions d'injection et notamment par la qualité de mousse [48, 59]. Notre objectif ici est de mesurer et de suivre l'évolution de la taille des bulles à travers les variations du rayon de Porod lors de l'écoulement de la mousse dans le milieu poreux en fonction des conditions d'injections. Il est aussi important de montrer comment cette évolution (échelle du micromètre) est corrélée aux mesures macroscopiques réalisées à l'échelle de la cellule (plusieurs centimètres).

1. Évolution du gradient de pression

L'évolution du gradient de pression aux bornes de la cellule est présentée sur la Figure 82. Les acquisitions de pression sont réalisées toutes les cinq secondes alors que l'acquisition SANS dure quelques minutes. Ainsi, chaque point de la Figure 82 représente une moyenne sur le temps d'acquisition lors de l'écoulement. Chaque qualité de mousse a été représentée avec une couleur particulière afin de distinguer le passage d'une qualité de mousse à l'autre. Cette courbe montre que le gradient de pression continue d'augmenter pour les différentes qualités de mousse entre 0.7 et 0.9. Lorsqu'on passe à une qualité de mousse supérieure de 0.98, on observe une chute du gradient de pression. Ceci est la signature du passage du régime basse qualité à un régime haute qualité représenté par les traits verticaux en pointillés sur la même figure. Pour tous les f_g nous avons attendu la stabilisation de la pression avant de passer à la qualité de mousse suivante. On remarque que même à une vitesse interstitielle totale assez élevée de 241 µm/s, on n'arrive à atteindre le palier qu'au bout de plusieurs

centaines de volume de pores injectés ce qui correspond par exemple à environ 33 heures pour la première qualité de mousse f_g 0.5.

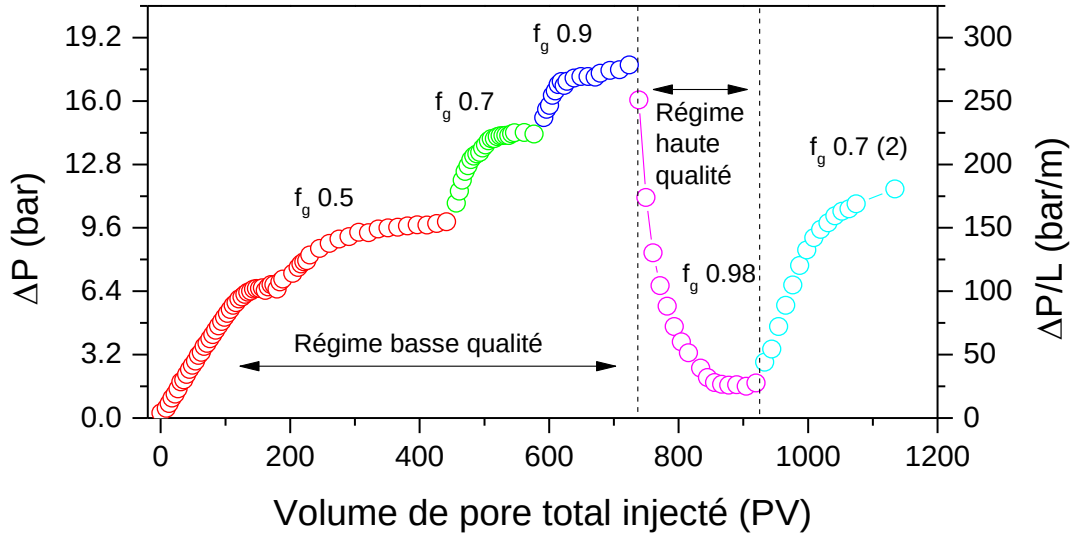


Figure 82 : Évolution de la chute de pression ΔP en fonction du volume de pore injecté pour l'expérience LLB, à différentes qualités de mousse injectées.

2. Exemple de spectres modélisés

La modélisation de quelques spectres de diffusion à différentes qualités de mousse à l'état stationnaire est présentée dans la Figure 83. Cette modélisation est réalisée à l'aide du logiciel SasFit qui permet d'intégrer les quatre contributions des intensités diffusées indépendamment ; bulles, lamelles, micelles et diffusion incohérentes, et de les sommer. On arrive à ajuster correctement les données expérimentales issues des mesures SANS. Les paramètres d'ajustement sont donnés dans le Tableau 21. On remarque que la densité de bulles et de lamelles augmentent en passant de la qualité de mousse 0.5 à 0.9 puis diminuent en passant à une qualité de mousse de 0.98. Les valeurs de ces deux densités sont très comparables. L'épaisseur de lamelles en revanche ne change pas beaucoup et varie entre 5 et 6 nm. De telles épaisseurs de lamelles rendent compte de films liquides très fins qui séparent les bulles et seraient associées à des pressions de disjonction certainement élevées, à la limite de la rupture [37]. Le sel ajouté serait aussi un facteur favorisant l'écrantage des molécules de tensioactifs et la diminution de l'épaisseur de la double couche électrique qui caractériserait un film liquide. Par ailleurs, le nombre de micelles par unité de volume diminue de manière continue en fonction de la qualité de mousse. Ce qui est logique, puisque la fraction liquide diminue en augmentant la quantité de gaz dans le milieu. On peut voir cela d'une autre

manière, à travers la lecture de la variation de la fraction volumique de micelles η qui augmente lorsque la qualité de mousse f_g augmente.

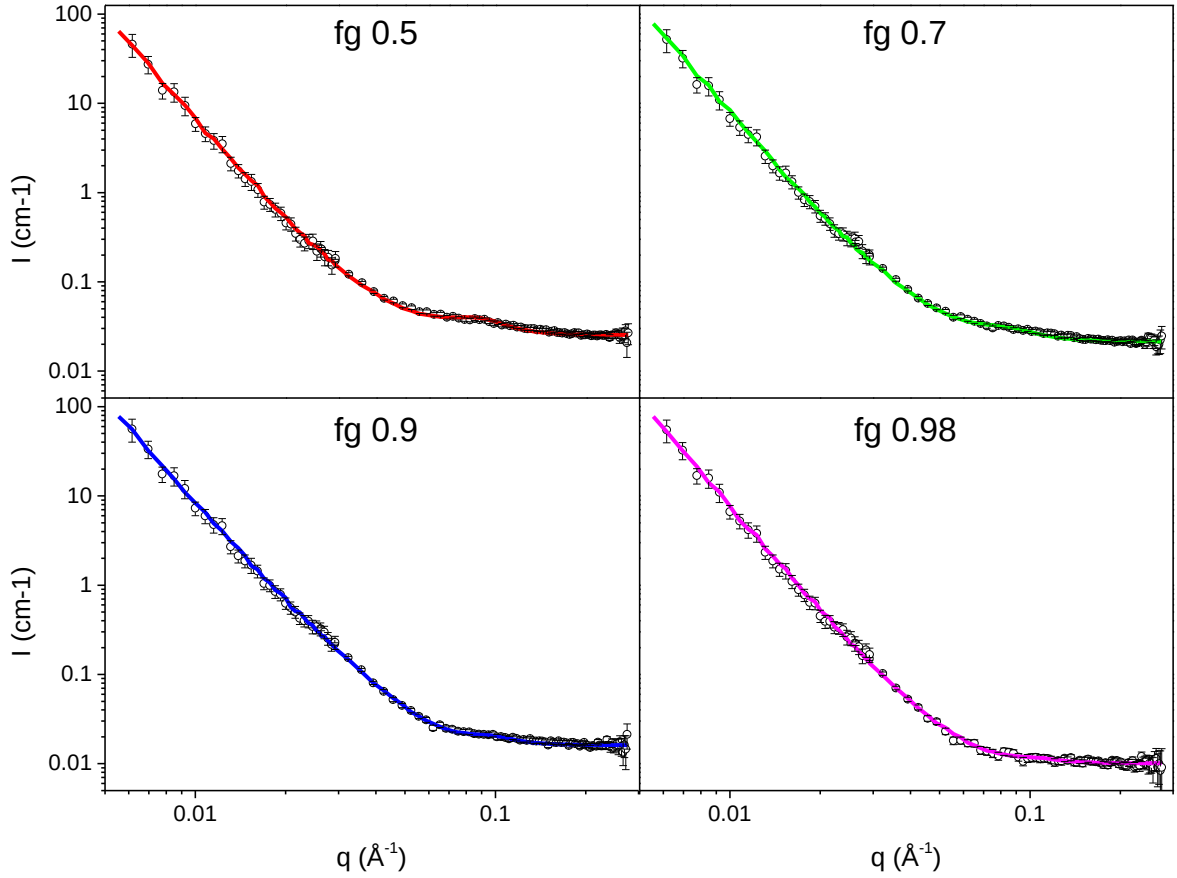


Figure 83 : Spectres de diffusion pour quatre qualités de mousses à l'état stationnaire (en rond) et modélisation des données à l'aide du logiciel SaSFit (lignes). Expérience LLB.

Paramètres / Qualité de mousse	Bulles			Lamelles			Micelles	
	N_b (cm^{-3})	μ_b (μm)	R_{po} (μm)	N_l (cm^{-3})	μ_{la} (nm)	a (μm)	N_{mic} (cm^{-3})	η
0.5	$5.5\ 10^7$	7.3	16.5	$3.0\ 10^7$	5	14.3	$9.0\ 10^{15}$	0.09
0.7	$9.0\ 10^7$	6.2	13.8	$5.0\ 10^7$	5	12	$5.0\ 10^{15}$	0.08
0.9	$9.0\ 10^7$	6.3	13	$7.0\ 10^7$	6	11.3	$3.0\ 10^{15}$	0.12
0.98	$7.2\ 10^7$	6.9	16.6	$1.8\ 10^7$	5.5	14.3	$1.0\ 10^{15}$	0.18

Tableau 21 : Paramètres utilisés pour l'ajustement des spectres de diffusion à différentes qualité de mousse présentés dans la Figure 83.

3. Évolution de la saturation de gaz locale

A partir des valeurs moyennes des plateaux de la diffusion incohérente, on peut estimer la fraction volumique locale qui représente la saturation de gaz S_g[8] avec la formule suivante :

$$S_g = \frac{I_{inc_l} - I_{inc_m}}{I_{inc_l} - I_{inc_s}} \quad \text{(III.50)}$$

Où I_{inc_l} , I_{inc_s} et I_{inc_m} représentent les valeurs moyennes des plateaux (le fond plat) du signal de diffusion incohérente à très grand q pour le milieu saturé avec le liquide de *match* (indice l), le milieu à l'état sec (indice s) et le milieu poreux en présence de mousse (indice m) respectivement.

L'augmentation de saturation en gaz est corrélée avec l'augmentation du gradient de pression, et ce dès l'injection de la mousse à un f_g de 0.5. Il est à noter qu'il était difficile de prendre des acquisitions lors du passage du premier front de mousse qui balaye la phase liquide de saumure sur une durée très courte par rapport au temps de mesure. Par conséquent, la saturation de gaz mesurée pendant cette phase transitoire, entre 0 et 150 PV environ, serait liée majoritairement à l'établissement du deuxième front de mousse dans le milieu poreux (cf. Chapitre 2). La Figure 84 montre que la saturation en gaz devient constante lorsqu'on arrive au niveau du palier de pression. La variabilité de la mesure de S_g qu'on peut observer lors du régime transitoire pour les qualités de mousse à 0.5 et 0.7 sont attribués au fait que les acquisitions sont réalisées aux petits angles uniquement pour ces données-là.

Globalement, on observe qu'il y'a une faible augmentation de la saturation de gaz lorsqu'on passe d'une qualité de mousse à une autre. La Figure 84 montre que l'évolution de la saturation de gaz en fonction de la qualité de mousse en régime basse qualité existe bien. Ceci pourrait être expliqué par l'augmentation de la quantité de gaz piégée lors du franchissement des paliers de qualités de mousses successives. Le passage de l'état stationnaire de f_g 0.5 à f_g 0.9 permet d'enregistrer une augmentation relative de S_g égale à

[8] Nous avons pris ici la même notation pour la saturation de gaz que dans le premier chapitre, pour montrer qu'il s'agit de la même quantité mesurée, malgré la différence des techniques. Notons qu'il s'agit ici d'une saturation de gaz locale moyennée sur la taille du faisceau.

10.6% en comparaison avec le gradient de pression qui augmente de 80%. Le passage à une qualité de mousse encore plus élevée de 0.98 montre une très légère augmentation de la saturation de gaz au moment où le gradient de pression diminue fortement. Lorsqu'on revient à une qualité de mousse f_g 0.7 (cf. couleur cyan sur la Figure 84) à partir de f_g 0.98, on remarque que la saturation en gaz diminue à nouveau puis augmente légèrement (alors que le gradient de pression augmente largement) pour s'établir à des valeurs comparables au premier f_g 0.7 (cf. couleur verte sur la Figure 84).

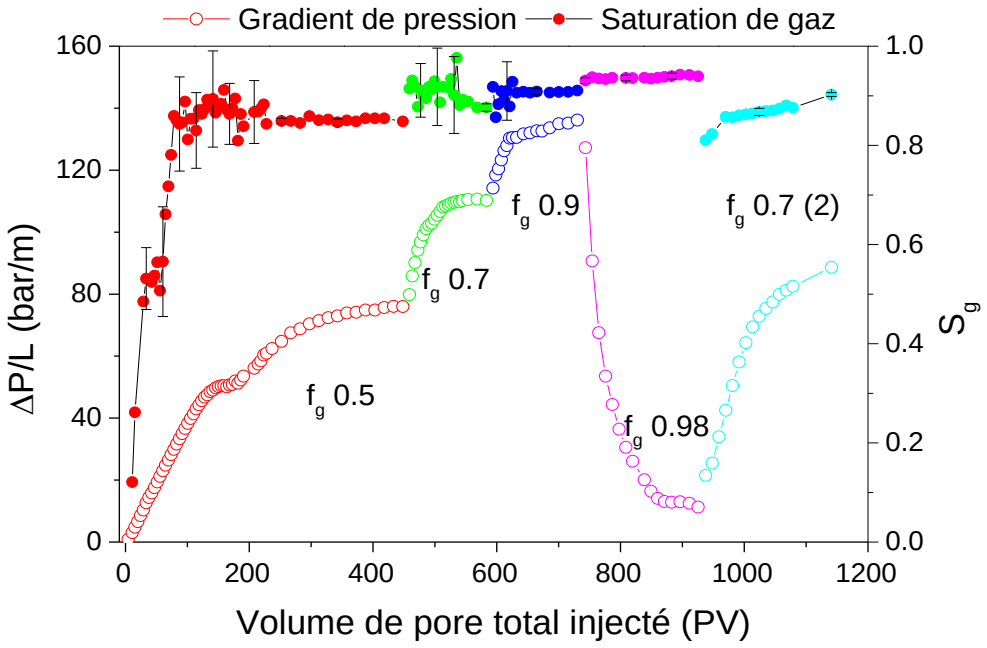


Figure 84 : Évolution du gradient de pression et de la saturation de gaz en fonction du volume de pore injecté à différentes qualités de mousse injectées.

4. Évolutions de la surface spécifique et de la taille moyenne des bulles

a) Surface spécifique moyenne des bulles

D'après la Figure 85, on remarque que la surface spécifique des bulles augmente durant le 1er régime transitoire qui décrit la première qualité de mousse à f_g 0.5, puis se stabilise lorsqu'on arrive au palier. Cette tendance se répète pour les qualités de mousse suivantes à f_g 0.7 puis à f_g 0.9. Pour cette dernière qualité de mousse (couleur bleu), on atteint une surface spécifique maximale d'environ 1000 cm^{-1}, qui est proche mais inférieure à la surface spécifique mesurée à l'état sec (1045.3 cm^{-1}) (cf. Tableau 17). Ces valeurs couplées

avec les mesures de saturation en gaz élevée sur la Figure 84, révèle une structure de mousse dense et sèche où la fraction liquide y est faible.

Lorsqu'on passe en régime haute qualité (f_g de 0.98 (couleur magenta)), on observe une chute du gradient de pression significative de 140 bar/m à environ 10 bar/m soit une variation relative d'environ 130%. Au même moment, la surface spécifique des bulles voit sa valeur diminuer de 1000 cm^{-1} à seulement 800 cm^{-1}, soit une variation relative de 25%. Le gradient de pression et la surface spécifique qui étaient corrélées pour les mousses de basse qualité ne le sont plus pour cette qualité de mousse de 0.98. Ceci pourrait être expliqué de la manière suivante :

- La forte diminution de la pression correspondrait à une rupture des lamelles qui crée une brèche dans la structure de la mousse et un chemin préférentiel du gaz dans le milieu poreux est alors crée (cf. schéma sur la Figure 86). Ainsi la mobilité du gaz dans le milieu poreux augmente.
- La faible diminution de la surface spécifique par rapport à la forte diminution du gradient de pression montre que la structure globale de la mousse reste intacte. N'oublions pas que la mesure SANS est moyennée sur un volume poreux sondé par le faisceau de neutrons- d'environ 0.014 cm^3. Ce volume contiendrait une dizaine de milliers de pores si on considère des pores d'une dizaine de microns de taille. Si on imagine que la mousse occupe tout l'espace poreux alors il suffit que quelques lamelles se rompent pour créer un chemin pour le gaz et ces lamelles ne représenteront qu'une quantité infinitésimale par rapport à l'ensemble de la mousse. En effet, à f_g 0.98 on remarque que l'on revient aux valeurs de *S/V* proches de celles obtenues au palier à f_g 0.5, soit la première structure de la mousse au premier palier. Ceci pourrait aussi indiquer que le comportement et la géométrie de la mousse sont dictés par la première qualité de mousse ainsi que par le réseau poreux (ce dernier point est discuté plus loin).

Enfin, lorsqu'on revient à une qualité de mousse de 0.7, on observe une augmentation de la surface spécifique qui a tendance à s'établir aux mêmes valeurs observées pour le premier f_g 0.7 et le gradient de pression remonte très vite, ce qui va dans le sens d'une mousse déjà préformée. Ce point démontre la capacité de la mousse à se régénérer en « mousse forte » après avoir subi le phénomène dit de « coalescence ».

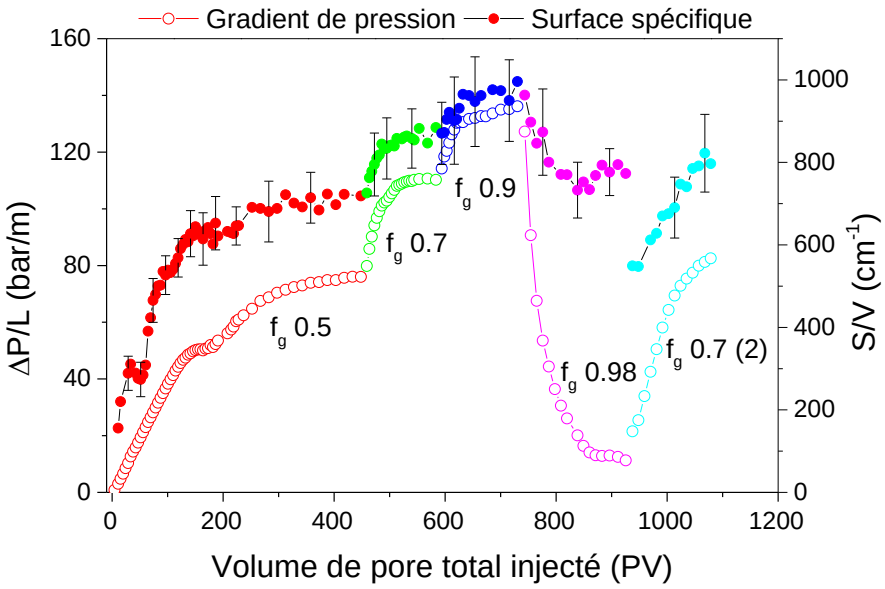


Figure 85 : Évolution du gradient de pression et de la surface spécifique des bulles en fonction du volume de pore injecté

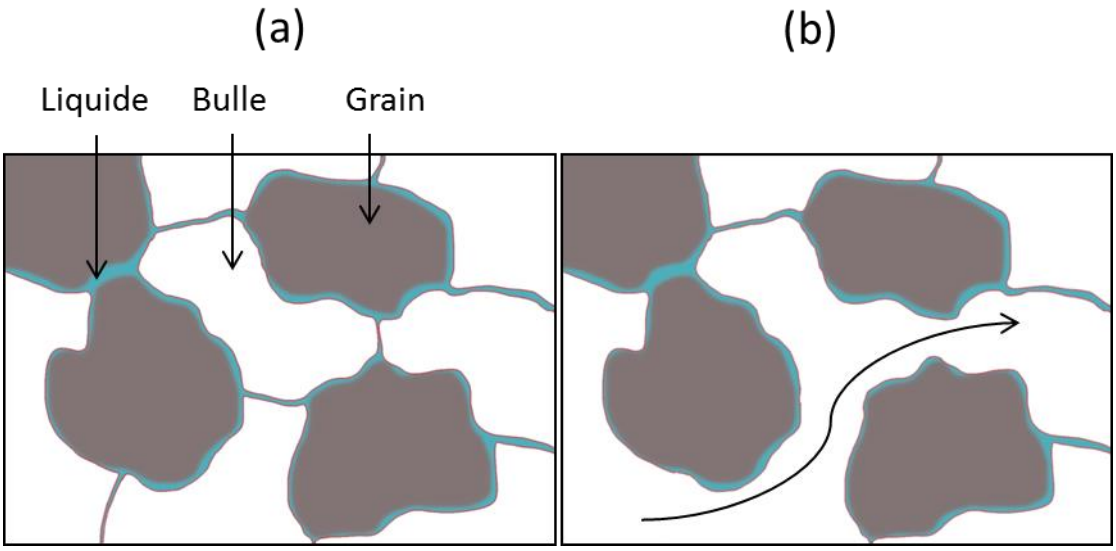


Figure 86 : (a) Schéma de mousse en milieu poreux. (b) Schéma de rupture des lamelles et création d'un chemin de percolation de gaz

b) Rayon de Porod des bulles

(i) Régime basse qualité

La taille de bulle moyenne associée au rayon de Porod caractérisant les bulles semble augmenter au tout début (entre 0 et 50 PV), passant de 11 à 29 µm puis diminuer au fur et à mesure de l'injection durant tout le régime basse qualité, comme cela est montré sur la Figure

87. La toute première phase d'augmentation de la taille de bulle (entre 0 et 50 PV) est expliquée par l'augmentation rapide de la saturation de gaz où S_g passe de 0.1 à 0.6 (cf. Figure 84). La surface spécifique augmente aussi pendant ce temps-là mais à une vitesse moins rapide passant de 150 cm^{-1} à 300 cm^{-1} (cf. Figure 85). Il est difficile de statuer sur l'état de la mousse durant cette phase. En revanche, on peut affirmer que la mousse était déjà formée et qu'on pouvait la voir sortir du milieu poreux. La taille de bulle commence à décroître à partir de 50 PV jusqu'à la fin de la qualité de mousse f_g 0.9, tandis que la saturation de gaz et la surface spécifique continuent à augmenter entre 50 PV et 150 PV environ. Cette phase de décroissance rapide de la taille de bulle entre 50 et 150 PV pourrait rendre compte de la texturation de la mousse au sein du milieu poreux, qui pourrait correspondre à la phase de désaturation liquide secondaire définie au premier chapitre et visualisée par tomographie X dans le deuxième chapitre[9]. Une quasi-stabilisation est observée lorsqu'on arrive à 200 PV environ.

Par ailleurs, le passage aux qualités de mousse supérieures à 0.7 et 0.9 engendre une diminution continue de la taille de bulle pour arriver à une limite minimale de 12.8 µm pour le dernier point de mesure.

(ii) Régime haute qualité

Le passage à la qualité de mousse f_g 0.98 est marqué par une légère baisse de la surface spécifique (alors que la saturation de gaz n'a augmenté que de 0.02) comme discuté avant. Ceci se traduit par une augmentation en taille des bulles. Enfin, on peut penser que le régime de coalescence induit un double effet d'augmentation de la taille de bulle et de rupture de certaines lamelles (gradient de pression et surface spécifique dé-corrélées).

(iii) Reformation d'une mousse forte

Une mousse forte est reformée lorsqu'on revient à une qualité de mousse de 0.7 (cf. couleur cyan sur la Figure 87). Ceci est démontré par la re-diminution de la taille des bulles et l'augmentation du gradient de pression durant cette phase. Ainsi la restructuration de la mousse est possible après la génération d'une mousse grossière. On peut affirmer que les

[9] A noter que les incertitudes calculées durant cette première phase sont relativement grandes à cause de l'acquisition SANS qui s'est faite uniquement en configuration petits angles jusqu'à 250 PV.

lamelles rompues se sont régénérées pour former des bulles de plus en plus petites et diminuer la mobilité de gaz une nouvelle fois.

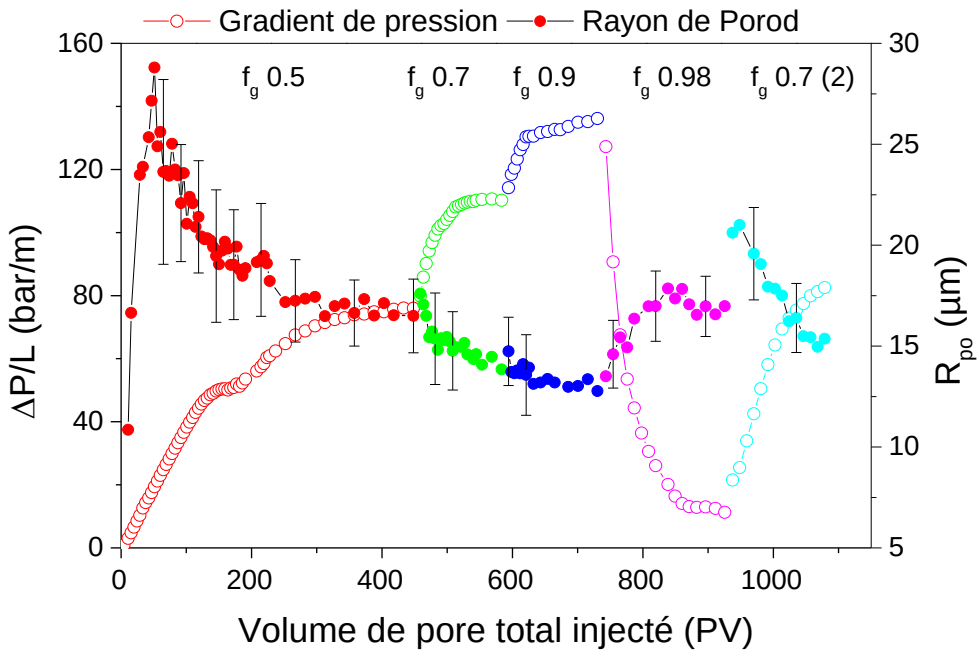


Figure 87 : Évolution du gradient de pression $\frac{\Delta P}{L}$ et du rayon de Porod R_{po} en fonction du volume de pore total injecté. Dans l'hypothèse de bulles sphériques.

C. Comportement de la mousse le long du milieu poreux (Expérience ILL)

Dans cette section, nous présenterons les résultats de l'expérience d'écoulement de mousse dans le milieu granulaire D (112-150 µm). Il faut noter que nous avons choisi une longueur de cellule plus grande (13 cm) que pour l'expérience LLB (6.4 cm) afin de pouvoir réaliser des acquisitions à différentes distances de l'entrée de la cellule.

1. Description de l'expérience

La Figure 88 représente l'évolution du gradient de pression durant l'expérience ILL. Les points sur les courbes représentent les données acquises à l'ILL. Il faut noter aussi qu'une erreur de manipulation des conditions d'écoulement s'est produite au milieu de l'expérience (vers 210 PV), ce qui a induit une variation dans la pression (Ceci est représenté en vert avec un fond grisé sur la Figure 88). Les données relatives à cette partie de la courbe ne seront pas prises en compte par la suite.

On remarque une même évolution de la pression; à savoir une phase transitoire suivie d'une phase stationnaire, pour les deux qualités de mousse testées. En revanche, nous n'avons pas pu observer la coalescence durant cette expérience, i.e. une chute de pression aux qualités de mousse auxquelles nous avons travaillé. Il est probable que la qualité de mousse critique se trouve à une valeur plus grande que 0.98 ou qu'il y a eu une influence de la chute de pression, durant l'erreur de manipulation, sur l'évolution ultérieure du gradient de pression. Néanmoins, cette expérience visait particulièrement l'étude du comportement de la mousse le long du milieu poreux, ce qui sera discuté par la suite.

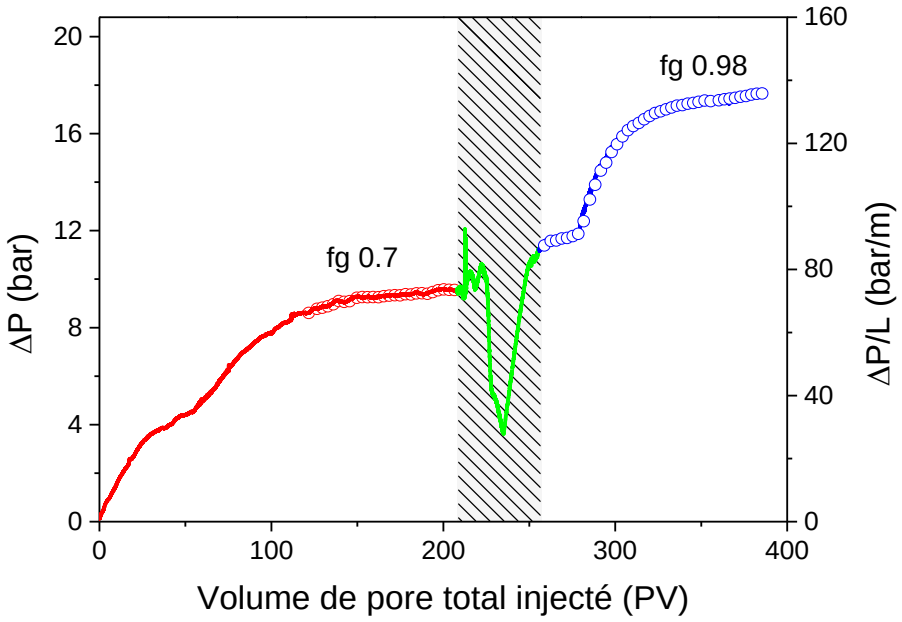


Figure 88 : Évolution de la chute de pression ΔP en fonction du volume de pore injecté pour l'expérience ILL, à différentes qualités de mousse injectées. La zone grisée correspond à une erreur expérimentale et ne sera pas pris en compte

Un exemple de spectres SANS est présenté sur la Figure 89.a pour les qualités de mousse 0.7 et 0.98. Les spectres de référence (milieu sec, saturé en conditions de match et celui de la solution de tensioactifs) y ont été rajoutés. On observe le même type de courbes que celles décrites précédemment, i.e. un modèle de Porod en q^{-4} pour les faibles valeurs de q. La Figure 89.b, donne une représentation de Iq^4 en fonction de q, après soustraction du fond plat de la diffusion incohérente. Cette représentation permet de mieux visualiser les différentes contributions observées sur les courbes. On voit un 1er plateau représentant les bulles, puis un 2ème signal représentant les lamelles et enfin le signal des micelles. Il est à noter que le signal des micelles est largement plus atténué à f_g 0.98 à cause de la faible

fraction liquide présente dans la mousse par rapport à f_g 0.7. En revanche, le signal des lamelles forme un pic bien distinct à f_g 0.98.

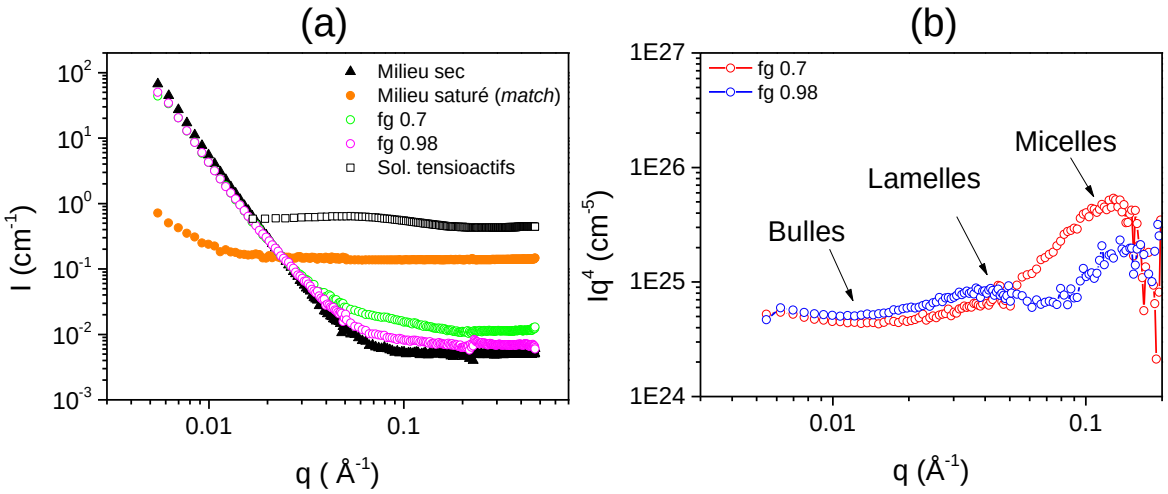


Figure 89: Représentation des spectres de diffusion pour l'expérience ILL à différentes qualités de mousse en (a) $I(q)$ en fonction de q et en (b) Iq^4 en fonction de q. Les spectres de diffusion de la solution de tensioactifs, du milieu poreux à l'état sec et à l'état saturé en conditions de *match* ont été ajoutés sur la figure (a).

2. Modélisation des spectres de diffusion

La méthodologie de modélisation des spectres de diffusion a été présentée dans la section précédente (Expériences LLB). Nous avons appliqué cette modélisation pour différents spectres de diffusion représentant des acquisitions à trois positions différentes : à 2.5cm, 6.1 cm et 9.7 cm depuis l'entrée de la cellule. Ces courbes modélisées sont représentées sur la Figure 90 et les valeurs correspondantes aux paramètres d'ajustement sont présentées dans le Tableau 22. La modélisation des spectres obtenus passent nécessairement par la prise en considération des quatre contributions des paramètres géométriques cités auparavant **:** sphère pour les bulles, cylindres plats pour les lamelles, sphère cœur-couronne pour les micelles et le signal de bruit de fond plat aux très grandes valeurs de q.

La densité volumique de bulle semble varier systématiquement de l'entrée de la cellule à la sortie aussi bien pour la qualité de mousse f_g à 0.7 qu'à 0.98. En revanche, la taille de bulle décrite par le rayon de Porod R_{po} diminue en fonction de la distance depuis l'entrée. La densité de lamelles est environ deux fois plus faible que la densité de bulles et diminue en fonction de la distance pour f_g 0.98. Par contre, la densité de lamelles semble rester constante jusqu'à 6.1 cm et diminuer à 9.7 cm dans le cas de la qualité de mousse 0.7. Par ailleurs, le

nombre de micelles par unité de volume N_{mic} diminue globalement lorsque la qualité de mousse augmente, exactement comme dans le cas de l'expérience LLB (cf. paragraphe (III.B)). En plus, on remarque que la quantité de micelles diminue en fonction de la distance depuis l'entrée.

Il est intéressant de noter que les épaisseurs de films obtenues à travers cette modélisation sont faibles (entre 3 et 7 nm) et restent comparables à celles obtenues pour l'expérience LLB. En revanche, ces épaisseurs ne semblent pas présenter une tendance particulière notamment en fonction de la qualité de mousse, où on voit une augmentation alors que la fraction de gaz (f_g) est augmentée. On peut en déduire que le SANS ne donne ici qu'un ordre de grandeur sur l'épaisseur moyenne de la lamelle. En revanche, on peut accorder une plus grande confiance à la sensibilité des variations de la densité des bulles N_b et de la densité de lamelles N_l qui traduisent la variation de l'intensité diffusée par chaque constituant de la mousse.

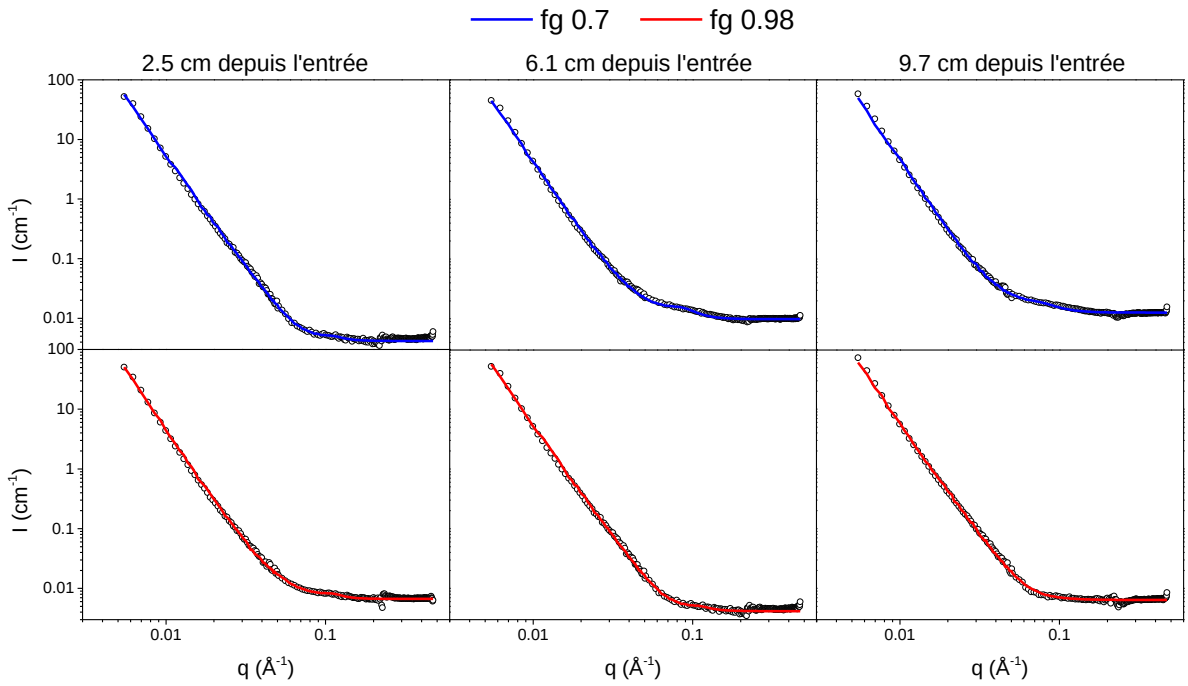


Figure 90 : Spectres de diffusion pour les deux qualités de mousse 0.7 et 0.98 à l'état stationnaire et à trois positions différentes depuis l'entrée de la cellule (en rond) et modélisation des données à l'aide du logiciel SaSFit (lignes). Expérience ILL.

Paramètres / Qualité de mousse	Bulles			Lamelles			Micelles	
	N_b (cm^{-3})	μ_b (μm)	R_{po} (μm)	N_l (cm^{-3})	μ_{la} (nm)	a (μm)	N_{mic} (cm^{-3})	η
0.7 (2.5 cm)	$1.04\ 10^7$	12.7	31.2	$5.5\ 10^6$	3.5	27.0	$3.2\ 10^{15}$	0.09
0.7 (6.1 cm)	$1.64\ 10^7$	11.0	26.8	$5.5\ 10^6$	4.1	23.2	$3.0\ 10^{15}$	0.08
0.7 (9.7 cm)	$2.1\ 10^7$	10.1	24.6	$5.0\ 10^6$	4	21.3	$2.5\ 10^{15}$	0.05
0.98 (2.5 cm)	$1.85\ 10^7$	10.7	27.4	$6.5\ 10^6$	3	23.7	$1.2\ 10^{15}$	0.2
0.98 (6.1 cm)	$2.8\ 10^7$	9.3	21.0	$8\ 10^6$	7	18.2	$6.0\ 10^{14}$	0.2
0.98 (9.7 cm)	$3.6\ 10^7$	8.5	18.7	$1.0\ 10^7$	7	16.2	$1.0\ 10^{13}$	0.15

Tableau 22 : Paramètres utilisés pour l'ajustement des spectres de diffusion à différentes qualité de mousse et aux différentes positions présentés dans la Figure 90.

3. Évolution de la saturation de gaz locale

L'évolution de S_g en fonction de la distance a été représentée sur la Figure 91. On remarque que la saturation de gaz est légèrement plus élevée à une qualité de mousse de 0.98 (S_g de 0.96 en moyenne) qu'à une qualité de mousse de 0.7 (S_g de 0.91 en moyenne). En revanche, S_g est quasi-constante le long du milieu poreux avec un léger effet de dôme au centre de la cellule. La baisse de S_g au niveau de l'entrée (entre 2.5 et 4 cm) serait attribuée aux effets d'entrée dus à la co-injection et à la formation de la mousse à cet endroit. Tandis que la baisse de S_g mesurée au niveau de la sortie (entre 8 et 10 cm) serait due à un éventuel effet de rétention capillaire du liquide à cause du changement abrupt de perméabilité entre le milieu poreux et les tubings de sortie des fluides. Les deux phénomènes ont été discutés dans le cas des observations des écoulements de mousse dans une roche à l'aide du scanner à tomographie X, au chapitre 2.

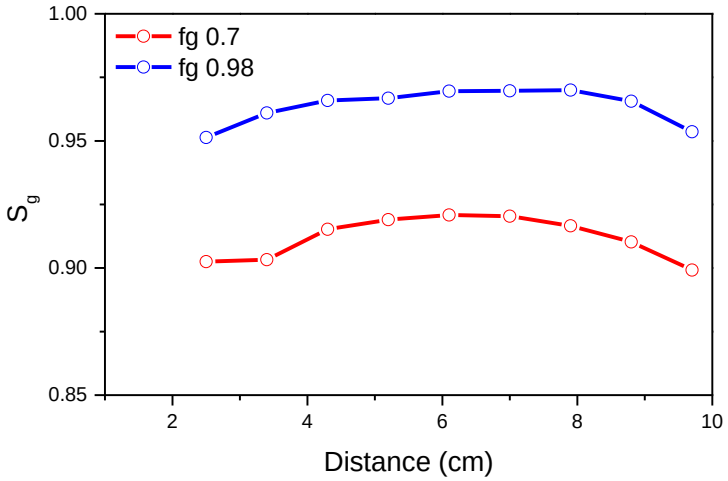


Figure 91 : Saturation de gaz en fonction de la distance pour l'expérience à l'ILL

4. Évolution de la taille des bulles en fonction du gradient de pression

L'évolution du rayon de Porod en fonction de la distance est présentée dans la Figure 92.a pour la qualité de mousse 0.7 et Figure 92.b pour la qualité de mousse 0.98. Chaque cycle de mesures réalisées entre l'entrée et la sortie représente un sous-groupe de mesure et est identifié par son gradient de pression moyen et son écart-type par une couleur différente (cf. légendes sur les Figure 92.a et Figure 92.b). Un cycle de mesure correspond à 3 positions (entrée, milieu et sortie espacées de 3.6 cm). A l'état stationnaire et pour chaque qualité de mousse, nous avons réalisé des mesures moins espacées (1 cm de distance entre 2 points d'acquisition), ce qui nous a permis d'avoir 9 valeurs au total pour chaque palier (représentées par la couleur bleu sur la Figure 92.a et par la couleur orange sur la Figure 92.b).

Ces deux figures montrent toutes les deux que les bulles diminuent en taille de l'entrée vers la sortie. La pression amont (en entrée) étant très supérieure à la pression aval (en sortie), on aurait pu s'attendre à une taille de bulles plus petite en entrée. Le fait que les bulles soient plus petites en sortie montre le rôle prépondérant du milieu poreux sur la texture de la mousse.

Les mesures correspondant à la qualité de mousse 0.7 ont été quasiment toutes réalisées à l'état stationnaire ou proche de l'état stationnaire ce qui explique la faible variation du gradient de pression. On note une légère diminution de la taille de bulle en fonction du gradient de pression. En revanche, les mesures effectuées à f_g 0.98 montrent une décroissance significative du gradient de taille des bulles (entre l'entrée et la sortie) entre le moment où on

a commencé l'injection à f_g = 0.98 ($\frac{\Delta P}{L}$ ~88.6 bar/m) et le dernier point de mesure où le gradient de pression était stable dans le temps (~136 bar/m).

De ces mesures, on déduit qu'il existe un gradient de taille de bulle assez fort à l'état transitoire, lors du passage d'une qualité de mousse à une autre, et qui a tendance à s'affaiblir lorsqu'on atteint l'état stationnaire.

De plus, on remarque que les bulles ont tendance à converger vers une taille moyenne quasi-unique quelque-soit l'état d'injection, transitoire ou stationnaire. Ceci sera discuté en comparant les tailles caractéristiques des pores et des seuils avec les tailles moyennes des bulles dans la section IV de ce chapitre.

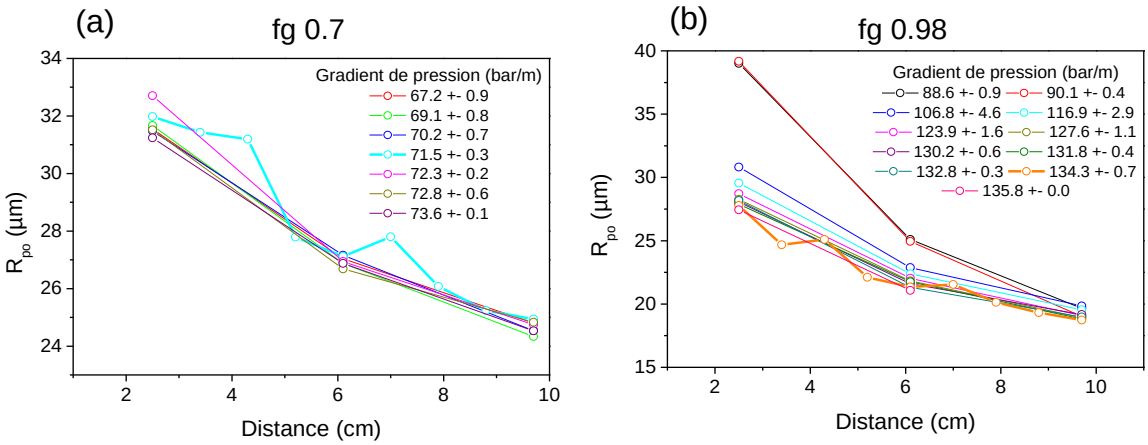


Figure 92 : (a) Évolution de la taille de bulles en fonction de la distance à f_g 0.7. (b) Évolution de la taille de bulles en fonction de la distance à f_g 0.98

Afin de quantifier ces variations en taille, on définit un coefficient de variation de la taille de bulle moyenne entre la mesure à la première position et la mesure à la dernière position selon l'équation suivante :

$$E_{fr}(\%) = \frac{a_0 - a_f}{a_0} \qquad \text{(III.51)}$$

Où a_0 est le rayon de Porod mesurée à la première position et a_f le rayon de Porod mesurée à la dernière position le long de la cellule. Le coefficient E_{fr} permet de rendre compte de la variation de la taille des bulles en fonction de la taille de bulle initiale des bulles, du gradient de pression $\frac{\Delta P}{L}$ et de la qualité de mousse f_g (cf. Figure 93). Ce graphe montre que E_{fr} diminue lorsqu'il y'a une grande variation du gradient de pression moyen, comme c'est le

cas pour la qualité de mousse à 0.98. On remarque aussi que E_{fr} diminue si la qualité de mousse diminue. Enfin, E_{fr} semble être une fonction croissante de a_0. Ces résultats sont très cohérents avec les mesures de Géraud et al., [84] sur l'écoulement de mousse pré-générée dans un micro-modèle. La variation de E_{fr} en fonction de la qualité de mousse s'expliquerait par les grandes déformations (dans le cas d'une qualité de mousse élevée) que subissent les bulles en traversant de larges constrictions de pores, avant de se diviser au niveau d'un branchement de canaux divergents [84]. Par ailleurs, l'augmentation de la fraction liquide c'est à dire le passage à une qualité de mousse plus faible permet de diminuer les frictions que subit la bulle avec les bulles voisines, ce qui réduit la probabilité pour une bulle de se diviser lors de son écoulement [84].

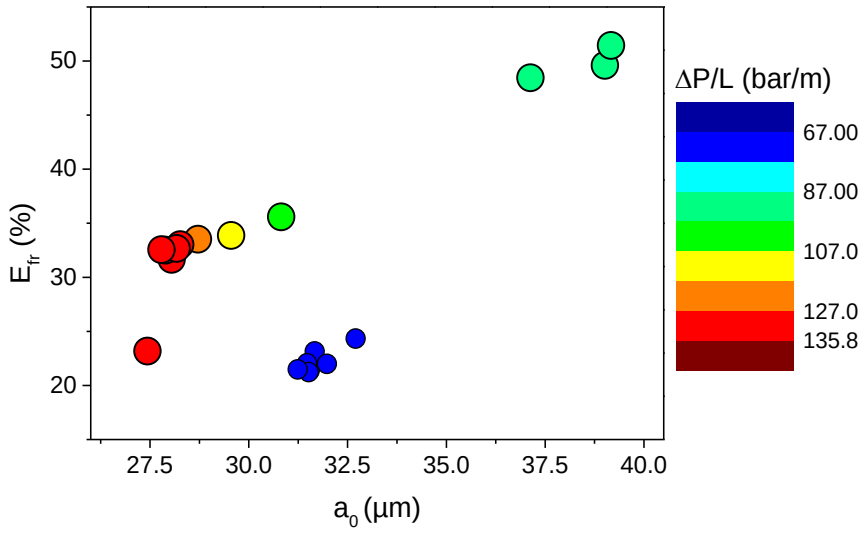


Figure 93 : Évolution du paramètre E_{fr} en fonction du rayon de Porod des bulles, mesuré à la première position à 2.5 cm de l'entrée. Les disques de grande taille (différentes couleurs) représentent la qualité de mousse 0.98 tandis que les disques de petite taille (en bleu) représentent la qualité de mousse 0.7. La couleur des disques indiquent le gradient de pression moyen mesuré pour chaque cycle de positions.

5. Modèle de fragmentation des bulles

Géraud et al., [107] ont observé une diminution de la taille moyenne des bulles entre l'entrée et la sortie, par analyse d'images de mousses en écoulement dans un micro-modèle. Ils ont expliqué que les bulles subissent un processus de fragmentation lors de leur écoulement. Ce processus est issu principalement du mécanisme de division lamellaire (ils n'ont pas observé d'autres mécanismes de génération de mousse comme le *snap-off ou leave-*

behind). Ainsi, ils ont pu démontrer une décroissance exponentielle de la taille de bulle moyenne en fonction de la distance. Ce modèle stipule l'absence de tout phénomène de coalescence des bulles par diffusion de gaz ou par rupture des films liquide à cause de la pression capillaire critique. Ainsi, les bulles ne disparaissent jamais et poursuivent leur écoulement en se divisant.

Nos résultats montrent qu'il y a une décroissance claire de la taille des bulles qui pourrait être expliquée par ce processus de fragmentation. En effet, les gradients de pressions enregistrés sont suffisamment élevés pour décrire un phénomène d'entrainement des lamelles et de leur division au cours de l'écoulement [27]. Nous pouvons représenter nos données par un modèle proche de celui de Baudoin et al., [107] et on l'adapte à notre cas pour décrire l'évolution du rayon de Porod en fonction de la distance de l'entrée de la cellule à travers l'équation suivante :

$$R_{po} = a_l + a_0 \exp(-F * x) \quad \text{(III.52)}$$

Où F représente le taux moyen de fragmentation des bulles qui s'exprime en cm^{-1}, a_0 le rayon de Porod initial des bulles en entrée du milieu poreux en µm, a_l le rayon de Porod des bulles à très grande distance et x la distance parcourue en cm. On fait l'hypothèse ici que les phénomènes de coalescence sont négligeables.

Les mesures expérimentales du rayon de Porod pour les qualités de mousse 0.7 et 0.98 ont été modélisées à l'aide de l'équation (III.52) (cf. Figure 94). Les paramètres issus de cette modélisation sont donnés dans le Tableau 23. D'après cette modélisation, on obtient les équations suivantes pour chaque qualité de mousse :

$$R_{po} = 18 + 18.7 \exp(-0.1\, x) \text{ à } f_g\ 0.7 \quad \text{(III.53)}$$

$$R_{po} = 16.3 + 18.5 \exp(-0.2\, x) \text{ à } f_g\ 0.98 \quad \text{(III.54)}$$

En première approximation, on peut déduire que le taux de fragmentation moyen des bulles a quasiment doublé entre f_g 0.7 et f_g 0.98 passant de 0.1 à 0.2 cm^{-1}. Corrélativement, le gradient de pression a quasiment doublé entre les deux états stationnaires des deux qualités de mousses. Toutefois, le modèle estime les valeurs des paramètres avec des écart-types assez élevés. On peut néanmoins affirmer que l'augmentation de la qualité de mousse (hors effets

de coalescence) favorise en moyenne la création de bulles plus petites et à une fréquence plus grande.

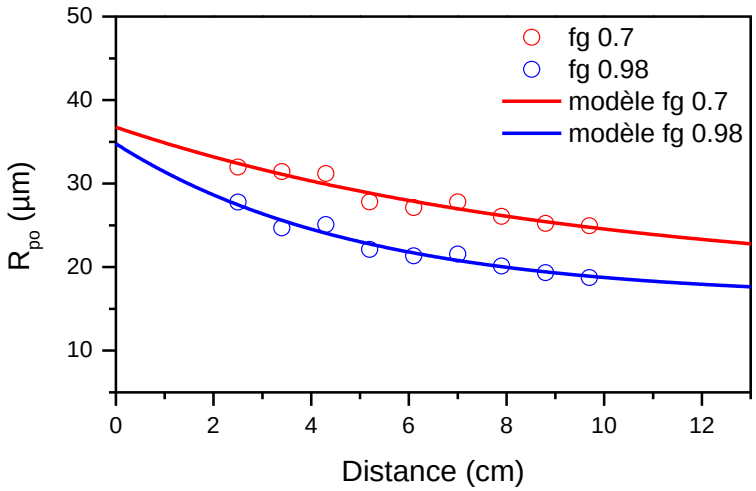


Figure 94 : Modélisation des mesures expérimentales des tailles moyennes des bulles en fonction de la distance pour l'expérience ILL à l'état stationnaire. On considère ici les mesures avec plusieurs positions uniquement pour la représentativité des données par rapport au modèle.

Paramètres / f_g	a_l **(µm)**		a_0 **(µm)**		F **(cm^{-1})**		**Statistiques**	
Valeurs	Moyenne	Ecart-type	Moyenne	Ecart-type	Moyenne	Ecart-type	χ^2	R^2
0.7	18.0	10.9	18.7	8.5	0.105	0.15	0.72	0.90
0.98	16.3	2.7	18.5	1.7	0.202	0.09	0.53	0.94

Tableau 23 : Paramètres du modèle de fragmentation des bulles appliqué aux données expérimentales à f_g 0.7 et f_g 0.98 pour l'expérience ILL.

IV. Relation entre la géométrie du réseau poreux et la structure de la mousse

L'objectif de cette partie est de comprendre comment la mousse se structure dans un réseau de pores et de seuils de pores lors des différentes étapes d'injection. Pour cela, une connaissance de la géométrie de nos milieux poreux est nécessaire. Avant de réaliser les expériences SANS, des images des milieux poreux secs dans leurs cellules SANS ont été réalisées en micro-tomographie X haute résolution. Les acquisitions ont été faites soit à l'ESRF (Synchrotron européen à Grenoble en France) sur la ligne ID19[10] soit à l'IFPEN à l'aide d'un micro-tomographe de laboratoire RX-solutions. Ces images (cf. Figure 95) ont permis d'extraire le réseau de pores et de seuils du système poreux en se basant sur une méthodologie d'analyse d'images (Porous Network Analysis, « PNA ») développée à l'IFP Énergies Nouvelles [136]. L'ensemble du traitement est réalisé à l'aide du logiciel Avizo, et d'un programme de calcul réalisé en C++ et qui sera décrit succinctement en Annexe L.

Les résultats issus de la modélisation « PNA » permettent d'estimer des tailles de pores et de seuils définies par cette méthodologie et d'en déduire une statistique de la distribution de ces tailles. En effet, par la suite on décrira le pore par son rayon équivalent noté R_{eq} et qui décrit le rayon de la sphère maximale délimitée par les restrictions du volume de ce pore. Les seuils seront décrits par leur rayon hydraulique équivalent noté $r_h$et qui représente la surface d'un seuil sur son périmètre. Notons qu'à travers cette méthodologie, les seuils représentent les éléments de surface qui forment les jonctions entres les pores. Ainsi, un même pore peut avoir plusieurs seuils en commun, desquels dérivent les différents canaux du milieu poreux.

Notons aussi qu'il existe différentes méthodes pour extraire et modéliser les milieux poreux et qui font d'ailleurs un sujet actif dans la recherche [137, 138]. Néanmoins, l'utilisation de cette méthode est un très bon moyen de comparaison des caractéristiques géométriques du milieu poreux avec les caractéristiques de la mousse (bulles et lamelles) issues de la modélisation des spectres SANS et présentés dans le paragraphe (III.A.3).

[10] Le fonctionnement de ligne ID19 et de l'acquisition des images sur cette ligne sera décrit en détails dans le chapitre 4

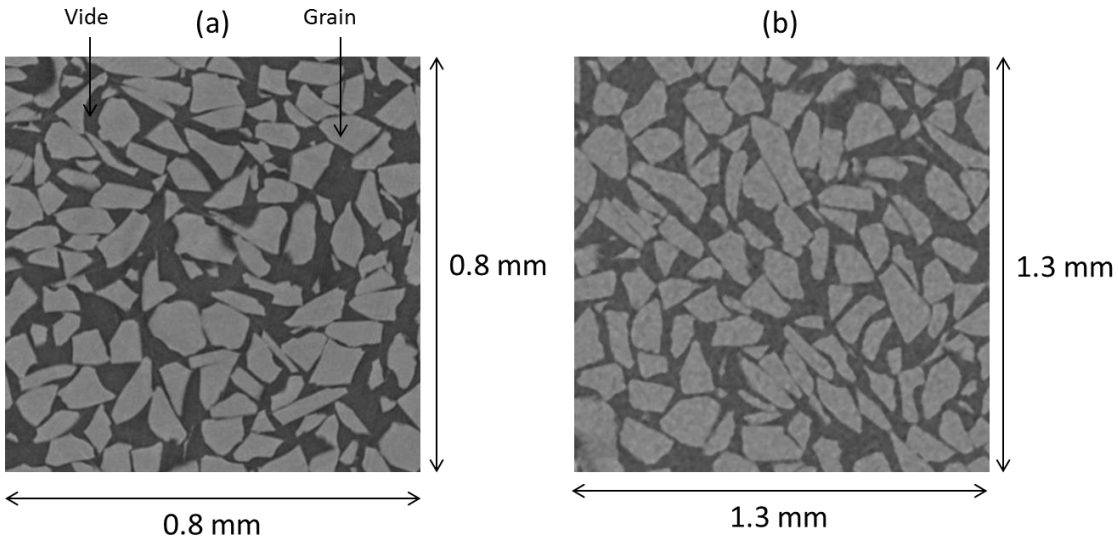


Figure 95 : Coupes tomographiques en niveau de gris des milieux poreux C et D, utilisés pour les expériences au LLB (a) et à l'ILL (b) respectivement. A gauche acquisitions au synchrotron, à droite avec le micro-tomographe de laboratoire (résolutions et rapport Signal/Bruit différents).

A. Évolution de la taille de bulle moyenne

1. Dans le milieu poreux C (71-112 µm)

On représente sur les Figure 96.a et Figure 96.b les distributions statistiques des rayons équivalents de pore et des rayons hydrauliques équivalents de seuil de pore r_h pour le milieu poreux utilisé lors de l'expérience LLB. Sur ces mêmes figures, on a ajouté des barres verticales représentant le rayon de Porod des bulles en fonction du f_g. L'amplitude des distributions de tailles de pores se lit sur l'axe de gauche tandis que l'amplitude des barres verticales qui représente le gradient de pression moyen se lit sur l'axe de droite[11]. On se focalise sur les qualités de mousse du régime basse qualité (f_g 0.5, 0.7 et 0.9) dans la Figure 96.a et sur les qualités de mousse 0.98 et 0.7(2) dans la Figure 96.b.

D'après la Figure 96.a, on remarque qu'il y'a un déplacement des tailles des bulles vers des pores et des seuils de plus en plus petits lorsqu'on passe d'une qualité de mousse de 0.5 à 0.7 puis à 0.9. Lorsqu'on arrive au régime stationnaire de la qualité de mousse 0.5 on

[11] Rappelons que le gradient de pression et la taille de bulle sont les résultats d'expérience d'écoulement de mousse où on impose le débit de gaz et le débit de la solution de tensioactifs pour former la mousse in-situ

atteint un rayon de Porod moyen d'environ 16.5 µm. Cette diminution de la taille de bulle est corrélée avec l'augmentation du gradient de pression. Le rayon minimal enregistré est d'environ 12.8 µm pour la dernière mesure effectuée à f_g 0.9.

Le passage en régime de coalescence, i.e. à une qualité de mousse de 0.98 montre un changement de taille de bulle dans le sens inverse, i.e. une augmentation accompagnée de la diminution du gradient de pression. Le passage à nouveau à une qualité de mousse de 0.7 permet de diminuer la taille de bulle moyenne une deuxième fois.

Par ailleurs, puisque les tailles de bulles que l'on décrit ici font référence au rayon de Porod qui est exprimé par le rapport du troisième moment sur le deuxième moment de la distribution des rayons de bulles, il est intéressant de réaliser le même calcul pour les rayons équivalents de pores et de seuils, à travers les équations suivantes :

$$\langle R_{eq} \rangle = \frac{\sum_i n_i R_{eq_i}^3}{\sum_i n_i R_{eq_i}^2} \tag{III.55}$$

$$\langle r_h \rangle = \frac{\sum_i n_i r_{h_i}^3}{\sum_i n_i r_{h_i}^2} \tag{III.56}$$

Où $\langle R_{eq} \rangle$ et $\langle r_h \rangle$ représentent le troisième moment sur le deuxième moment des distributions des rayons équivalents de pores et des rayons hydrauliques de seuils de pores respectivement. On trouve d'après ces calculs, que $\langle R_{eq} \rangle$ vaut 29.0 µm et que $\langle r_h \rangle$ vaut 12.4 µm. Il est remarquable d'en déduire alors que toutes les tailles de bulles calculées à travers la loi asymptotique de Porod se situent entre ces deux tailles caractérisant la géométrie du milieu poreux, et ce quelle que soit la qualité de mousse. Par ailleurs, ceci permet de valider les mesures effectuées avec deux techniques différentes : La taille des bulles en SANS et l'extraction des caractéristiques géométriques du milieu poreux à partir des images de micro-tomographie X.

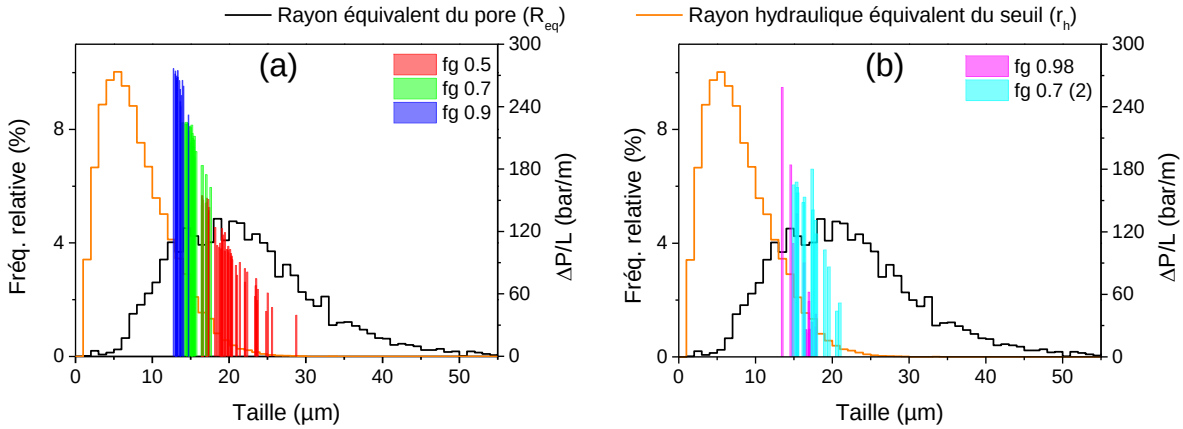


Figure 96 : Comparaison entre la distribution des rayons équivalents de pore (R_{eq}) et des seuils ($\boldsymbol{r_h}$) au rayon de Porod des bulles pour différentes qualités de mousse. L'amplitude de la distribution se lit sur l'axe de gauche tandis que l'amplitude des barres verticales représente le gradient de pression moyen et se lit sur l'axe de droite.

2. Dans le milieu poreux D (112-150 µm)

L'expérience à l'ILL a permis de déterminer les tailles de bulles à plusieurs positions entre l'entrée et la sortie de la cellule. La Figure 97 nous permet de comparer la taille des bulles à la distribution des tailles des pores et des seuils pour ce milieu poreux et pour trois positions différentes depuis l'entrée : 2.5 cm, 6.1 cm et 9.7 cm respectivement.

Nous mesurons en particulier pour ce milieu poreux un $\langle R_{eq} \rangle$ de 54.3 µm et un $\langle r_h \rangle$ de 20.4 µm. A travers cette expérience, il faut souligner que l'on montre encore une fois, que les tailles de bulles se situent entre ces deux paramètres $\langle R_{eq} \rangle$ et $\langle r_h \rangle$. En plus, on montre que ces valeurs délimitent la taille de bulle quelle que soit la distance le long de l'écoulement. En l'occurrence, on s'approche d'autant plus de la valeur calculée de $\langle r_h \rangle$ lorsqu'on est proche de la sortie du milieu poreux. Toutefois, il faut noter que nous avons mesuré une taille de bulle très légèrement plus faible que $\langle r_h \rangle$ en sortie du milieu poreux (cf. Figure 97 en bas). Il faut néanmoins tenir compte des éventuelles inhomogénéités des distributions des pores et des seuils de taille micronique sur une cellule de 13 cm, en plus de l'erreur intrinsèque à la mesure des tailles de bulles. Remarquons aussi que la distribution des pores et des seuils est plus large pour ce milieu poreux en comparaison avec le milieu poreux de l'expérience au LLB. Par conséquent, la distribution en taille de bulle serait certainement plus large dans le cas du milieu poreux utilisé à l'ILL que celui utilisé au LLB.

Par ailleurs, les gradients de pression, enregistrés lors de cette expérience sont plus faibles que ceux enregistrés pour l'expérience LLB. Ceci est en cohérence avec la taille des seuils et la perméabilité qui décrivent les deux milieux poreux.

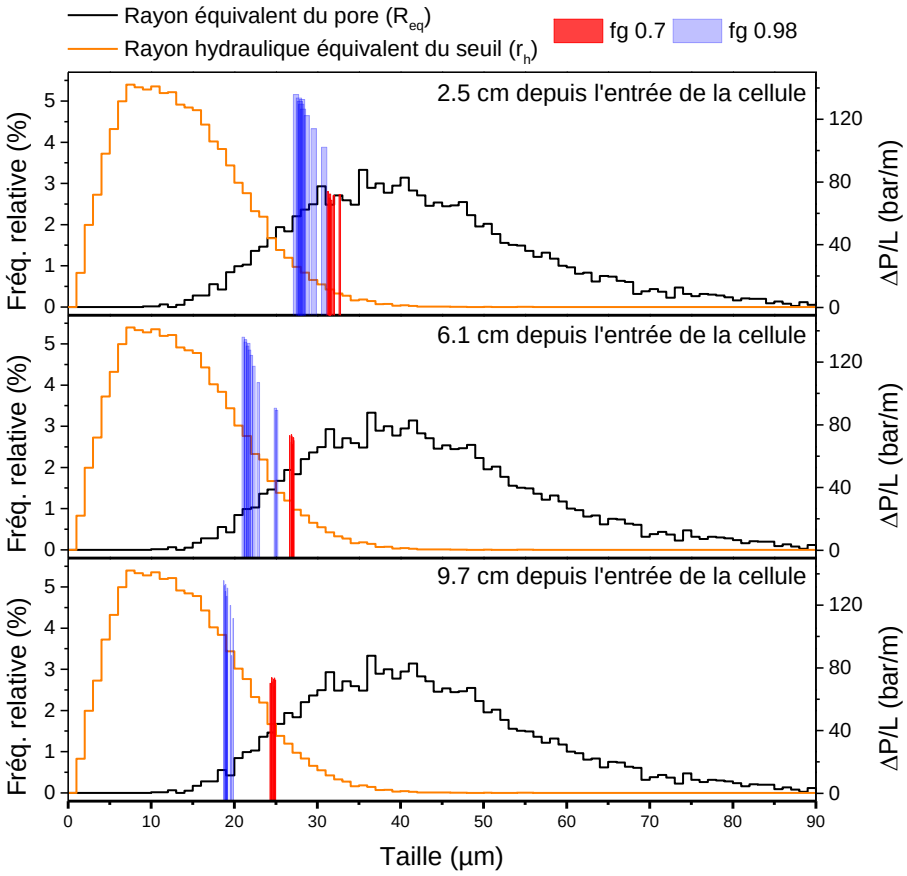


Figure 97 : Comparaison entre la variation des tailles de bulles en fonction de la position depuis l'entrée avec la statistique de distribution des rayons équivalents des pores et des rayons hydrauliques équivalents des seuils.

B. Densités volumiques des bulles et des lamelles

La connaissance du nombre de pores à travers l'analyse d'images réalisées par la méthode *PNA* permet de calculer un nombre de pores et un nombre de seuils par unité de volume poreux, N_{po} et N_s respectivement, selon les équations suivantes :

$$N_{po} = \frac{n_{po}}{V_p} \; et \; N_s = \frac{n_s}{V_p} \qquad \text{(III.57)}$$

Où V_p représente le volume poreux, n_{po} le nombre de pores et n_s le nombre de seuils. Pour le milieu poreux utilisé dans l'expérience LLB, on trouve que N_{po} vaut 1.26 10^7

pores/cm^3 et N_s vaut 6.59 10^7 seuils/cm^3, tandis que pour le volume poreux utilisé pour l'expérience ILL on a N_{po}= 2.16 10^6 pores/cm^3 et N_s= 9.34 10^6 seuils/cm^3. Il est normal d'avoir des densités volumiques de pores et de seuils plus grandes pour le milieu poreux LLB que pour ILL car les tailles des pores et des seuils sont plus petites pour le premier que pour le deuxième milieu. Par ailleurs, nous avons vu qu'il est possible d'estimer les densités volumiques de bulles N_b et de lamelles N_l à travers la modélisation des courbes SANS à l'aide du logiciel SaSFit. Ce qui nous permet enfin de comparer la densité volumique de bulles et de lamelles à la densité volumique de pores et de seuils pour chaque milieu, et de déduire des nombres de bulles et de lamelles moyens par pores et par seuils selon les équations suivantes :

$$\bar{b}_p = \frac{N_b}{N_{po}} \; et \; \bar{b}_s = \frac{N_b}{N_s} \tag{III.58}$$

$$\bar{l}_p = \frac{N_l}{N_{po}} \; et \; \bar{l}_s = \frac{N_l}{N_s} \tag{III.59}$$

Où $\bar{b}_p$ et $\bar{l}_p$ représentent les nombres moyens de bulles et de lamelles par pore, et $\bar{b}_s$ et $\bar{l}_s$ représentent les nombre moyen de bulles et de lamelles par seuil.

Les résultats pour les deux expériences sont présentés dans la Figure 98 pour la description des bulles et dans la Figure 99 pour la description des lamelles. Ces résultats montrent clairement qu'il existe en moyenne plus d'une bulle par pore pour les deux expériences. Si on analyse finement la courbe de la Figure 98.a, on s'aperçoit que le nombre de bulles augmentent pour les qualités de mousse 0.5, 0.7 et 0.9 (i.e. en régime basse qualité) puis diminue pour la qualité de mousse 0.98 (i.e. en régime haute qualité). Il s'agit là de la même tendance que l'évolution du rapport surface sur volume décrivant les bulles ou le gradient de pression en fonction de la qualité de mousse. Le nombre de bulles par seuil reste en revanche proche de 1 aux différentes qualités de mousse pour l'expérience LLB et augmente légèrement an fonction de la distance pour l'expérience ILL. En effet, pour comparer les résultats inter-expériences, il faut regarder les points à la position 2.5 cm (Expérience ILL) sur la Figure 98.b (le faisceau a été positionné au milieu de la cellule, à peu près à 3.2 cm depuis l'entrée des fluides, pour l'expérience LLB). En fonction de la distance, le nombre de bulles par pore et par seuils augmente et ceci est d'autant plus vrai que la qualité de mousse est élevée, comme le montre la Figure 98.b. Ces deux courbes montrent deux effets importants :

- La densité de bulle augmente en fonction de la taille moyenne des pores et des seuils : plus la taille moyenne des pores est grande plus il y'a de bulles qui se forment dans l'espace poreux
- L'augmentation du gradient de pression est le résultat cumulé de la réduction de la taille de bulle moyenne à une position donnée et de la densification des bulles le long du massif poreux.

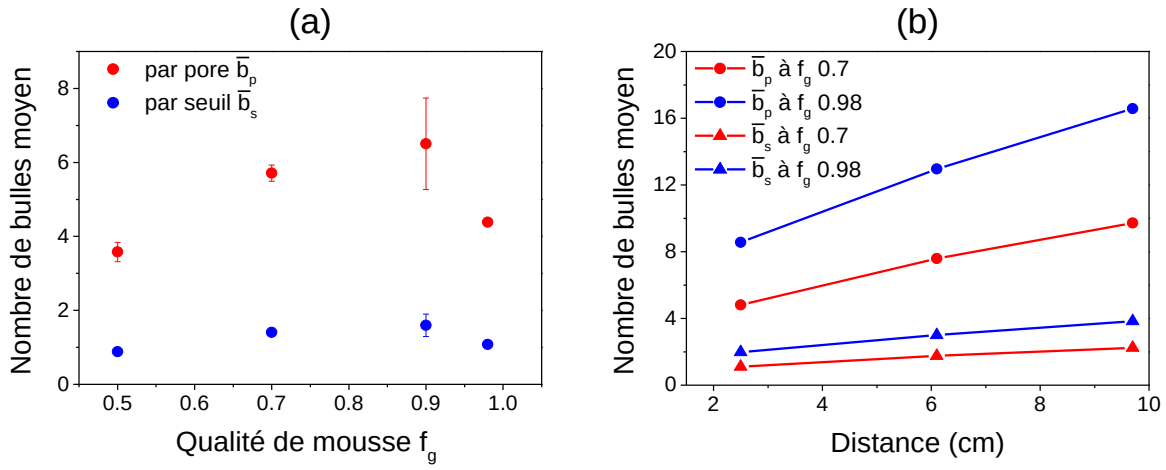


Figure 98 : Estimation du nombre de bulles par pore et par seuil pour les deux expériences : (a) LLB et (b) ILL.

Par ailleurs, le nombre moyen de lamelles par pore et par seuil pour l'expérience LLB (cf. Figure 99.a) suit exactement la même tendance que le nombre moyen de bulles par pore et par seuil en fonction de la qualité de mousse. On observe une augmentation de la densité de lamelles jusqu'à une qualité de mousse de 0.9 puis une diminution à 0.98. En valeurs, on estime qu'en régime basse qualité le nombre moyen de lamelles par pore est entre 2 et 4 puis diminue à 1 en régime haute qualité. En revanche, le nombre moyen de lamelles par seuil varie entre 0.3 et 0.9 sur toute l'expérience LLB avec un maximum à la qualité de mousse f_g 0.9. Il faut noter que pour un même milieu poreux, le nombre de seuils ne change pas d'une qualité de mousse à l'autre. Du point de vue statique, l'augmentation de la densité de lamelles est due certainement au changement dans la structure de la mousse, i.e. à l'augmentation de la quantité de lamelles en fonction de la qualité de mousse. Du point de vue dynamique, l'augmentation de la qualité de mousse en régime basse qualité engendre une augmentation du gradient de pression (cf. Figure 82), ce qui forcerait la mousse à envahir de plus en plus de seuils de pores et donc à avoir un nombre de lamelles par seuil plus grand. Il est intéressant aussi de comparer $\bar{b}_p$ avec $\bar{l}_p$ (cf. Figure 98.a et Figure 99.a) lors du passage de la qualité de mousse 0.9 à 0.98, i.e., le passage du régime basse qualité au régime haute qualité : on

remarque que $\bar{b}_p$ baisse de 33 %, tandis que $\bar{l}_p$ baisse de 73%. Ceci montre que la densité de lamelles subit une plus grande chute que la densité de bulle lors du passage d'un régime d'écoulement à l'autre. Ce qui rend compte de **(a)** l'importance des lamelles pour maintenir une structure de « mousse forte » en régime basse qualité, malgré leur taille de quelques nanomètres, et **(b)** des phénomènes de coalescence et de rupture des lamelles que subit la mousse lorsqu'on dépasse une qualité de mousse critique.

A la même position, le passage d'une qualité de mousse de 0.7 à 0.98 montre une augmentation de la densité de lamelles pour l'expérience ILL (cf. Figure 99.b). En revanche, on remarque des tendances inversées entre f_g0.7 et f_g 0.98 : le nombre moyen de lamelles diminue légèrement en fonction de la distance pour f_g 0.7 et augmente pour f_g 0.98. Ceci pourrait être expliqué par la quantité de liquide qui est plus grande pour une mousse à f_g 0.7 que pour une mousse à f_g 0.98, comme nous l'avons montré à travers les mesures de saturation de gaz (cf. Figure 91). Enfin, la comparaison inter-expériences révèle le même ordre de grandeur pour le nombre moyen de lamelles, surtout à la qualité de mousse f_g 0.7.

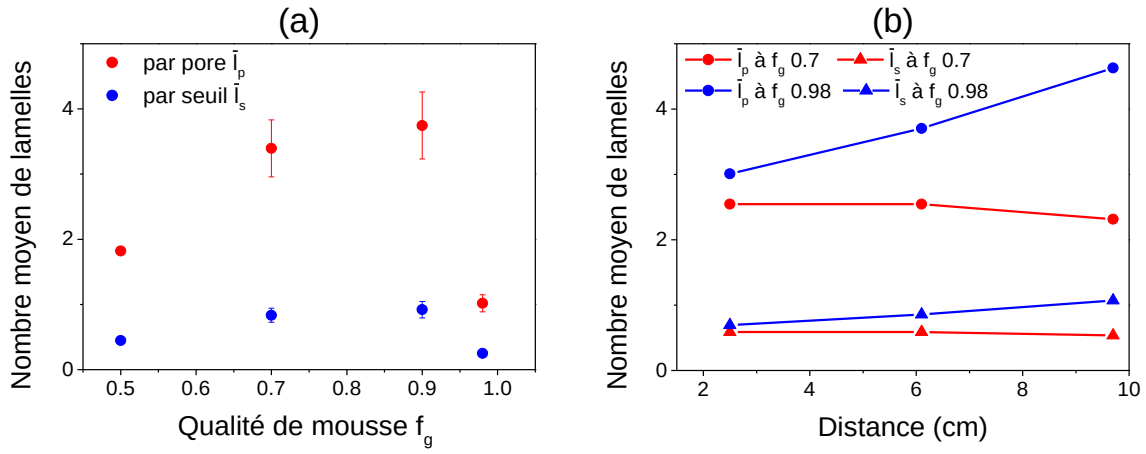


Figure 99 : Estimation du nombre de lamelles par pore et par seuil pour les deux expériences : (a) LLB et (b) ILL.

C. Nombre de lamelles par bulle

Afin de décrire le rapport de lamelles par rapport aux bulles, on définit un nombre moyen de lamelles par bulle à l'aide de l'équation suivante :

$$\bar{f} = \frac{N_l}{N_b} \tag{III.60}$$

$\bar{f}$ est un rapport de quantité de lamelles par rapport à la quantité de bulles, qui représente une moyenne dans le volume sondé. Les variations de $\bar{f}$ en fonction de la qualité de mousse pour l'expérience LLB sont présentés dans la Figure 100.a, et les variations en fonction de la distance pour l'expérience ILL sont présentés dans la Figure 100.b.

Sur la Figure 100.a, on remarque que le nombre moyen de lamelles par bulle évolue entre 0.5 et 0.6 en régime basse qualité. Ceci voudrait dire qu'il existe à peu près une lamelle pour deux bulles dans ce régime, ou bien qu'une lamelle est partagée par 2 bulles. On pourrait penser que la structure dominante de la mousse pendant ce régime est un train de bulles jointives en écoulement. Lorsqu'on passe à une qualité de mousse de 0.98 en régime haute qualité, $\bar{f}$ diminue à 0.2. Ceci est cohérent avec la rupture de lamelles et donc la diminution de leur quantité, que nous avons schématisé dans la Figure 86.

Par ailleurs, $\bar{f}$ diminue en fonction de la distance (cf. Figure 100.b) pour se stabiliser autour d'une valeur de 0.3. On pourrait interpréter cette décroissance à travers la saturation de gaz qui a tendance à diminuer au bout du milieu poreux (cf. Figure 91), ce qui traduit une quantité liquide plus grande entre les bulles et donc diminue le signal des lamelles fines par diffusion aux petits angles, et donc leur quantité estimée. Tout en ayant des bulles de plus en plus petites vers la sortie, comme montré précédemment dans la Figure 92.

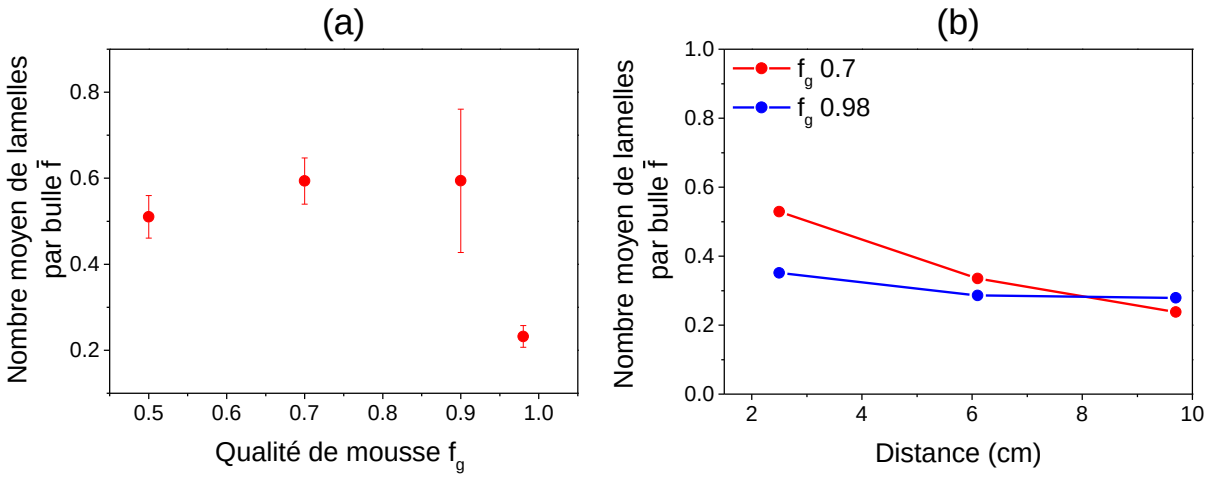


Figure 100 : Estimation du nombre de lamelles par bulle pour les deux expériences : (a) LLB et (b) ILL.

V. Conclusion du troisième chapitre

La technique de diffusion de neutrons aux petits angles a été utilisée pour la première fois pour décrire la mousse en écoulement dans un milieu poreux depuis l'échelle de la bulle jusqu'à l'échelle de la lamelle. Cette technique donne directement une information sur la texture de la mousse en écoulement. Elle donne accès notamment à la surface spécifique développée par les bulles de la mousse. En faisant l'hypothèse de géométrie sphérique, on trouve des tailles de bulles très cohérentes avec les dimensions de la structure poreuse du milieu dans lequel elles ont été formées. Elle donne aussi accès à des informations sur la densité des lamelles et la densité des bulles. C'est une des rares techniques à pouvoir atteindre une telle résolution sur de larges zones statistiquement représentatives de l'échantillon.

Les principaux résultats de ce chapitre sont résumés ci-dessous :

- La méthode de contrast-matching appliquée à une mousse en écoulement dans un milieu poreux granulaire a été testée et validée avec succès. La co-injection en continu d'eau et d'eau lourde à des débits fractionnaires variables a permis d'estimer les conditions de match en continu. On n'annule pas complètement le contraste mais le contraste résiduel est suffisamment faible pour ne pas perturber l'analyse des courbes SANS de la mousse dans le même milieu poreux.
- Les mesures de diffusion de neutrons aux petits angles montrent un signal formé de trois contributions majeures : les bulles de gaz, les lamelles et les micelles de tensioactifs. Ainsi à l'aide d'une seule technique on arrive à sonder dans l'espace réciproque une structure multi-échelle sur plusieurs ordres de grandeurs et à en extraire des paramètres d'intérêt.
- La modélisation des spectres de diffusion confirme l'existence d'objets de différentes géométries.
- La gamme de q relative aux bulles vérifie une loi de Porod qui permet d'accéder à la surface spécifique absolue de la mousse dont on peut déduire une taille de bulle moyenne. Ces deux paramètres sont corrélés au gradient de pression dans le régime basse qualité. La taille de bulle moyenne varie en fonction de la qualité de mousse injectée et du milieu poreux dans lequel s'écoule la mousse : Ainsi, la taille de bulle diminue en régime basse qualité, tandis qu'elle augmente légèrement en régime haute qualité. La diminution relative de la surface spécifique moyenne en régime

haute qualité en comparaison avec le régime basse qualité révèle la création d'un chemin de percolation de gaz au sein de la mousse, accompagnant une faible coalescence des bulles. Ceci est confirmé par la forte diminution du gradient de pression pour ce dernier régime alors que la taille de bulle n'augmente pas proportionnellement.

- La taille de bulle moyenne diminue en fonction de la distance depuis l'entrée de la cellule vers sa sortie. Ce résultat est important car la pression amont étant très élevée comparativement à la pression aval, on aurait pu s'attendre à l'inverse. Cette diminution montre le rôle prépondérant du milieu poreux sur la taille des bulles. Un modèle de fragmentation des bulles par le milieu poreux permet de rendre compte des résultats expérimentaux. Ce processus pourrait être modélisé à l'aide d'une loi exponentielle.
- La comparaison entre les tailles géométriques des rayons équivalents des pores et des seuils et les tailles moyennes de bulles montre une évolution de cette dernière vers des tailles de pores de plus en plus petites lorsque le gradient de pression augmente ainsi que dans la direction de propagation de la mousse dans le milieu poreux.
- Le rayon de Porod qui décrit le rapport du troisième moment sur le deuxième moment d'une distribution quelconque de bulles de mousse forte dans un milieu poreux homogène, se situe entre les rapports des troisième et deuxième moments des distributions des rayons équivalents de pores et des rayons hydrauliques équivalents des seuils de pore.
- En termes de densité de bulles par rapport à la densité de pores et de seuils, on estime qu'il existe plus qu'une seule bulle par pore et que ce nombre augmente en régime basse qualité en fonction de la qualité de mousse puis diminue en régime de coalescence. La densité de bulle est d'autant plus grande que l'on passe de l'entrée à la sortie de la cellule. Le nombre de bulles par seuils reste lui relativement faible et proche de 1.
- Le nombre de lamelles est plus faible que le nombre de bulle de manière générale, mais les deux valeurs restent proches. Le nombre de lamelles par pore et par seuil suit la même tendance que le nombre de bulle par pore et par seuil en fonction de la qualité de mousse. C'est-à-dire une augmentation en régime basse qualité puis une diminution en régime haute qualité. Toutefois la densité de lamelles diminue plus

fortement que la densité de bulles lors du passage d'un régime d'écoulement à l'autre.

Chapitre IV : Écoulement de la mousse à l'échelle du pore en 3D

I. Introduction 172

II. Matériels et expérience 173
A. Présentation de la ligne ID19 de l'ESRF 173
B. Expérience 174
1. Montage expérimental 174
2. Conditions expérimentales 176
C. Acquisition des images 177

III. Résultats 180
A. Caractéristiques microscopiques de la mousse 180
B. Traitement des images 182
1. Gestion des données 183
2. Procédure de traitement des images 183
a) Prétraitement 183
b) Segmentation 184
3. Calcul de la saturation des phases 185
4. Dynamique de piégeage des bulles 187
a) Évolution de la fraction de liquide immobile 187
(i) Dynamique d'acquisition lente 187
(ii) Dynamique d'acquisition rapide 191
b) Mécanisme de piégeage de la mousse 195

IV. Discussion 199

V. Conclusion du quatrième chapitre 204

I. Introduction

L'écoulement d'une mousse en milieu poreux est un processus complexe dans lequel interviennent des phénomènes qui se produisent à des échelles de temps et d'espace qui varient de plusieurs ordres de grandeur. Les nombreuses études sur micro-modèles 2D en témoignent. Le piégeage et son intermittence a été mis en évidence [84] et fait toujours l'objet d'études pour mieux comprendre les mécanismes mis en jeu. Plusieurs auteurs [139–142] ont réussi à imager la mousse Bulk à l'aide de la technique de micro-tomographie X, pour étudier la structure et la statistique des bulles notamment. En revanche aucune étude n'a été dédiée à l'observation des mousses dans un milieu poreux réel ou modèle en trois dimensions et *a fortiori* sous écoulement. Dans ce chapitre, nous présentons le travail expérimental réalisé pour observer la mousse pendant son écoulement dans un milieu poreux formé de grains de silice. Cette étude réalisée en micro-tomographie X haute résolution sur la ligne ID19 du synchrotron européen de Grenoble en France est la première de ce genre dans ce domaine. Dans un premier temps, nous décrivons l'environnement expérimental spécifiquement développé pour cette étude, puis dans un deuxième temps, nous analysons les images qui en sont issues et discutons des résultats obtenus en lien avec la littérature.

II. Matériels et expérience

A. Présentation de la ligne ID19 de l'ESRF

L'ESRF est un synchrotron européen situé à Grenoble et qui est dédié à la recherche scientifique qui fédère plus de 22 pays dans le monde. Il s'agit d'une installation qui possède un anneau circulaire de 844 m de circonférence duquel dérivent 43 lignes de faisceaux, essentiellement de rayons X (cf. Figure 101).

Figure 101 : Installation européenne de rayonnement synchrotron (ESRF).

Nos expériences ont été réalisées sur la ligne ID19 de l'ESRF. Il s'agit d'une ligne de tomographie X rapide, haute résolution qui délivre un faisceau de rayon X de très grande brillance et d'énergie variable entre 6 et 120 keV. Afin d'atteindre de telles caractéristiques, le flux de rayons X est généré par un super onduleur magnétique de 1.4 T. La distance totale de la ligne fait 145 m et la source de rayons X fait 30 µm en vertical et 120 µm en horizontal. Cette grande distance de ligne permet d'obtenir un faisceau parallèle et cohérent. Ce dernier traverse un ensemble d'éléments optiques composés de diaphragmes, de fentes et de filtres avant d'arriver dans le guide de faisceau qui se trouve dans le local d'expérimentation. Un monochromateur qui consiste en un cristal de Silicium 111 est utilisé pour obtenir un faisceau monochromatique. Après avoir traversé l'échantillon, les rayons X arrivent sur un scintillateur en céramique (LuAG Lutétium Aluminium Garnet) de 25 µm d'épaisseur qui les transforme en photons de lumière visibles. Ces derniers sont projetés sur une caméra PCO Dimax composée d'un capteur de type CMOS de taille 2016 x 2016 pixels avec une taille physique de pixel qui vaut 1.1 x 1.1µm^2.

B. Expérience

1. Montage expérimental

Le montage expérimental est présenté dans la Figure 103. Dans cette expérience, la mousse a été pré-générée par co-injection du gaz et de la solution de tensioactifs à l'aide d'une cellule SANS de 6.4 cm de longueur, avant d'être injectée dans une cellule spécifiquement adaptée à l'étude des écoulements en milieux poreux par tomographie X à haute résolution. Cette cellule, qu'on appellera par la suite « Microcellule », a fait l'objet d'une demande de dépôt de brevet en 2018. Elle possède une partie mobile et une partie fixe : le milieu poreux est contenu dans la partie mobile, de manière à pouvoir effectuer une rotation continue et infinie du milieu poreux pendant les acquisitions, grâce à un système de joints tournants. La partie fixe entoure la partie mobile et comprend une embase supérieure, une embase inférieure et un corps central, le corps central reliant les embases supérieures et inférieures, positionnées à chacune des extrémités du corps central. Les embases supérieure et inférieure comprennent les entrées/sorties de fluide, l'entrée étant dans l'une des embases et la sortie dans l'autre embase, de manière à ce que le fluide se dirige d'une embase vers l'autre, via des moyens de circulation de fluide compris à la fois dans la partie fixe et dans la partie mobile. Ainsi, le fluide entre dans une embase de la partie fixe, puis pénètre dans la partie mobile, se dirige à travers la partie mobile, dans une direction longitudinale, vers la deuxième embase et ressort de cette deuxième embase par la sortie, contenue dans la deuxième embase. Lorsqu'il passe dans la partie mobile, le fluide traverse le milieu poreux, contenu dans la partie mobile (cf. Figure 102.a).

La partie mobile consiste en un tube en PEEK (grande transmission des rayons X), de 10.15 cm de longueur et de 2 mm de diamètre interne. Nous avons choisi ce diamètre pour pourvoir imager la largeur de la cellule totale et la contenir dans le champ de vue du détecteur. La partie mobile est libre en rotation, par rapport à la partie fixe, autour de son axe longitudinal. Ainsi, des radiographies X peuvent être acquises à différentes positions angulaires, sans arrêter la rotation, ni la circulation des fluides (cf. Figure 102.b).

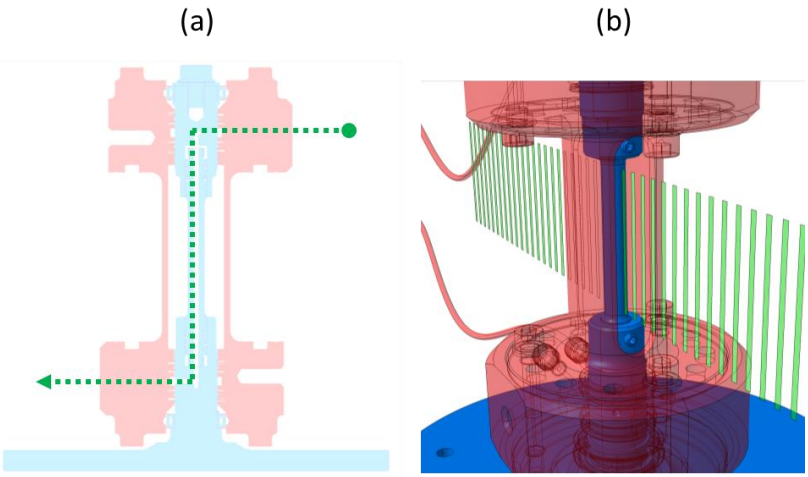


Figure 102 : (a) Schéma de circulation des fluides et (b) schéma du fonctionnement de la microcellule lors des acquisitions tomographiques.

La cellule SANS a été utilisée comme mousseur pour cette expérience et a été placée en amont de la microcellule (cf. Figure 103). Les deux cellules ont été remplies de grains de silice de granulométrie A (112-150 µm) (cf. Chapitre 3). L'ensemble des tubings est en éthylène propylène fluoré (FEP) transparents qui nous permet de (1) contrôler visuellement le passage des fluides et de (2) rendre le montage expérimental plus flexible et plus souple. Le reste du dispositif expérimental est similaire à celui qui a été présenté dans les chapitres 2 et 3.

Pour permettre un suivi en temps réel de l'évolution de la pression, nous avons déporté l'ordinateur de contrôle à l'extérieur de la cabine expérimentale qui est interdite d'accès durant les acquisitions. Deux capteurs absolus ont été utilisés pour mesurer les pressions amont et aval de la cellule SANS. Le capteur différentiel a été utilisé pour les mesures de pression aux bornes de la microcellule.

La solution de tensioactif utilisée est composée de SDS à 0.5% en masse avec une saumure de NaCl de 0.2% en masse. Il s'agit de la même solution de tensioactifs (sans ajout de D_2O) que celle utilisée pour les expériences SANS présentées dans le chapitre 3. Pour la saturation du milieu poreux, on utilise la saumure de NaCl à 0.2% en masse. Le gaz utilisé est de l'azote N_2 injecté à l'aide du débitmètre Brooks SLA 5850S. La pression de pore est régulée 5 bars en aval de la microcellule. Les porosités des milieux poreux ainsi que leurs perméabilités sont indiquées dans le Tableau 24, pour deux expériences réalisées à l'ESRF.

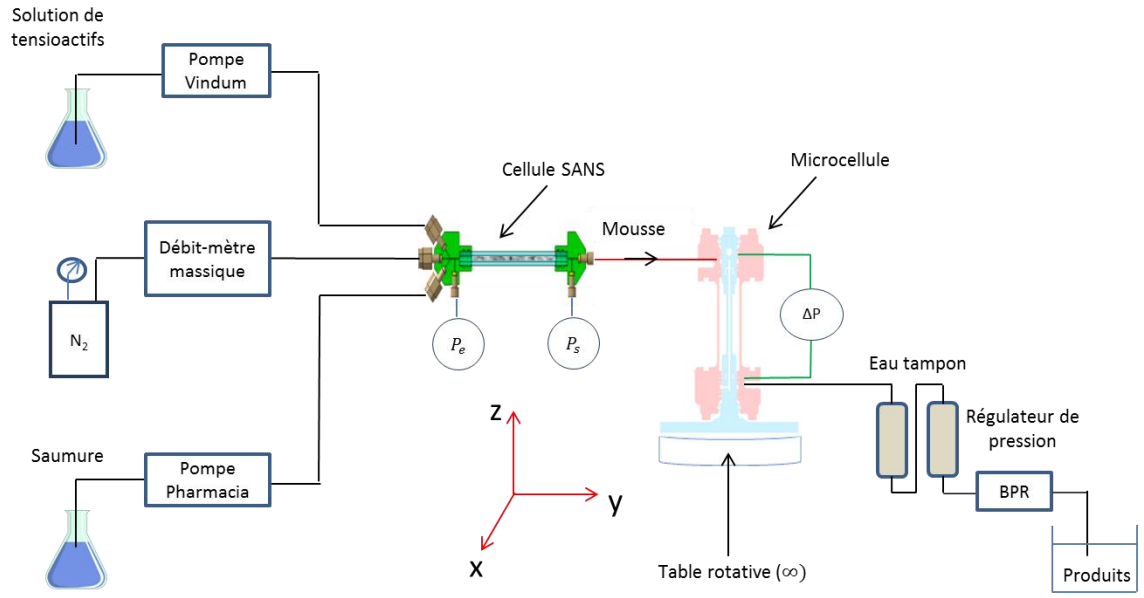


Figure 103 : Montage expérimental d'observation de mousses en milieu poreux sur la ligne ID19.

Expérience	Φ_m	K_m **(D)**	$\Phi_{\mu C}$	$K_{\mu C}$ **(D)**
1	38.4%	9.3±0.5	44.7%	17.6±0.2
2	38.7%	11.4±0.7	40.7%	8.5±0.1

Tableau 24 : Porosités et perméabilités des milieux poreux utilisés lors de l'expérience Id19 : Φ_m et K_m désignent la porosité et la perméabilité de la cellule SANS. $\Phi_{\mu C}$ et $K_{\mu C}$ désignent la porosité et la perméabilité du milieu dans la microcellule.

2. Conditions expérimentales

Les deux milieux ont été d'abord saturés en saumure, avant de générer la mousse en co-injectant le tensioactif et le gaz à un débit total fixé et à une qualité de mousse donnée. Les conditions expérimentales sont résumées dans le Tableau 25 ci-dessous. Il faut noter que les débits auxquels nous avons travaillé engendrent des vitesses interstitielles élevées à cause de la section d'entrée de la microcellule qui est très petite (0.031 cm^2). Ces choix des vitesses ont été guidés par notre volonté de tester plusieurs qualités de mousse dans le temps qui a été alloué à ces expériences. A ces débits d'injection et avec une taille de pore d'une centaine de microns de diamètre en moyenne, on s'attend à un écoulement d'une grande vitesse linéaire, de l'ordre de 20 pores par seconde. Or pour pouvoir suivre des phénomènes dynamiques et éviter des phénomènes d'artefacts, il faut respecter la règle suivante [139] :

$$t_{scan} < \frac{taille\ de\ pixel}{V_{int}} \quad \text{(IV.1)}$$

Où t_{scan} correspond au temps d'acquisition d'une tomographie et V_{int} la vitesse interstitielle du fluide. De cette relation , on déduit qu'avec les vitesses auxquelles nous avons travaillé, il aurait fallu un temps de scan inférieure à 0.3 ms pour une taille de pixel de 1.1 µm et inférieur à 0.6 ms pour une taille de pixel de 0.55 µm. Nous montrerons qu'il est quand même possible d'exploiter les images, car la mousse dans les milieux poreux est formée d'une partie mobile et d'une partie piégée, et que cette dernière peut être imagée à l'aide d'une résolution temporelle d'une seconde ou plus.

Nous avons réalisé deux expériences dont les paramètres sont listés dans le Tableau 25 ci-dessous.

Numéro d'expérience	Q_g **(mL/h)**	Q_l **(mL/h)**	Q_t **(mL/h)**	f_g	V_{int_t} **(mm/s)**
1	4.6	4.6	9.2	0.5	1.81
	6.4	2.7	9.2	0.7	1.81
	8.2	0.9	9.2	0.9	1.81
	6.4	2.7	9.2	0.7	1.81
	7.7	3.3	11.0	0.7	2.17
	8.3	3.6	11.9	0.7	2.35
	6.4	2.7	9.2	0.7	1.81
	8.2	0.9	9.2	0.9	1.81
2	5.9	2.5	8.4	0.7	1.83
	7.5	0.8	8.4	0.9	1.82
	6.7	1.7	8.4	0.8	1.82
	4.2	4.2	8.4	0.5	2.38
	3.4	2.1	5.5	0.62	1.20

Tableau 25 : Conditions expérimentales de co-injection du tensioactif et du gaz pour les expériences d'écoulement de mousses sur ID19.

C. Acquisition des images

Chaque volume 3D est caractérisé par un nombre de projections, un temps d'exposition par projection, une taille de champ de vue et une taille de pixel. Ces paramètres

peuvent être choisis indépendamment les uns des autres, mais influencent la fréquence d'acquisition des images et la rapidité de stockage des données. Une image 3D est acquise pendant une rotation de 180°.

Nous avons pu travailler dans deux configurations différentes à l'aide de deux systèmes de lentilles qui permettent d'avoir deux types d'agrandissement : un premier qui permet d'obtenir une taille de pixel finale de 1.1 µm et un second qui permet d'avoir une taille de pixel de 0.55 µm. Deux tailles d'images ont été visées : 1008 x 1008 et 2016 x 2016. Une acquisition 1008 x 1008 avec une taille de pixel de 1.1 µm permet d'avoir un champ de vue de 1.1 mm. La taille du volume reconstruit est la même dans les 3 directions $x, y\ et\ z$. On obtient ainsi un cube pour chaque image 3D.

Dans le cadre de nos expériences, nous avons travaillé avec une lumière blanche filtrée pour produire une lumière dite « pink » optimisée pour notre échantillon autour d'une énergie de 35 keV. Pour cela, nous avons utilisé un élément d'insertion appelé U17.6 (U pour *undulator*) avec un entrefer des aimants (*gap*) de 11.5 mm et des filtres composés d'aluminium de 5.6 mm d'épaisseur. La distance échantillon-caméra variait entre 80 et 130 mm selon la taille de l'image.

Pour la 1ère expérience, nous avons choisi de réaliser des acquisitions avec un temps d'exposition de 1ms par projections avec 1000 projections, ce qui permet d'avoir une image 3D en 1 s. Pour la 2ème expérience, nous avons choisi un temps d'exposition de 2 ms par projection pour 1000 projections pour les images 1008 x 1008 pixels^2 et 1 ms par projection pour 2000 projections pour les images 2016 x 2016 pixels^2. Ainsi toutes les images ont été acquises en 2 s pour cette deuxième expérience. L'augmentation du temps d'acquisition a montré une amélioration significative de la qualité des images.

Par ailleurs, nous avons testé deux séquences d'acquisitions différentes :

- Une séquence standard qui correspond à l'acquisition d'une image 3D, stockée dans la mémoire RAM de la caméra avant d'être directement téléchargée sur le serveur. Ce mode permet de réaliser des acquisitions d'images environ toutes les minutes.
- Une séquence continue qui correspond à une acquisition continue d'images 3D toutes les secondes (ou toutes les 2 secondes) sans vider la RAM de la caméra. La mémoire de la caméra étant finie, le nombre d'images acquises en continu dépend

de la taille physique qu'elles occupent en mémoire. On peut par exemple acquérir jusqu'à 24 images continues de taille 1008 x 1008 pixels^2. Par contre, une fois la mémoire RAM remplie, il faut attendre le déchargement des images pendant douze à 20 minutes. Il est impossible de réaliser des acquisitions pendant ce déchargement.

A l'issue d'une acquisition, les radiographies sont stockées sous format edf (pour *ESRF Data Format*. Pour la reconstruction des images, on utilise un algorithme développée par l'ESRF (PyHST2) [143]. Pour gagner du temps sur le transfert des données depuis les serveurs de l'ESRF, les images ont été récupérées en format 16 bits sans aucune correction des anneaux (*ring artefacts*) pendant la reconstruction. Malgré cela, la récupération totale de toutes les images a nécessité plusieurs semaines à cause du volume important de données acquises.

III. Résultats

A. Caractéristiques microscopiques de la mousse

Une description qualitative des images en fonction de la position de la cellule (entrée de la cellule, milieu et sortie) et de la qualité de mousse est donnée en Annexe M. Les images montrent que le passage de la qualité de mousse de f_g 0.5 à f_g 0.7 engendre une diminution de la fraction liquide et une diminution de la taille de bulle à iso position dans la cellule. On note aussi que la fraction liquide diminue clairement entre l'entrée et la sortie de la cellule. Cette diminution s'accompagne d'une diminution de la taille des bulles de l'entrée vers la sortie.

Sur les Figure 104.a et Figure 104.b, on compare le milieu entièrement saturé en liquide avec le milieu contenant une mousse de qualité f_g de 0.7 pendant le régime transitoire. Les images représentent une coupe longitudinale[12] de chaque volume. Sur l'image du milieu saturé dont l'histogramme est représenté sur la Figure 105.a, on distingue de manière très nette les deux phases (liquide en bleu + solide en jaune). Le liquide apparaît à un niveau de gris proche de 100, tandis que la phase minérale (la plus absorbante) se situe à un niveau de gris de 175 environ. De la même manière, sur l'image de la mousse dont l'histogramme est représenté sur la Figure 105.b, on arrive à bien distinguer les trois phases (liquide + solide + gaz). Les phases liquide et solide apparaissent à des niveaux de gris proches de 100 et 175 respectivement, et la phase gaz apparait à un niveau de gris plus bas vers 50.

[12] Les coupes longitudinales correspondent aux plans (x,z) ou (y,z) et les coupes axiales correspondent au plan (x,y)

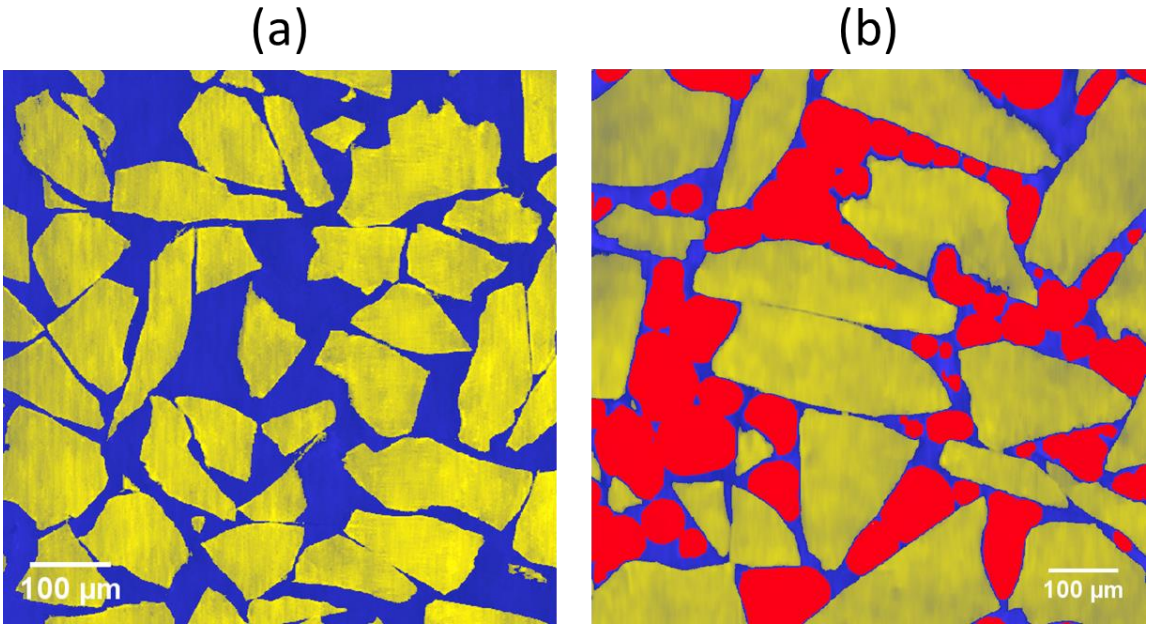


Figure 104 : Coupes longitudinales des micro-tomographies X du milieu saturé en saumure (a) et du milieu rempli de mousse à une qualité de mousse de 0.7 (b). L'échelle est indiquée en µm. Les grains sont en jaune, le liquide en bleu et les bulles en rouge.

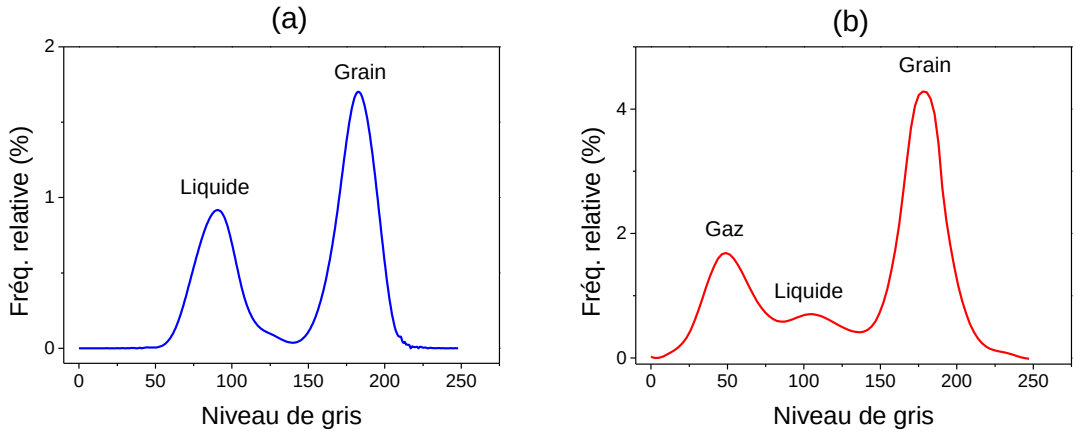


Figure 105 : Histogrammes du milieu saturé en saumure (a) et du milieu rempli de mousse (b).

La phase liquide représente la phase minoritaire, en bon accord avec la définition d'une mousse. Un zoom sur l'image de la mousse (cf. Figure 106.b et c) permet de visualiser des bords de Plateau dont on peut deviner le prolongement vers les lamelles. La résolution spatiale ne permet pas de détecter les lamelles dont l'épaisseur est inférieure ou de l'ordre de 200 nm [118]. Dans ce milieu poreux[13], la mousse observée est formée de plusieurs bulles

[13] D'autres images de la mousse dans le milieu poreux sont données à titre illustratif en Annexe N.

jointives comme dans une mousse *Bulk* (cf. Figure 106.b et c). Dans le milieu poreux cependant, des trains de bulles s'écoulent et sont contraints par la géométrie des canaux du réseau poreux (Figure 106.a et Figure 106.b). On dénombre plusieurs bulles par pore.

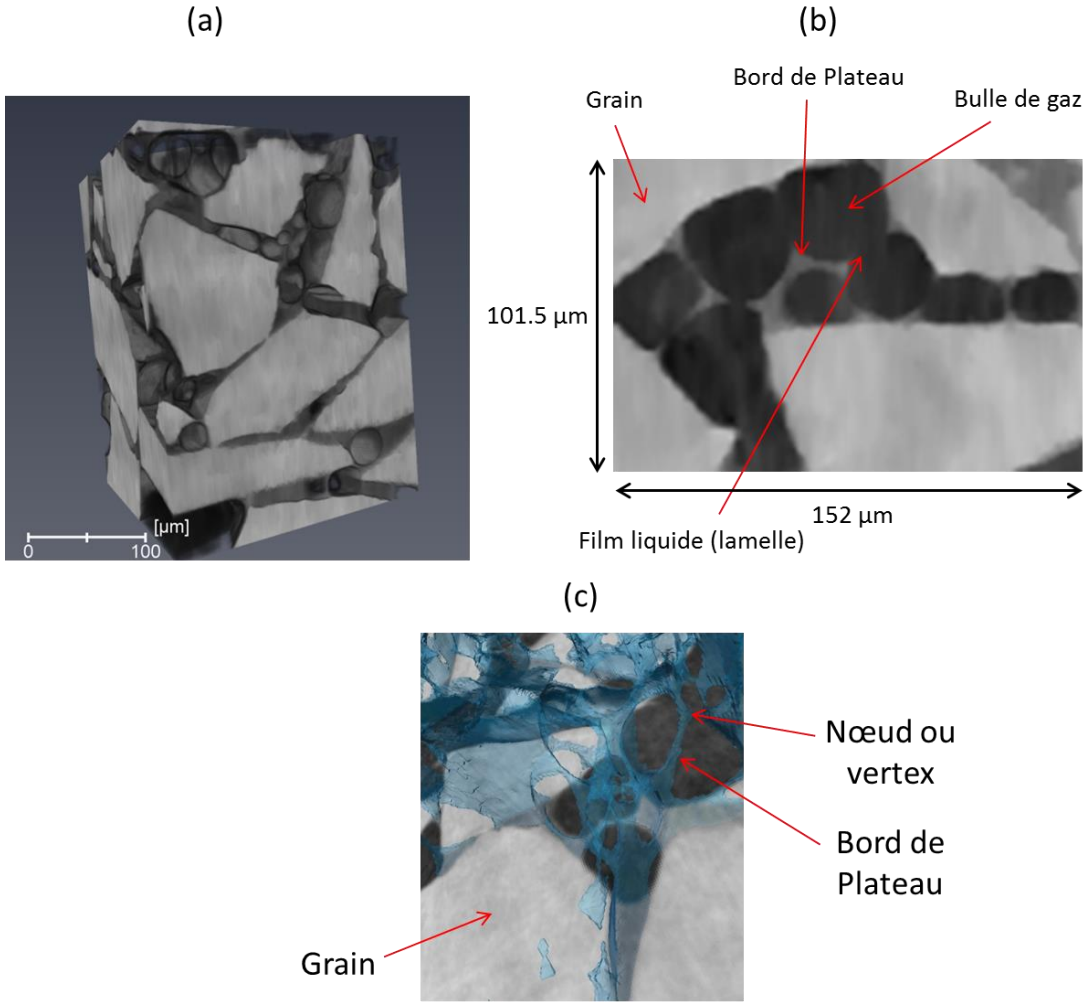


Figure 106 : Structure de la mousse piégée dans le milieu poreux : (a) sous volume extrait de l'image initiale et (b) zoom sur la mousse dans un canal poreux et (c) image de la phase liquide dans la mousse.

B. Traitement des images

Pour aller plus loin dans l'interprétation et la quantification des images il faut leur appliquer un traitement destiné à éliminer les bruits et à séparer les phases. Nous présentons dans ce paragraphe une description des étapes de traitement des images 3D, qui ont été réalisées en collaboration avec une équipe de la direction de mathématique appliquée d'IFP Énergies Nouvelles.

1. Gestion des données

Les données acquises se mesurent en téraoctets[14] et nécessitent une classification des images en fonction des paramètres de l'expérience et des paramètres d'acquisition. Nous avons créé une architecture informatique qui permette de travailler sur les données de manière continue avec un accès permanent depuis des ordinateurs de grandes capacités de mémoires physique et graphique. Pour cela, il a fallu d'abord classifier et ordonner les données dans un serveur dédié avec un espace de stockage suffisamment grand pour contenir toutes les données initiales d'images reconstruites ainsi que les images issues du traitement. Une base de données type « Mango DB » a été choisie pour héberger les données dans un format qui peut évoluer facilement dans le temps, si par exemple les métadonnées sont amenées à être enrichies. Ce type de base de données est orienté documents, répartissables sur un nombre quelconque d'ordinateurs et ne nécessite pas de schéma prédéfini des données.

2. Procédure de traitement des images

La procédure de traitement d'images a nécessité plusieurs mois de travail pour structurer l'archivage de nos images et ensuite pour définir un processus semi-automatisé de calculs à l'aide d'algorithmes de traitement d'images développés en *Python.* Ces algorithmes permettent notamment de séparer les différentes phases (liquide, solide et gaz) présentes dans le volume. La procédure de traitement des images se décompose essentiellement en deux étapes : Le pré-traitement et la segmentation.

a) Prétraitement

Cette étape se décompose en deux sous-étapes :

- La première concerne le dé-bruitage des images. Nous avons observé que les rapports signal sur bruit pour chaque coupe axiale et selon l'axe Z ne sont pas constants. Pour chaque coupe (X, Y) on corrige les inhomogénéités en réalisant un lissage pour réduire l'écart-type entre les valeurs de pixels voisins. Puis on réduit les surcroits d'intensité entre les différents plans (X, Y) en divisant chaque plan

[14] 1To = 1000Go

(X, Y) par l'image de la somme de toutes les coupes projetées selon l'axe des Z (cf. Figure 108.b).

- La deuxième sous-étape concerne le filtrage pour augmenter le rapport signal sur bruit. Pour cela, nous avons utilisé un filtre Bilatéral 3D [144], qui a montré les meilleures performances en nettoyage de l'image et en temps de calcul (cf. Figure 108.c).

b) Segmentation

L'étape de segmentation consiste à travailler sur les images corrigées puis filtrées et à séparer chaque phase sur l'histogramme (cf. Figure 107) : gaz, liquide et solide. On utilise pour cela un algorithme de recherche de la variance maximum interclasse, ou MVI (pour *Maximum Variance Interclass*). Cette méthode permet de trouver à partir de l'histogramme, la meilleure valeur possible décrivant les pics de chacune des trois phases et retourne la moyenne et la variance de chaque classe. Ces derniers, sont utilisés pour labelliser chaque voxel avec un indice qui est associé à une phase unique **:** bulles de gaz (2), liquide (4) et solide (6). Pour finir, on applique la méthode de segmentation par ligne de partage des eaux (ou *Watershed*) qui simule une inondation de phases à partir d'un relief topographique de l'image contenant les voxels labellisés (cf. Figure 108.d) [145]. L'étape de quantification des différentes phases sur l'image 3D est réalisée à partir de l'image segmentée. On obtient 3 indices qui sont associés à chaque phase : solide (6), liquide (4) et gaz (2).

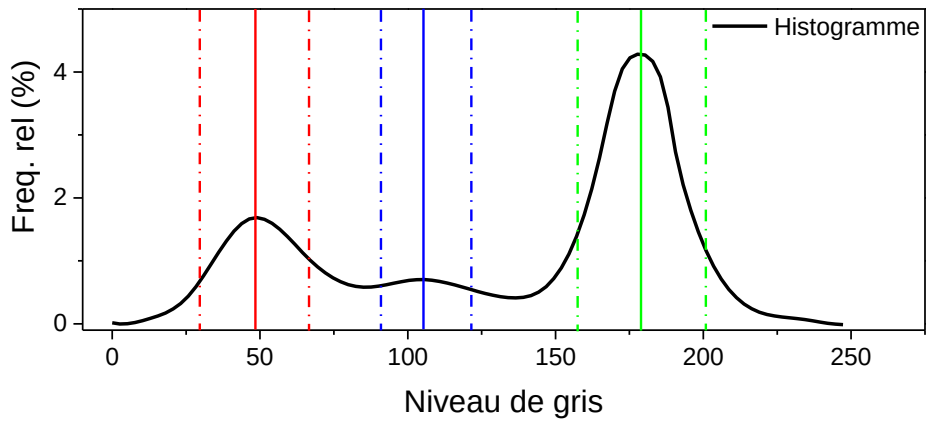


Figure 107 : Méthode de segmentation à l'aide de l'algorithme MVI (Maximum Variance Interclass).

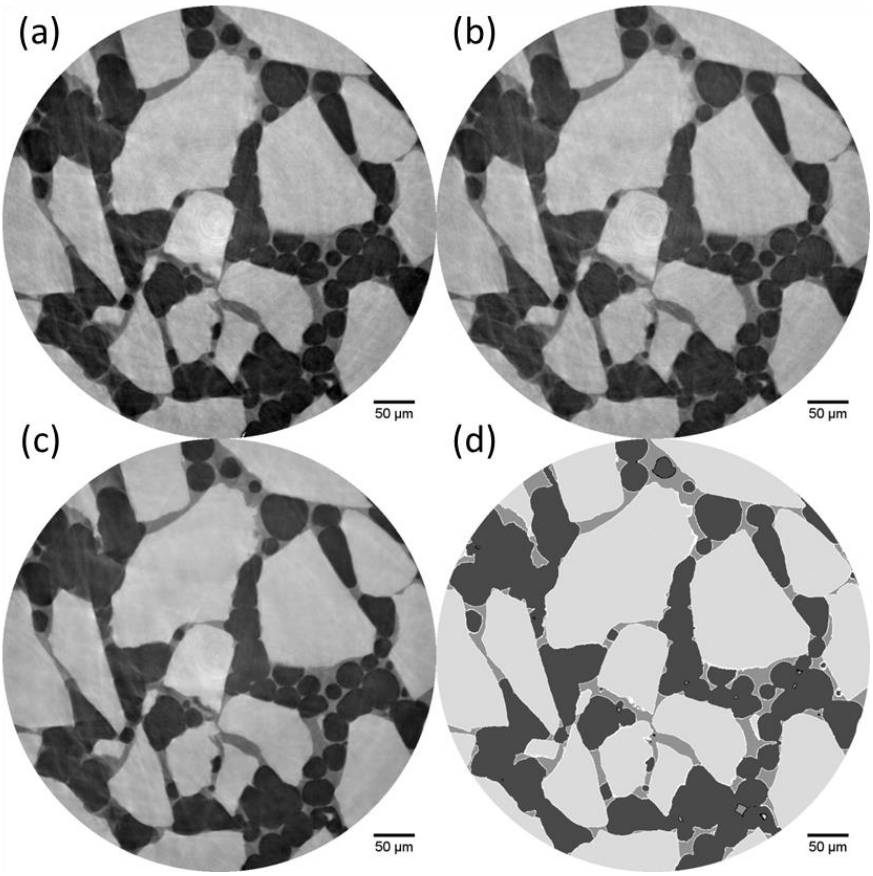


Figure 108 : Coupe axiale d'une image (a) acquise, (b) corrigée, (b) filtrée et (d) segmentée.

3. Calcul de la saturation des phases

Les images que nous avons acquises représentent la dynamique d'écoulement de la mousse à différents instants avec une résolution temporelle de 1 seconde. La co-injection de la solution de tensioactifs et du gaz est réalisée à une vitesse interstitielle totale (liquide + gaz) qui est très grande (1.8 mm/s). Seules les images (ou les parties de l'image) où le temps de résidence des bulles est plus grand que le temps d'acquisition de cette image, nous permettront de déceler de manière nette la phase liquide et les bulles qui composent la mousse. Ainsi, dans un même volume, on peut avoir des parties où les bulles de gaz se distinguent bien (bulles de formes arrondies) et d'autres parties où le gaz semble remplir le pore presque en totalité et que l'on interprète comme l'enveloppe de bulles et du liquide en mouvement rapide dans ce pore (cf. Figure 109.a et b). Dans ce dernier cas, la structure de la mousse n'est pas observable. Par ailleurs, on décrit la somme des saturations de toutes les phases présentes dans le réseau poreux à l'aide de la formule suivante :

$$S_g^t + S_g^f + S_l^t + S_l^f = 1 \quad \text{(IV.2)}$$

Où S_g^t et S_g^f représentent les saturations de gaz piégé (t pour « *trapped* ») et en écoulement (f pour « *flowing* ») respectivement, et S_l^t et S_l^f représentent les saturations du liquide piégé et du liquide en écoulement respectivement. Rappelons que la saturation d'une phase est définie par le volume d'une phase rapporté au volume poreux dans l'image considéré.

Le liquide et le gaz en mouvement se confondent en une seule phase ayant un niveau de gris proche de celui du gaz. Toutefois, le liquide visible sur les images est majoritairement localisé dans (1) les zones piégées, celles dont le temps de résidence est supérieur à la seconde, et dans (2) les espaces interstitiels très fins entre les grains. Ainsi, la localisation de la phase dite « immobile » (car associée aux bulles piégées) peut aider au repérage de la mousse piégée et sa quantification peut donc servir de critère pour évaluer le niveau de piégeage de la mousse. Nous reviendrons sur ce point plus en détails par la suite. En regroupant toutes les phases contenues dans la phase segmentée représentant le gaz, on réécrit l'équation (IV.2) selon :

$$S_\alpha + S_l^t = 1 \quad \text{(IV.3)}$$

Où

$$S_\alpha = S_g^t + S_g^f + S_l^f \quad \text{(IV.4)}$$

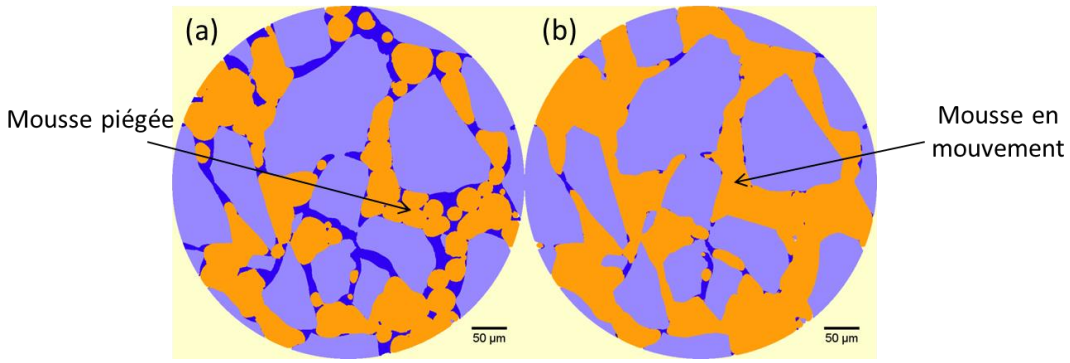


Figure 109 : Coupe axiale de deux tomographies représentant (a) la mousse piégée et (b) la mousse en mouvement, avec séparation des phases gaz ou gaz +eau en mouvement (orange), liquide (bleu) et solide (violet).

4. Dynamique de piégeage des bulles

Le piégeage d'une mousse présente une dynamique particulière où les bulles apparaissent puis disparaissent de manière intermittente. Nous avons analysé cette dynamique sur une échelle de temps de la seconde à l'heure sur quelques séries de tomographies et nous l'illustrons pour deux d'entre elles correspondant aux 2 séquences définies auparavant :

- Une série de 27 tomographies acquises en mode standard (séquence lente) où les tomographies sont séparées d'environ 1min30s dans le temps.
- Quatre séries de 21 tomographies, acquises en continu (2 secondes d'acquisition toutes les 2 secondes pendant 42 secondes). Les 4 séries sont espacées d'environ 12 minutes l'une de l'autre, temps qui correspond au temps de déchargement de la caméra.

a) Évolution de la fraction de liquide «immobile»

(i) Dynamique d'acquisition lente

La Figure 110 présente les variations de la saturation de liquide « immobile » et du gradient de pression total ($\frac{\Delta P}{L}$) aux bornes de la cellule en fonction du temps, lors du régime transitoire de la qualité de mousse f_g= 0.7 pour l'expérience N°1. Tout d'abord, on remarque que la saturation S_l^t varie légèrement autour d'un plateau proche d'une saturation moyenne de 0.12 entre 640 et 680 min. Pendant ce laps de temps, neuf acquisitions tomographiques ont été réalisées. Ensuite on observe une grande oscillation désignée par les lettres (a), (b), (c) et (d). Puis la saturation S_l^t commence à nouveau à varier autour de 0.12. Une reconstruction du volume aux différents instants (a), (b), (c) et (d) est représentée sur la Figure 111. Sur cette dernière, les grains sont représentés avec une couleur gris foncée, les bulles en gris clair et la phase liquide en bleu. La mousse présente des aspects différents d'une image à l'autre. On remarque que, conformément au profil de saturation, la quantité de liquide augmente pour l'image (b) et diminue fortement pour l'image (c). Les autres images (a) et (d) présentent des saturations liquides intermédiaires. Notons aussi que l'aspect géométrique des bulles est différent d'une image à l'autre. On remarque en particulier que les bulles sont plus sphériques, entourées d'une quantité importante de liquide pour l'image (b). En revanche, l'image (c) présente de grandes poches de « gaz » qui remplissent plusieurs pores en même

temps. Les images (a) et (d) sont intermédiaires entre ces 2 cas de figures, la (a) étant plus proche de la (d).

En revanche, il est difficile de relier directement les mesures de saturation de liquide « immobile » et de la pression[15] même si les deux semblent être inversement corrélés sur la Figure 110. En effet, la saturation est mesurée sur un volume qui représente 0.2% du volume poreux total aux bornes desquelles les mesures de pression sont réalisées.

Pour visualiser indépendamment la phase d'eau « immobile », nous avons extrait cette phase par segmentation puis reconstruit le volume correspondant en marquant de couleurs différentes les clusters non connectés, à la résolution observée. L'eau immobile apparait comme un réseau plus ou moins fin et plus ou moins connecté. Les volumes correspondants sont présentés sur la Figure 112. Plus la connectivité est grande, moins il y a de couleurs différentes. Il est intéressant de noter que pour l'acquisition (b), correspondant au piégeage maximum, la couleur est uniforme et le réseau est très épais. Les Figure 112.a et d présentent une connectivité intermédiaire avec deux ou trois couleurs dominantes et une épaisseur de liquide intermédiaire, tandis que la Figure 112.c présente la plus faible connectivité du réseau liquide dans le milieu poreux avec un grand nombre de clusters isolés. Là encore, il faut noter que la résolution est insuffisante pour voir les films mouillants le long des parois de pores. Les clusters identifiés sur la Figure 112.c sont donc probablement reliés par ces films minces de mouillage et qui ne sont pas visibles. Les différentes couleurs marquent donc l'éloignement des clusters, les uns des autres. On note aussi une quantité d'eau moindre pour ce volume (cf. Figure 111.c) en accord avec les valeurs moyennes mesurées sur l'image segmentée. Ainsi, lors de la phase de piégeage, les zones d'eau immobiles sont plus larges et mieux connectées les unes aux autres.

[15] Notons que les capteurs de pression offrent une grande stabilité d'affichage de 1 mbar et une incertitude sur la mesure estimée à 8 mbar

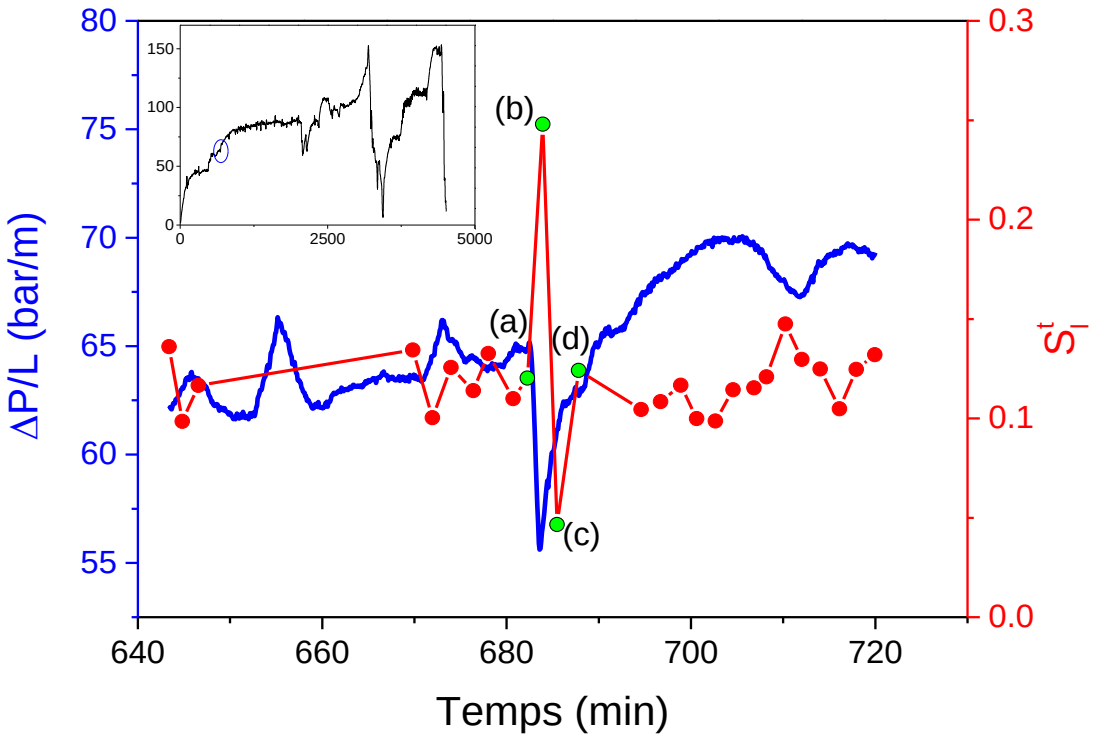


Figure 110 : Variation du gradient de pression total et de la saturation de liquide « immobile » estimée sur un volume de (495 x 495 x 554 µm^3) en fonction du temps. Chaque point rouge correspond à une acquisition tomographique. La courbe du gradient de pression en fonction du temps pour toute l'expérience est montrée dans l'encart en haut à gauche, et le rond permet de situer les acquisitions dessus.

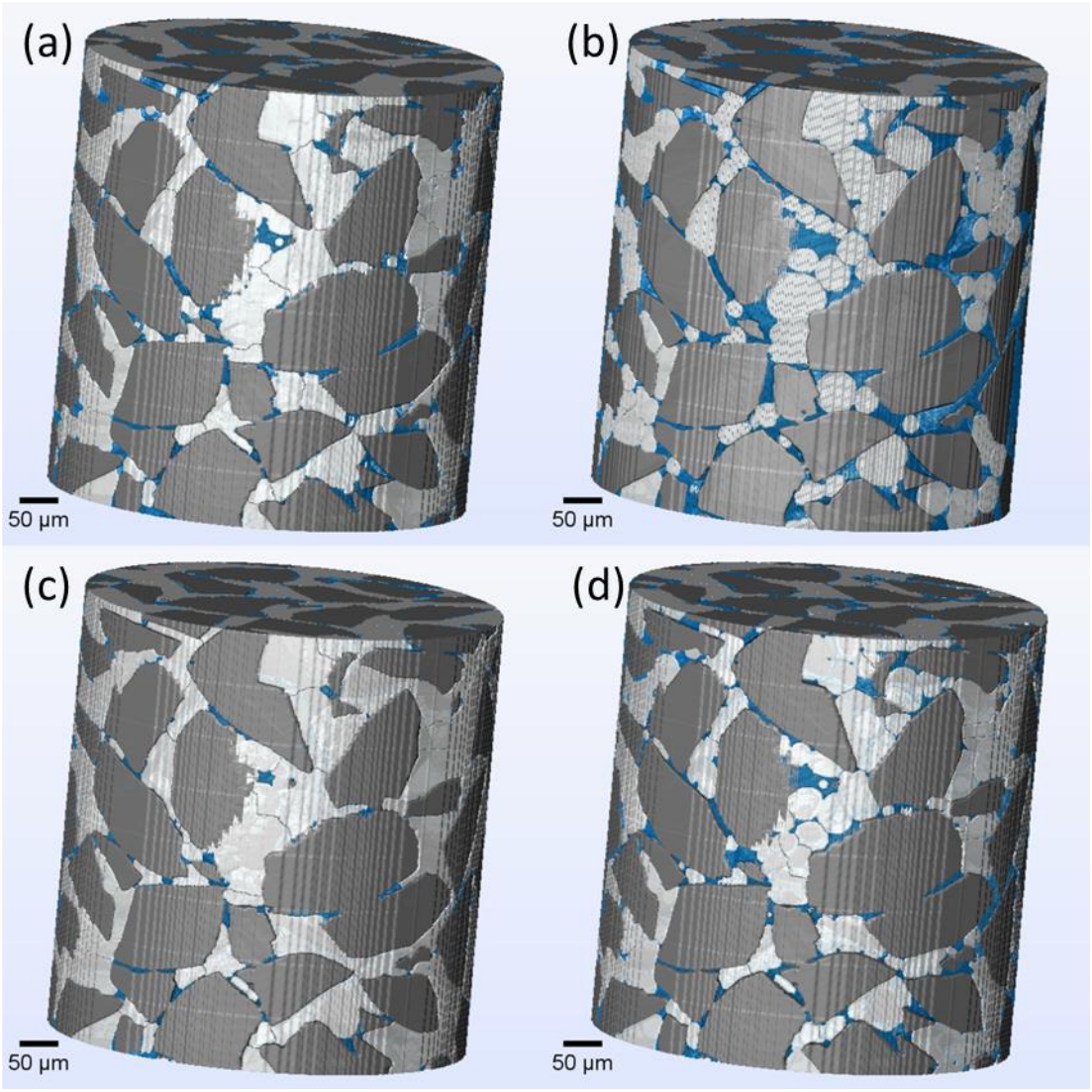


Figure 111 : Phénomène d'intermittence observé pour des acquisitions tomographiques successives : (a) 682 min, (b) 684 min, (c) 685.5 min et (d) 688 min. Les temps correspondent aux temps indiqués sur la Figure 110. Les grains sont représentés en gris foncé, le gaz ou gaz +eau en mouvement en blanc et le liquide en bleu.

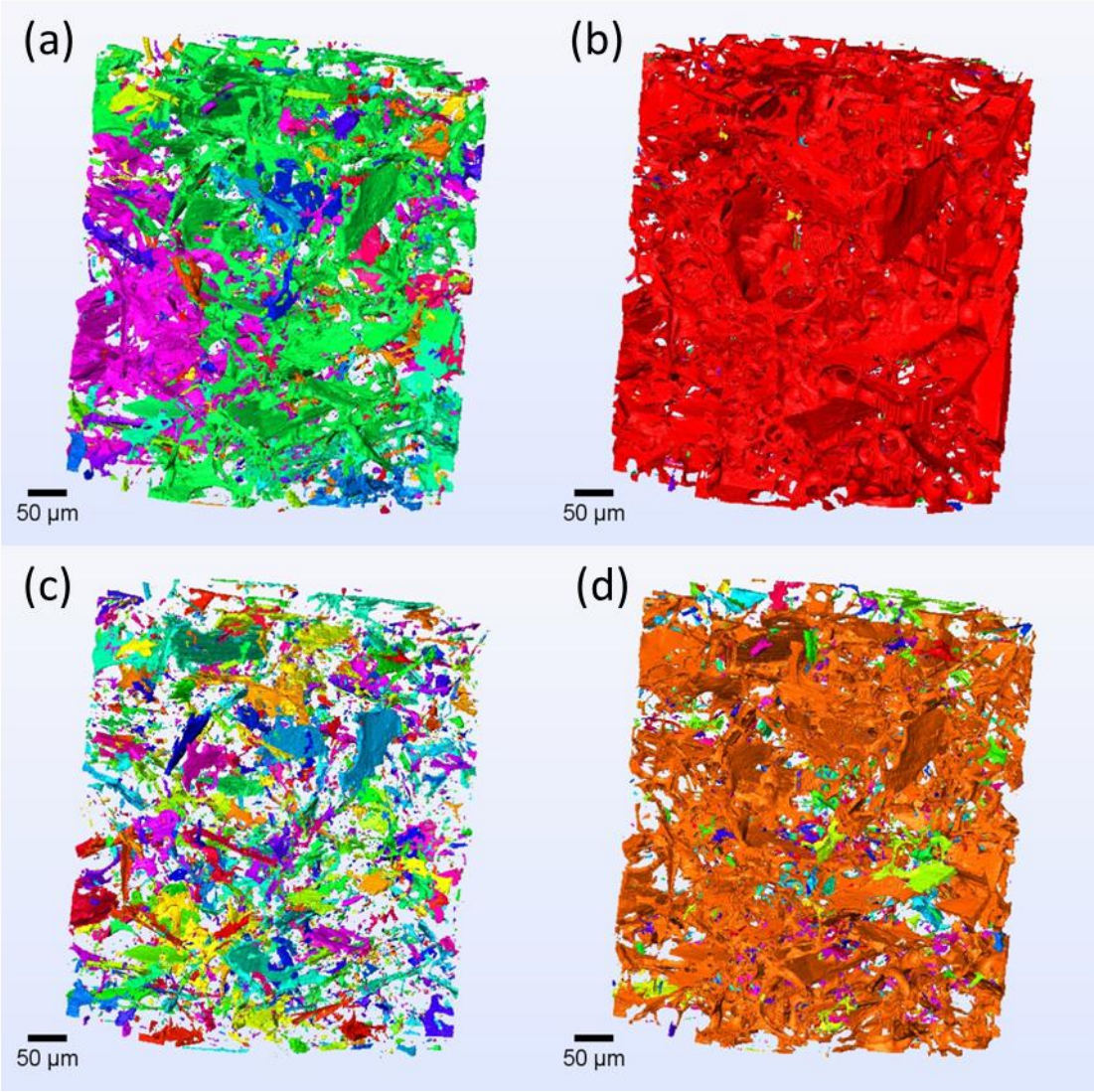


Figure 112 : Extraction de la connectivité du réseau liquide pour les tomographies successives : (a) 682 min, (b) 684 min, (c) 685.5 min et (d) 688 min. Les temps correspondent aux temps indiqués sur la Figure 110. Plus les couleurs sont différentes, moins il y'a de connectivité dans le réseau liquide.

(ii) Dynamique d'acquisition rapide

Afin de vérifier et comprendre les phénomènes de piégeage décrits dans le paragraphe précédent, nous avons refait une expérience à l'ESRF avec le même milieu poreux et pour la même qualité de mousse ($f_g = 0.7$), injectée directement après la saturation du milieu poreux en saumure. La Figure 113 représente la variation du gradient de pression aux bornes de la cellule en fonction du temps pendant l'écoulement de la mousse. Sur cette figure, nous remarquons une grande oscillation de pression à un moment proche de l'état stationnaire (cf. encart en bas à gauche sur la Figure 113). Nous avons réalisé autour de cette oscillation, quatre séries d'acquisitions tomographiques continues, où chaque série est composée de 21

tomographies de 2 secondes toutes les 2 secondes. Les séries sont acquises à un intervalle de temps d'environ 12 min.

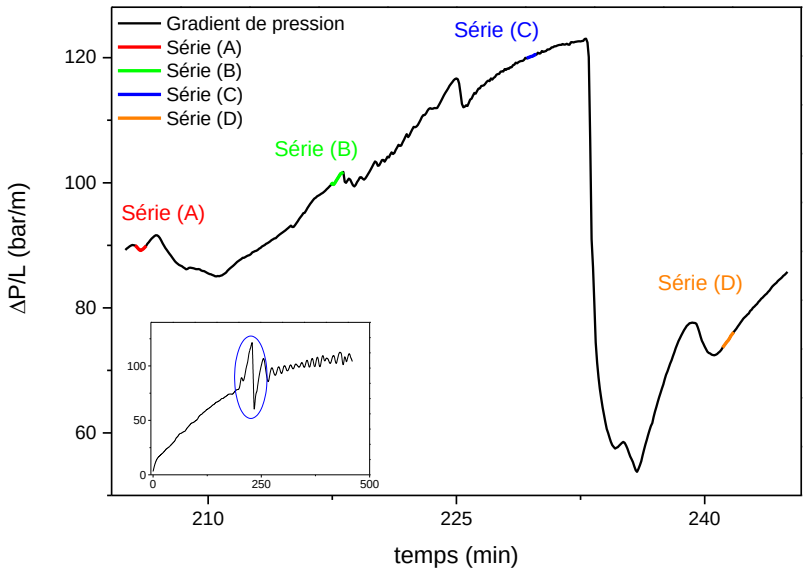


Figure 113 : Gradient de pression total en fonction du temps et repérage des temps d'acquisition des quatre séries (A), (B), (C) et (D) d'acquisitions continues.

Des images qui illustrent une tomographie de chaque série sont données sur la Figure 114. Sur cette figure, on remarque que la quantité de bulles piégées augmente pour la série (A), diminue pour la série (B), augmente encore à nouveau pour la série (C) et enfin diminue pour la dernière série (D). Un calcul de la saturation S_l^t sur toutes les images de chacune de ces quatre séries a été réalisé et le profil de saturation en fonction du temps est représenté sur les Figure 116. (A), (B), (C) et (D). On constate que les mesures de saturation de liquide « immobile » restent stables ou oscillent sur une faible amplitude à l'échelle de la seconde (cf. courbes en rouge sur la Figure 116). On peut remarquer que S_l^t oscille autour de 0.15 pour la série (A), 0.05 pour la série (B), 0.3 pour la série (C) et autour de 0.1 pour la série (D). Ainsi, le maximum de piégeage correspondant à la fraction liquide « immobile » la plus élevée est observé pour la série (C) et le minimum pour la série (B) ce que confirment les images d'extraction de la phase liquide sur la Figure 115.

Notons que cette séquence d'images que nous venons d'analyser et qui étaient particulièrement de bonnes qualités avec un rapport signal sur bruit élevé en comparaison avec d'autres images de la même expérience, est observée pour une grande fluctuation de la

pression. Cette dernière est plus accentuée que les fluctuations de pression observées plus loin dans le temps, à l'état stationnaire (cf. encart en bas à gauche sur la Figure 113). Toutefois, plusieurs auteurs[84] confirment que la dynamique de la mousse dans les milieux poreux engendrent des fluctuations de pression qui rendent compte des effets de fluctuations des vitesses d'écoulement des bulles dans les différents canaux du réseau poreux.

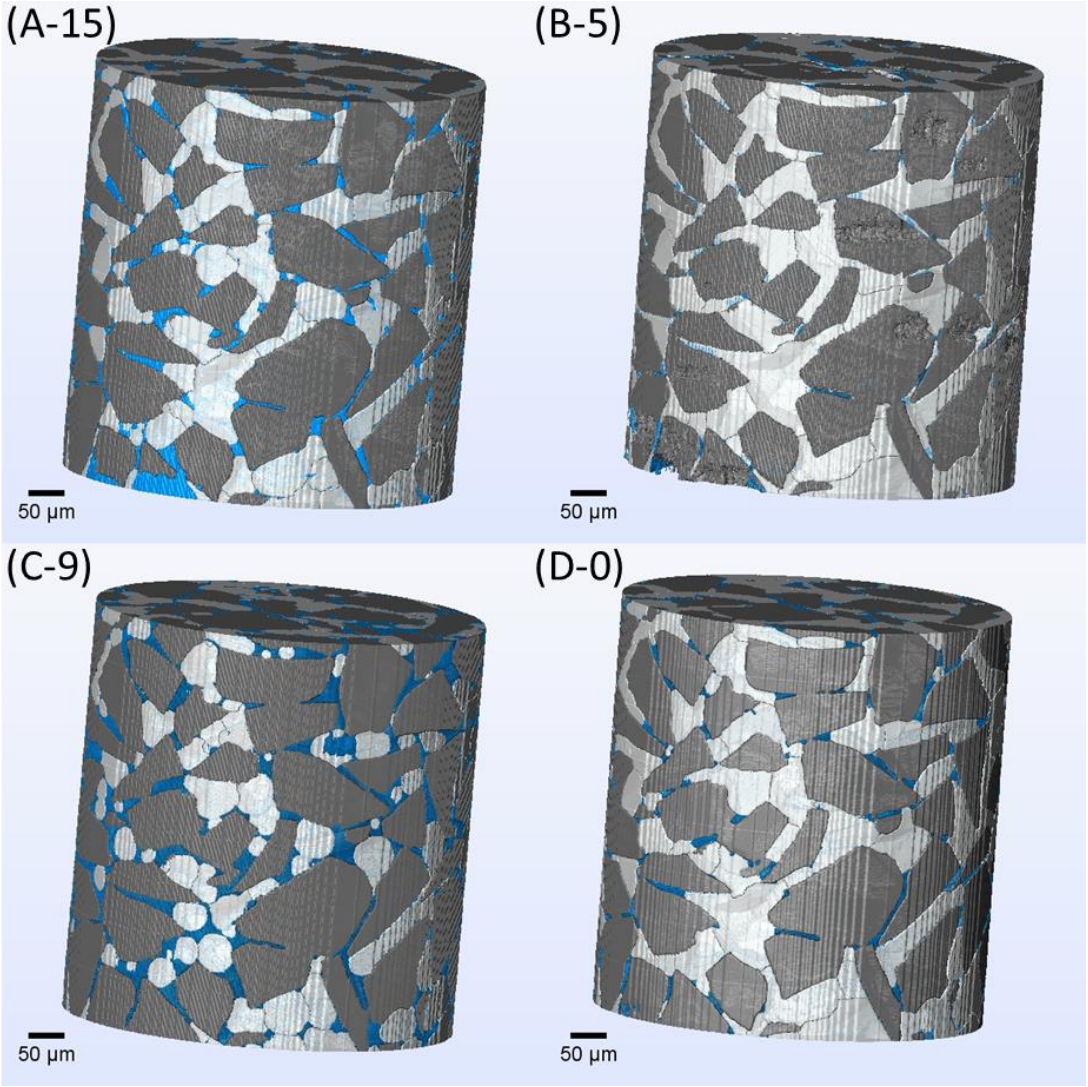


Figure 114 : Dynamique de piégeage observée sur des séries continues (A), (B), (C) et (D) espacées de plusieurs minutes dans le temps. Les numéros correspondent aux acquisitions citées sur la Figure 116. Les grains sont représentés en gris foncé, le gaz ou gaz + eau en mouvement en blanc et le liquide en bleu.

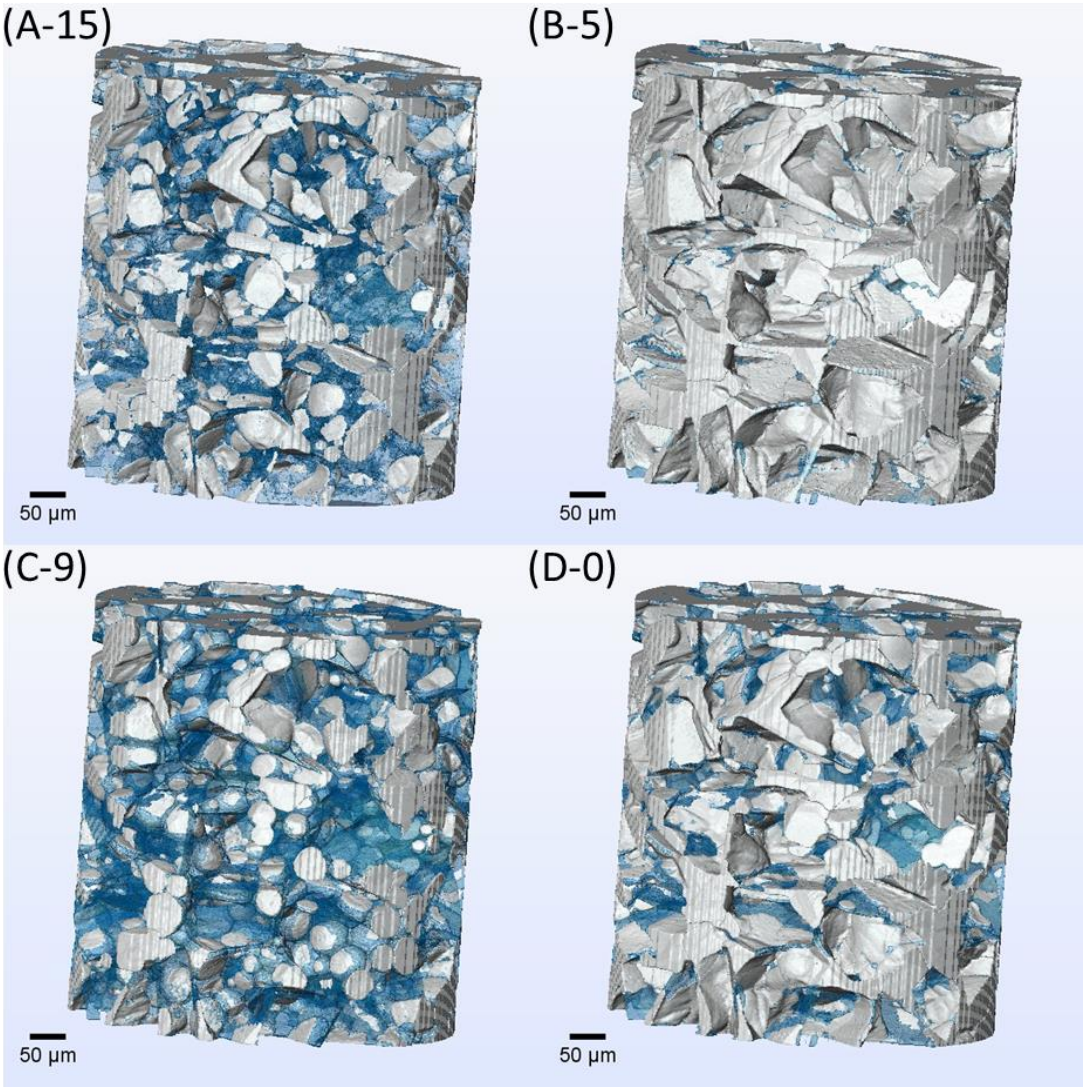


Figure 115 : Extraction du réseau liquide (en bleu) pour les tomographies (A-15), (B-5), (C-9) et (D-0) correspondants aux séries (A), (B), (C) et (D). Sur ces images, les grains ont été enlevés et seulement les bulles de gaz et le liquide sont visualisés.

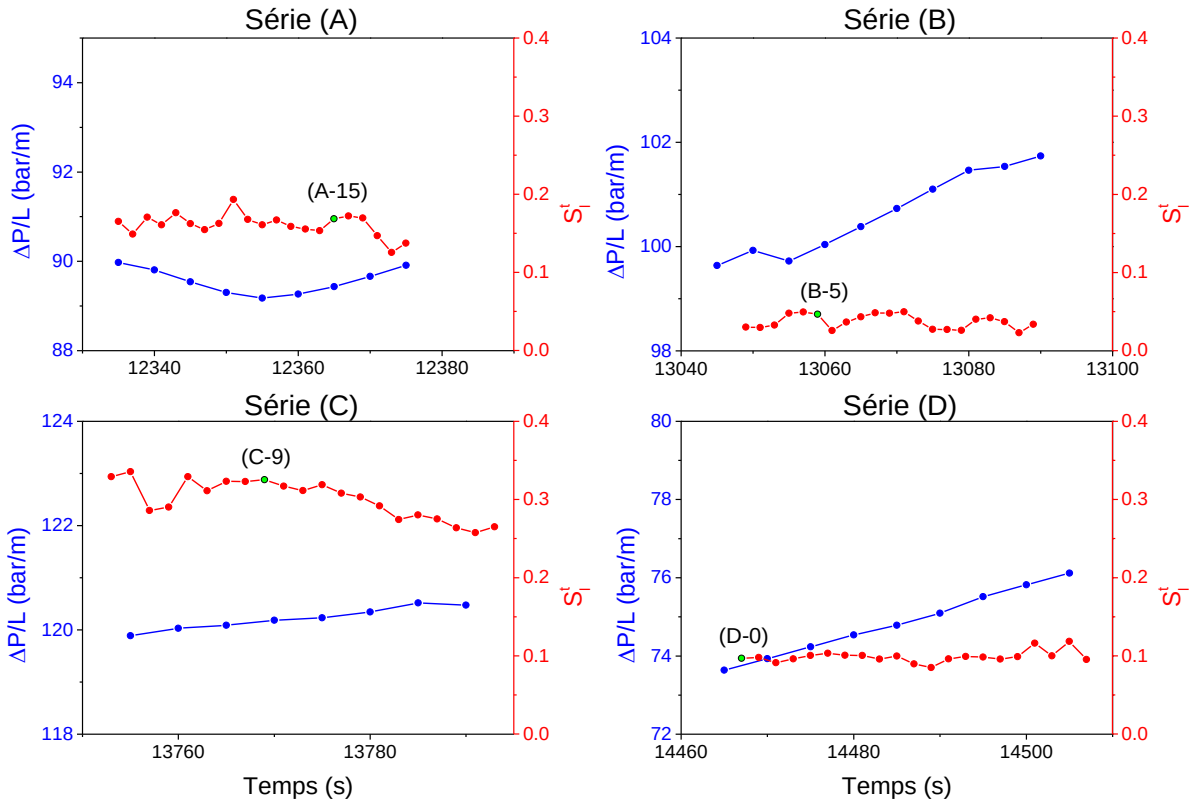


Figure 116 : Variation du gradient de pression total et de la saturation de gaz estimée sur un volume de (495 x 495 x 554 µm3) en fonction du temps pour quatre séries successives de tomographies continues. Chaque tomographie est acquise pendant 2 s. Une illustration pour chaque série est donnée dans la Figure 114.

b) Mécanisme de piégeage de la mousse

Nous reprenons ici la série de 4 tomographies parmi les 30 acquises toutes les minutes (dynamique d'acquisition lente) pour nous intéresser aux mécanismes de piégeage. Le passage direct d'un stade de fort piégeage à un stade de dé-piégeage total nous a encouragés à aller plus loin dans la description des répartitions locales des fluides et de leur évolution dans le temps. Nous avons en particulier remarqué qu'au stade de dé-piégeage total de la mousse dans la zone observée (cf. Figure 111.c), il restait seulement une très faible quantité de liquide interstitiel entre les grains. Nous avons pris cet état comme référence et analysé les différences entre cet état et les 3 autres.

Nous présentons sur les Figure 117 et Figure 118 l'évolution des phases eau (bleu clair) et gaz (bleu marine) pour les tomographies (a), (b), (c) et (d) acquises avec une dynamique d'acquisition lente (cf. III.B.4.a)(i)). Dans ces images le liquide interstitiel entre les grains apparait en jaune car présent dans tous les volumes. On remarque clairement que le liquide interstitiel reste inchangé, piégé dans les très petits interstices inter-gains. Le liquide

interstitiel représente la saturation irréductible en eau qu'on observe dans les phénomènes de drainage du liquide par le gaz, et qu'on appelle *connate water saturation* en anglais ou S_{wc}. C'est à dire la plus petite saturation en eau que l'on peut atteindre par drainage (cf. Annexe B).

Le fort piégeage de la mousse qui intervient en (b) et qui se caractérise par l'apparition d'un grand nombre de bulles à l'arrêt sur la Figure 118.b est corrélé à la forte saturation locale en eau. Les images (a) et (d) sur les Figure 117 et Figure 118 représentent les acquisitions pour lesquelles la saturation liquide est représentative d'un piégeage intermédiaire (cf. courbe en rouge sur la Figure 110) et l'image (c) correspond au piégeage minimum. On remarque par comparaison des images (a), (b), (d) à (c) que le piégeage de la mousse est associé au phénomène d'imbibition. On voit les films d'eau (bleu clair sur les images) croitre depuis le liquide interstitiel inter-grains (en jaune sur les images) et s'étendre le long des parois de pores et dans le squelette liquide de la mousse pour former une enveloppe autour des bulles et les forcer à s'immobiliser voire à se reconfigurer dans le pore. Ainsi les petites constrictions de pores qui sont facilement saturées d'eau par imbibition peuvent jouer le rôle d'obstacle ou de canaux de confinement des bulles à l'intérieur d'un pore sur le court terme. A l'échelle locale, le changement de la quantité liquide « immobile » sur les images de la Figure 117 et Figure 118 laisse penser que le phénomène de piégeage intermittent de la mousse s'apparente à des cycles rapides d'imbibition et de drainage.

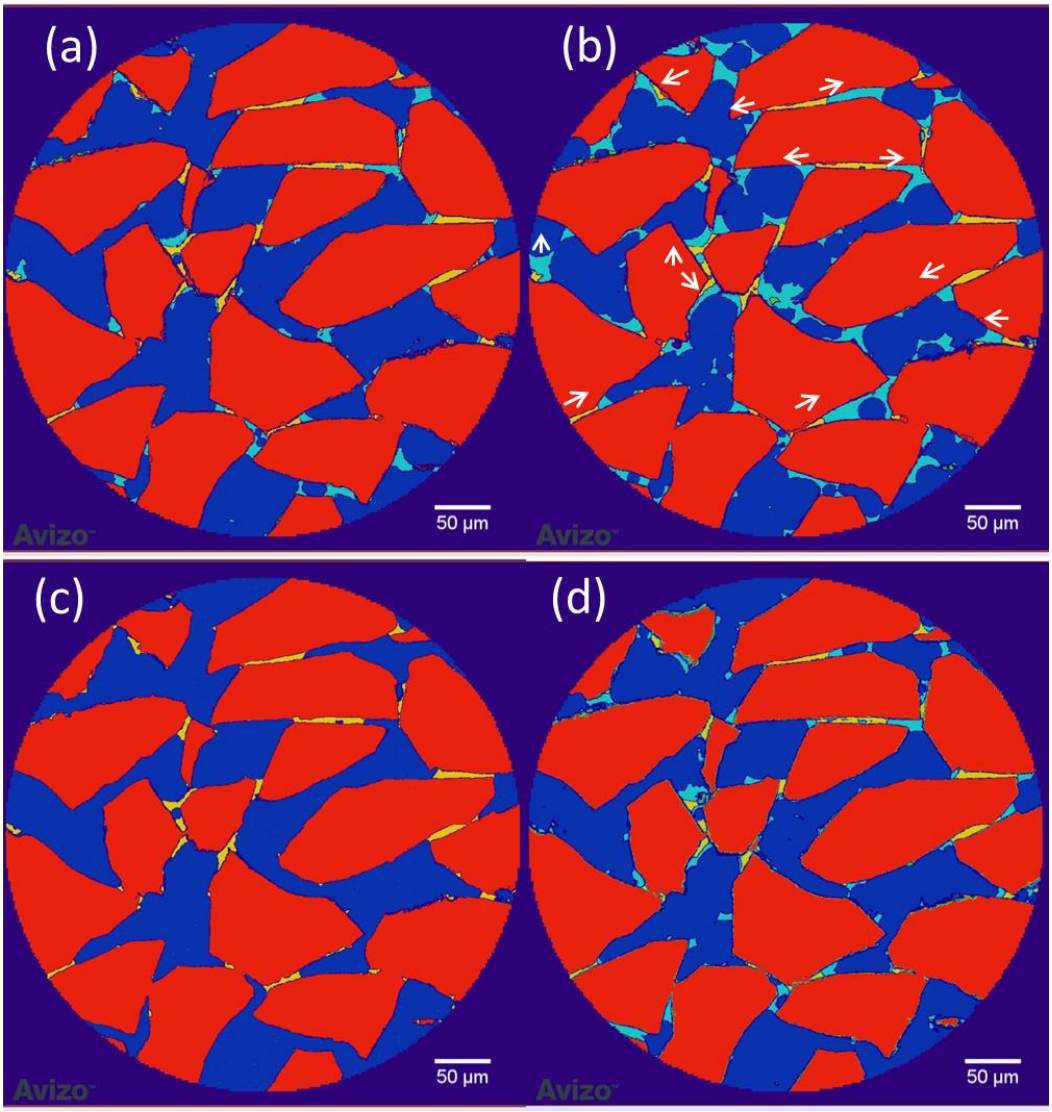


Figure 117 : Evolution de la phase liquide pour les images (a), (b), (c) piégeage minimum et (d) : coupe 300. Le grain est représenté en rouge, le gaz en bleu foncé, le liquide interstitiel en jaune et l'eau imbibée en bleu clair. Les flèches représentent le phénomène d'imbibition depuis le liquide interstitiel.

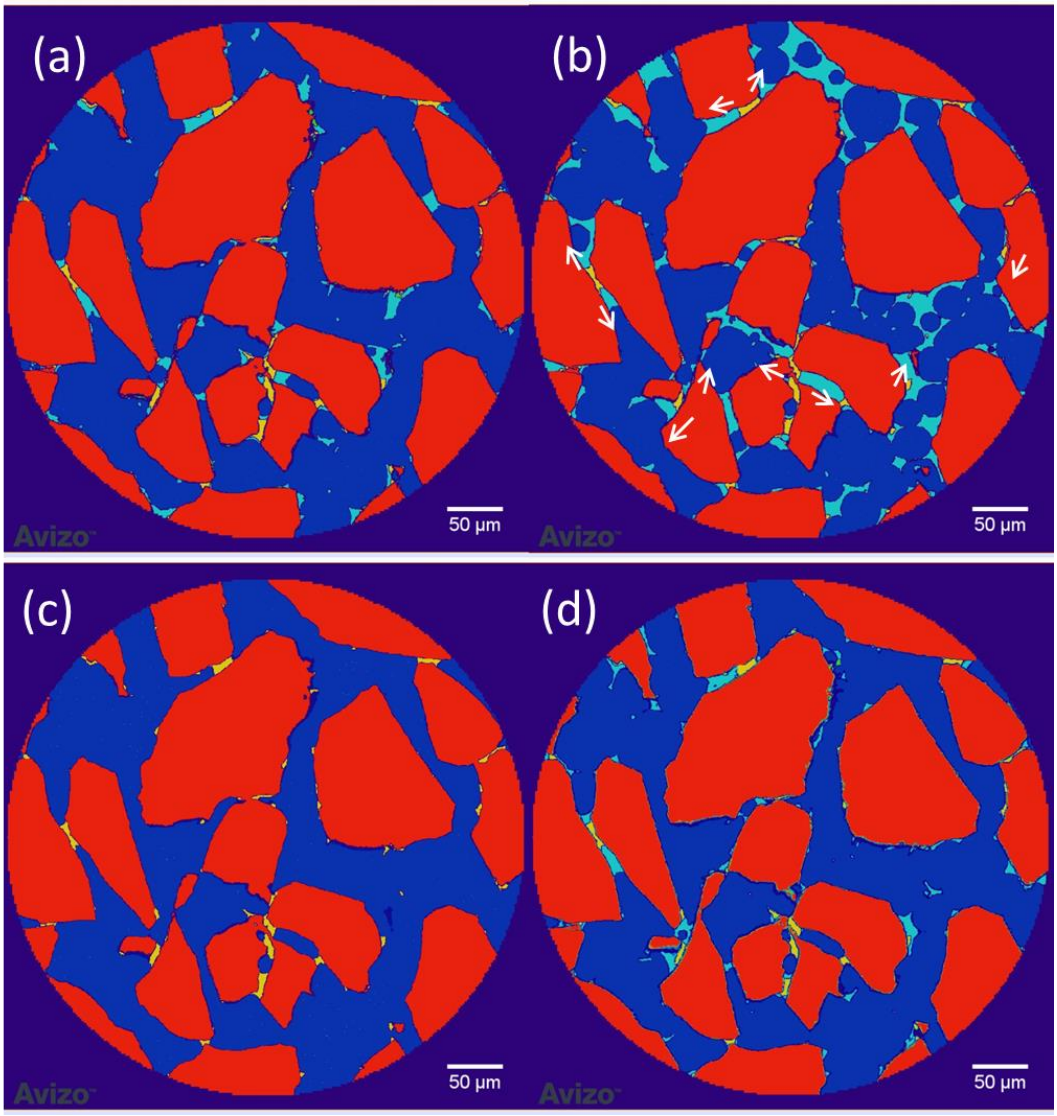


Figure 118 : Evolution de la phase liquide pour les images (a), (b), (c) et (d) : coupe 500. Le grain est représenté en rouge, le gaz en bleu foncé, le liquide interstitiel en jaune et l'eau imbibée en bleu clair. Les flèches représentent le phénomène d'imbibition depuis le liquide interstitiel.

IV. Discussion

La fraction de gaz piégée par les lamelles stationnaires représente une fraction de l'espace poreux non accessible à l'écoulement des fluides. Toutefois, le liquide peut s'écouler à travers la matrice liquide que forme la mousse dans le milieu poreux [51]. Différents auteurs se sont intéressés au caractère intermittent du blocage du gaz dans le milieux poreux par la mousse [84, 146, 147]. Mast [147] a déclaré que le piégeage du gaz par la mousse changeait les chemins d'écoulement du gaz mobile, à cause d'un changement permanent de la répartition des pressions capillaires locales dans le réseau poreux. Le drainage, la rupture et la régénération de la mousse contribuerait spécifiquement à la modification de l'écoulement et à l'orientation de la mousse dans des chemins très différents. Owete et Brigham [146] rapportent aussi que l'écoulement devient temporairement bloqué à cause de la redistribution perpétuelle des phases qui forment la mousse. Si le gradient de pression devient très important pour pouvoir entrainer un train de bulles dans un pore rempli de liquide, la pression capillaire locale qui est définie par la géométrie du seuil de pore ainsi que par les pores voisins déterminera la manière dont vont s'écouler les trains de bulles et leurs distributions dans le réseau poreux. Shirley [148] a observé que les bulles sont piégées lorsque leur taille augmente, et que l'augmentation de la pression permettait de déloger les bulles en place. Hanssen [149] a observé un phénomène intéressant d'oscillation périodique des lamelles dans les seuils de pores. Ces oscillations varient en amplitude et dans le temps. Il a décrit ces oscillations comme une « respiration » des lamelles qui se transmettait à travers de larges zones où les lamelles existent. Cette « respiration » des lamelles pouvaient durer quelques minutes, s'arrêter puis reprendre. Après une heure d'écoulement, la période d'oscillation devenait courte et la période de stagnation devenait plus longue. Géraud et al., [84] ont détaillé une étude sur l'intermittence de l'écoulement de la mousse et ont montré qu'il existe une large distribution des vitesses d'écoulement des bulles de gaz dans leur micro-modèle.

Notons que tous ces travaux ont été réalisés sur des puces micro-fluidiques ou des micro-modèles de milieux poreux. Ces travaux ont permis d'avoir un aperçu sur le comportement du piégeage de la mousse et de son écoulement intermittent. Dans notre cas, les observations en trois dimensions montrent qu'il existe bien un phénomène d'intermittence entre le piégeage résultant de l'augmentation de la saturation liquide locale par imbibition et la mobilisation des bulles de gaz quand la saturation locale en eau diminue de nouveau. Dans nos séquences d'acquisition rapide, nous observons un comportement similaire à celui

rapporté par Hanssen [149] à savoir que les bulles piégées « oscillent », avancent et reculent autour d'une position moyenne pendant plusieurs tomographies consécutives. Les zones où la mousse est piégée se caractérisent par une structure de mousse complète (bords de plateau + nœuds + films liquides) avec des bulles bien distinctes dont la taille est bien en dessous de la taille du pore dans lequel elles se forment (on observe plusieurs bulles par pore).

Le liquide de la mousse est confiné entre les interfaces gaz/liquide. La loi qui impose la courbure moyenne et détermine la forme des bords de Plateau et des nœuds est la loi de Young Plateau qui exprime la différence de pression entre le liquide et le gaz selon :

$$P_g - P_l = \sigma(\frac{1}{r_{PB}} + \frac{1}{r_f}) \quad \text{(IV.5)}$$

Où P_g est la pression du gaz dans la bulle et P_l la pression de la phase liquide. σ la tension de surface entre le liquide et le gaz. r_{PB} et r_f définissent les rayons de courbure du bord de Plateau et du film liquide respectivement. Cette différence de pression entre les deux phases exprime aussi la pression capillaire $P_c(S_l)$ qui dépend de la saturation liquide S_l selon l'équation suivante :

$$P_c(S_l) = P_g - P_l \quad \text{(IV.6)}$$

Pour la mousse piégée observée sur les Figure 117.b et Figure 118.b, la courbure des bords de Plateau est bien plus petite que la courbure des films liquides qui présentent des surfaces plates. En plus, d'après ces images, les bulles piégées présentent un aspect sphérique. Ceci est validé visuellement si l'on regarde les Figure 117.b et Figure 118.b. Le rayon de courbure des bords de Plateau peut être ainsi comparé au premier ordre au rayon de la bulle R_b. Des équations (IV.5) et (IV.6) on peut déduire que :

$$P_c(S_l) \cong \frac{\sigma}{r_b} \quad \text{(IV.7)}$$

Par ailleurs, on sait que le processus d'imbibition d'un milieu poreux induit par le déplacement d'un fluide non mouillant (gaz) par un fluide mouillant (liquide), diminue la pression capillaire avec une augmentation de la saturation liquide. Par conséquent, la taille de bulle doit augmenter d'après l'équation (IV.7) si la saturation liquide locale augmente. On fait l'hypothèse dans ce cas, que la pression capillaire est distribuée de manière isotrope sur tout

le volume considéré. Ainsi, il est probable que sur les images (c) des Figure 117 et Figure 118 sur lesquelles on n'observe pas de bulles piégées, à cause de la mobilité forte de la mousse pendant l'acquisition, les bulles auraient tendance à minimiser leur taille pour pourvoir s'écouler facilement à travers les canaux du réseau poreux. En contrepartie, le piégeage de bulles dans certains pores serait dû à leur plus grande taille et un gradient de pression local insuffisant pour les déloger. C'est-à-dire un gradient de pression inférieur à la pression capillaire développée par les interfaces de la bulle.

En réalité, ce raisonnement est un peu simplificateur car il ne tient pas compte d'une part des effets de dissipation visqueuse qui ont lieu au contact entre le réseau complexe des bords de Plateau et les grains solides, et d'autre part, il ne tient pas compte de toutes les forces capillaires résultantes de tous les films liquides qui entourent la bulle. La moyenne de ces forces capillaires dépend certainement de la taille des bulles et des tailles caractéristiques du réseau de pores et de seuils dans lesquels se trouvent ces bulles. En toute rigueur, il faut comparer la géométrie des canaux poreux aux tailles des bulles qui présentent tous les deux une distribution statistique donnée à un instant donné. Jones et al., [101] trouvent qu'il existe une taille de canal critique pour laquelle la mousse passe d'une structure de mousse en bambou à une structure de mousse poly dispersée. Dans le régime de mousse en bambou, la vitesse des bulles décroît lorsque la taille du canal augmente. En revanche, lorsque la taille du canal devient supérieure à la taille de la bulle, il se produit une transition abrupte dans le régime d'écoulement et dans la structure de la mousse où la vitesse augmente dans les canaux les plus petits. Pour rendre compte de ces observations, un schéma simplifié est donné sur la Figure 119. Dans un milieu poreux réel 3D, comme le nôtre, les deux structures de mousse peuvent coexister, et donc plusieurs tailles de bulles, tailles de canaux et vitesses d'écoulement vont influencer l'hétérogénéité de l'écoulement de la mousse et de son piégeage.

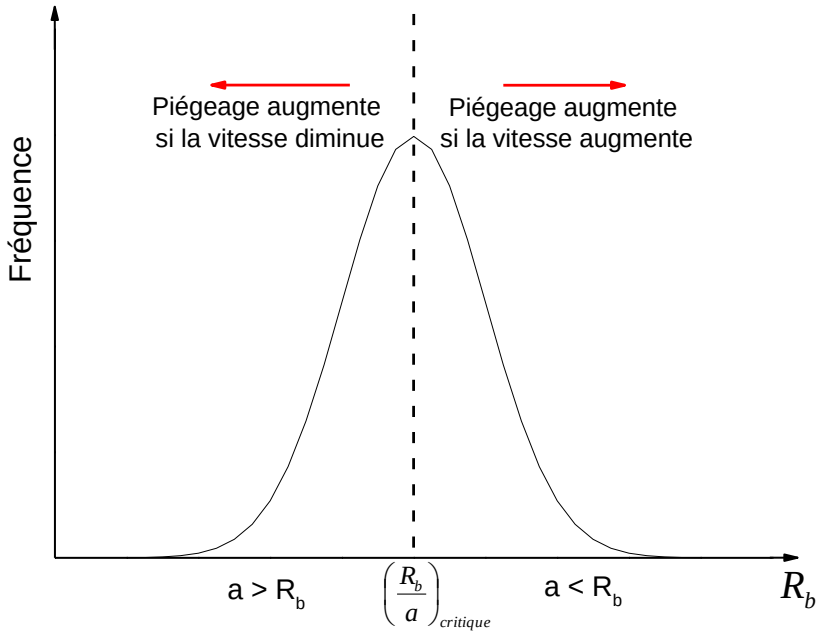


Figure 119 : Schéma expliquant le phénomène de piégeage en fonction du rapport de taille de bulle R_b sur la taille du canal d'écoulement de rayon a, pour une distribution supposée normale. La vitesse désigne ici la vitesse locale des bulles de gaz.

De plus, le piégeage est un phénomène dynamique et est mieux apprécié en sondant la structure et la vitesse des bulles sur tout le réseau poreux à une fréquence d'acquisition plus grande que la dynamique des bulles en soi. Les travaux réalisés par Géraud et al., [84] ont permis de donner une cartographie des vitesses découlements et ont comparé cette dernière à la distribution des sections des pores de leur micro-modèle. Ils trouvent que la plupart des chemins préférentiels de la mousse ont lieu à travers des séries de larges pores interconnectés. Les bulles piégées se trouvent confinées par les petites constrictions de pores qui sont facilement saturées d'eau et jouent le rôle d'obstacles ou de confinement sur le court terme. En plus, ces bulles piégées oscillent autour de leur positions respectives, ce qui rejoint les observations de Hanssen [149] discutées auparavant. Ces fluctuations dans le temps et dans l'espace des chemins préférentiels de la mousse seraient d'après Géraud et al., [84] la résultante des fluctuations des pressions capillaires ressenties par chaque bulle dont les films associés changent constamment leur concavité. Les forces capillaires seraient des forces motrices ou au contraire des forces résistives selon la variation de la concavité des films liquides. Les effets de contact et de mouillabilité entre le liquide et les grains seraient aussi des paramètres importants qui rentrent dans la description des variations des forces capillaires ressenties par la mousse.

Notons aussi que la théorie sur les écoulements de la mousse prédit que la perméabilité relative du gaz décroit lorsque le nombre de pore où le gaz est piégé augmente [150]. Jones et al., [102] affirment que la perméabilité relative du gaz et donc la mobilité du gaz diminuent lorsque la fraction de gaz piégé augmente. Cette dernière augmente aussi lorsque la qualité de la mousse ou la vitesse totale diminuent. On montre ici avec images à l'appui, qu'effectivement le piégeage revient localement à une augmentation de la saturation liquide et donc à une diminution de la perméabilité relative du gaz. En plus, on montre que le piégeage est caractérisé par une synergie entre les bulles de la mousse où le nombre de ces dernières devient grand dans un pore donné. Les limitations en champ de vue ne nous permettent pas en revanche, d'observer ce qui se passe dans d'autres régions du volume poreux aux mêmes instants. Il est probable que des chemins d'écoulement différents existent, ce qui rendrait compte des effets d'intermittence à une plus grande échelle [42] et des chemins préférentiels de la mousse à travers le milieu poreux [84]. Du point de vue du réseau poreux, le piégeage reviendrait aussi à diminuer la porosité effective du milieu à cause de ces chemins préférentiels [84]. Enfin, notons que nous avons décrits des images locales lors du régime transitoire de la mousse. Mais les régimes transitoires et stationnaires sont souvent décrits sur une échelle de temps beaucoup plus grande que l'échelle de nos observations. Ainsi, les effets d'intermittence, de piégeage et de mobilisation de la mousse à l'échelle du pore décrivent des phénomènes dynamiques locaux qui peuvent être observés aussi bien en régime transitoire qu'en régime stationnaire [84].

Ces interprétations et discussions rejoignent fortement les travaux de la littérature et apportent un nouvel éclairage grâce aux images en trois dimensions que nous avons obtenues à l'aide de la micro-tomographie-X rapide, haute résolution, pour la première fois dans le domaine des écoulements de mousses en milieux poreux.

V. Conclusion du quatrième chapitre

La technique de micro-tomographie-X haute résolution réalisée sur la ligne ID19 de l'ESRF a permis de sonder la structure de la mousse en écoulement dans un milieu poreux pour la première fois. Nous avons notamment développé une cellule spécifique qui a permis de réaliser des écoulements à haute pression dans des milieux poreux constitués de grains de silice, tout en réalisant des acquisitions d'images tomographiques continues. La seule limitation physique pour ce genre d'expériences réside dans la capacité de stockage de la mémoire de la caméra et donc dans la restriction du nombre d'images acquises en continu.

L'analyse des images recueillies pendant ces expériences a nécessité le déploiement d'un processus de traitements d'images conséquent basé sur la création d'une architecture informatique solide pour la visualisation, la gestion et le calcul sur de gros volumes de données. L'investigation sur une partie de ces données a notamment permis de :

- Révéler la structure microscopique de la mousse dans un réseau poreux 3D, en visualisant le réseau liquide formé par les bords de Plateau et les vertex ainsi que le prolongement des lamelles liquides. On retrouve dans certaines zones du milieu poreux une structure de mousse proche de la structure de la mousse b*ulk*.
- Donner une description qualitative de la mousse en fonction de la position de la cellule (entrée de la cellule, milieu et sortie) et de la qualité de mousse. Le passage de la qualité de mousse de f_g 0.5 à f_g 0.7 engendre une diminution de la fraction liquide et une diminution de la taille de bulle à iso position dans la cellule. La fraction liquide diminue clairement entre l'entrée et la sortie de la cellule. Cette diminution s'accompagne d'une diminution de la taille des bulles de l'entrée vers la sortie. Le nombre de bulles par pores est supérieur à 1.
- Calculer les saturations de phases gazeuses et liquides et d'extraire une saturation de liquide « immobile » associée aux zones de mousses piégées. Cette saturation peut servir de « marqueur » pour quantifier le piégeage et son évolution dans le temps.
- Différencier les zones de mousse en mouvement et les zones de piégeage de la mousse qui se caractérisent par une augmentation de la saturation liquide « immobile », et un grand nombre de bulles immobiles qui occupent les pores.
- Faire ressortir des effets d'imbibition et de drainage qui seraient à l'origine des effets d'intermittence du piégeage de la mousse, l'imbibition étant responsable du

piégeage local qui dépendrait alors de la topologie du réseau poreux. Les pores dont l'accès se ferait par de plus petites constrictions seraient une zone de piégeage potentielle.

- Dissocier sur les images le liquide interstitiel entre les grains qui constitue la fraction de liquide irréductible et la fraction de liquide variable et intermittente associée à la mousse.

Conclusion générale et perspectives

L'objectif de cette thèse est de caractériser la texture d'une mousse en écoulement dans un milieu poreux réel 3D à différentes échelles caractéristiques, depuis l'échelle de la carotte jusqu'à l'échelle de la bulle de gaz ou de la lamelle de mousse.

La littérature sur les écoulements des mousses en milieux poreux est très dense et riche, essentiellement consacrée à des études pétro-physiques ou des écoulements modèles 2D ou 1D en micro-fluidique. Les études pétro-physiques sont basées sur les mesures de pression et donnent une mesure instantanée et représentative de tout le milieu poreux traversé par la mousse mais ne permettent pas la visualisation à l'échelle du pore ni même à celle de la carotte. Parallèlement, la micro-fluidique 1D et plus récemment 2D apporte des réponses résolues en temps (de l'ordre de la milliseconde) et apportent des informations à l'échelle du micron. L'inconvénient est que ces milieux sont très idéalisées et ne prennent pas en compte un écoulement complexe 3D.

La caractérisation de la structure de la mousse en écoulement dans des milieux poreux réels en trois dimensions a souvent été un élément manquant, pour comprendre les caractéristiques physiques et géométriques qui décrivent son écoulement, notamment en relation avec les caractéristiques géométriques du réseau poreux.

Nous nous sommes placés résolument dans des milieux 3D plus complexes en combinant des techniques qui permettent de couvrir un grand domaine de tailles et de temps : le scanner X, la diffusion des neutrons aux petits angles (SANS) et la micro-tomographie X rapide et haute résolution sous synchrotron.

Ces trois techniques se sont avérées complémentaires et ont permis d'apporter une description fine du déplacement et de la texture de la mousse dans des milieux poreux tridimensionnels. Ce travail de thèse se démarque par le couplage entre des montages expérimentaux qui permettent d'effectuer des mesures pétro-physiques classiques, et des méthodes de caractérisation multi-échelle appropriées pour décrire la texture de la mousse en écoulement dans un milieu poreux.

C'est d'abord à travers la réalisation d'un montage expérimental type « coreflood » et l'utilisation d'une cellule Hassler avec un grès homogène que la caractérisation macroscopique des écoulements de la mousse a été réalisée. La technique de tomographie X a été très vite identifiée comme une technique de choix pour décrire l'échelle de la carotte. Elle

fournit des cartographies de saturations 3D du gaz en quelques secondes avec une taille de voxel de 117 µm x 117 µm x 1.25 mm. Le couplage entre les acquisitions sous scanner à tomographie X et les mesures de données de pression à débits imposés, a permis de réaliser un suivi dynamique des différentes phases, transitoire et stationnaire, de génération et d'écoulement de la mousse. En comparaison avec un écoulement diphasique eau-gaz dans les mêmes conditions, on valide la capacité de la mousse à créer les conditions de mobilité favorables pour déplacer la phase liquide qui remplit initialement le milieu poreux. Le déplacement transitoire de la mousse se caractérise notamment par un premier front net de « mousse faible » suivi d'un deuxième front caractérisant la formation d'une « mousse forte » et enfin l'établissement d'un état stationnaire. Entre les états transitoire et stationnaire, on observe une augmentation considérable de la saturation de gaz et de la pression.

Nous avons ensuite donné une description rhéologique macroscopique de la mousse à l'échelle de la carotte de roche, et étudié les effets de vitesse et de qualité de mousse. D'une part, on montre que la « mousse forte » se forme au-delà d'une certaine vitesse critique (ou gradient de pression minimum). D'autre part, l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la qualité de mousse montre l'existence d'une transition entre un régime basse qualité et un régime haute qualité, caractérisée par des viscosités apparentes constantes puis décroissantes respectivement. En régime basse qualité, la mousse adopte un comportement rhéofluidifiant qui a été modélisé par une loi de puissance où la viscosité apparente varie comme l'inverse de la vitesse interstitielle du gaz. Par ailleurs, nous avons pu estimer une pression capillaire critique qui caractérise le passage d'un régime basse qualité à un régime haute qualité grâce à la caractérisation de notre système fluide-roche. Néanmoins, l'interprétation de cette mesure reste fortement influencée par les inhomogénéités spatiales de l'écoulement des mousses, ainsi que par les effets d'entrée observés à l'échelle de la carotte. Enfin, les variations de la mobilité du gaz à l'échelle macroscopique montrent une augmentation de cette mobilité pour une « mousse faible » en comparaison avec une « mousse forte » et lors du passage du régime basse qualité au régime de coalescence.

L'étude sous scanner X a permis de soulever des questions sur la structure de la mousse à l'échelle du réseau poreux et notamment sur l'évolution de la texture de la mousse en écoulement. La technique de diffusion de neutrons aux petits angles a ensuite été utilisée conjointement avec les mesures de pression aux bornes de la cellule d'écoulement. Pour cela, une cellule spécifique aux rayonnements neutrons a été développée et une méthodologie basée

sur le *contrast matching* visant à annuler le contraste entre la phase liquide et la phase solide a d'abord été validée. Ceci a permis d'étudier les écoulements de mousses dans des milieux poreux modèles de différentes granulométries formés de grains de silice, en fonction de la qualité de mousse et de la distance de propagation. Les résultats de cette étude ont permis de décrire la structure de la mousse sur trois ordres de grandeurs, allant de l'échelle des bulles jusqu'à l'échelle des micelles. Le signal décrit par une décroissance en q^{-4} a permis d'extraire la surface spécifique des bulles et le rayon de Porod associé. Ce dernier a permis d'estimer une taille moyenne des bulles qui diminue en régime basse qualité et augmente en régime haute qualité. En régime basse qualité, une très bonne corrélation est observée entre la surface spécifique de la mousse en écoulement et le gradient de pression aux bornes de la cellule. En régime haute qualité, la forte diminution du gradient de pression associée à une faible diminution de la surface spécifique montre clairement que la structure globale de la mousse est préservée et que la rupture de quelques lamelles induit des chemins préférentiels qui favorisent l'augmentation de la mobilité du gaz. Par ailleurs, l'étude en fonction de la distance depuis le point d'injection révèle une diminution progressive de la taille de bulle moyenne. Cela met en évidence une fragmentation des bulles lors de leur propagation. L'efficacité de cette fragmentation est plus grande pour des mousses sèches (grande qualité de mousse) que pour des mousses humides (faible qualité de mousse) et est plus élevée pour une taille de bulle grande à l'entrée du milieu poreux. Enfin, l'extraction des caractéristiques géométriques de deux milieux poreux différents a permis de montrer que le rayon de Porod des bulles se situe entre le rayon hydraulique équivalent des seuils de pore et le rayon équivalent des pores, quel que soit la qualité de mousse et la position dans le milieu poreux.

Enfin, une approche par modélisation des spectres SANS, sous l'hypothèse d'additivité des contributions d'intensité, a permis d'extraire des informations quantitatives sur la variation des densités volumiques de bulles, de lamelles et de micelles. Les évolutions de ces paramètres montrent qu'il existe en moyenne plus d'une bulle par pore et une bulle par seuil et que les densités volumiques des bulles et des lamelles augmentent en fonction de la qualité de mousse en régime basse qualité puis diminuent en régime haute qualité. Une tendance d'augmentation et de diminution du gradient de pression est observée par ailleurs sur la mesure macroscopique du gradient de pression au niveau de la cellule d'écoulement. Les mesures SANS ont révélé une plus forte chute du nombre de lamelles en comparaison avec le nombre de bulles lors de la coalescence de la mousse. Par ailleurs, la densité de bulles est d'autant plus grande que l'on passe de l'entrée à la sortie du milieu poreux. Ceci met en

évidence le rôle prépondérant du milieu poreux et des effets de fragmentation des bulles sur la texture finale de la mousse.

Pour compléter la description des écoulements de mousse et sonder sa structure à l'échelle du pore, une étude a été réalisée en micro-tomographie X rapide haute résolution sur Synchrotron. Une cellule spécifique pour ces expériences a été développée. Les images confirment les tendances observées en SANS à savoir que l'augmentation de la qualité de mousse (en régime basse qualité) engendre une diminution de la taille de bulle à iso-position dans la cellule, que la taille de bulle diminue clairement de l'entrée vers la sortie du milieu poreux et qu'il existe plusieurs bulles par pore. Ces observations contrastent avec les représentations schématiques trouvées dans la littérature [15].

Le traitement et l'analyse de ces images ont pu déceler des zones de mouvement de la mousse et d'autres de piégeage de la mousse. Ces dernières se caractérisent par une augmentation de la saturation liquide « immobile », et un grand nombre de bulles immobiles qui remplissent les pores. La quantification de la saturation de liquide « immobile » associée à la structure de la mousse piégée a permis de suivre l'évolution du piégeage dans le temps.

Le phénomène de piégeage intermittent de la mousse s'apparente à première vue à des cycles rapides d'imbibition et de drainage avec la présence d'une quantité de liquide interstitielle constante dans les constrictions les plus fines du réseau poreux. Le processus d'imbibition rend compte de l'augmentation de la saturation en phase liquide « immobile ». Ce qui permet de piéger les bulles sous forme de cluster dans les pores. A l'inverse, le drainage montre la mobilisation rapide de la mousse et une forte diminution de la saturation liquide « immobile ».

Cette étude constitue une étape importante de la caractérisation multi-échelle de l'écoulement des mousses en milieux poreux 3D. Nous avons pu mettre en relief les études d'écoulement effectuées dans des milieux 1D et 2D et apporter des éléments de réponse à certaines hypothèses admises. Nous avons notamment montré un changement de taille de bulle en régime basse qualité en fonction de la qualité de mousse, la conservation de la structure globale de la mousse en régime de coalescence avec création de chemins préférentiels dans le réseau de lamelles et les effets prépondérants de la géométrie du milieu poreux sur la texture de la mousse pendant son écoulement. A l'échelle du pore, on montre

que le piégeage intermittent de la mousse s'apparente à une compétition entre des effets d'imbibition et de drainage permanents.

- **Perspectives**

Un des apports de cette thèse est un développement méthodologique qui peut être appliqué à d'autres mousses et à d'autres réseaux poreux. Les données acquises peuvent servir de base pour l'ajustement et/ou le développement de nouveaux modèles physiques qui serviront à optimiser les procédés EOR et la mise à l'échelle pour un réservoir pétrolier. Néanmoins on peut envisager des améliorations :

De type méthodologique :

- L'utilisation de la micro-tomographie X a permis de générer un volume de données très grands dont certaines ne sont pas exploitables. Certaines séquences sont incomplètes car elles ne sont pas assez longues. L'acquisition de nouvelles données nécessiterait une stratégie de déchargement de la caméra optimisée. Un projet dans ce sens est en cours d'aboutissement au Synchrotron Suisse (SLS) au Paul Scherrer Institut.
- Une architecture informatique de traitement d'un grand volume de données d'images a été initiée avec le département de mathématiques appliquées. Afin de pouvoir optimiser le flux de données, il conviendrait de définir un schéma de travail sur le long terme qui permet d'intégrer toutes les étapes de gestion en amont : depuis l'organisation des missions expérimentales sur grands instruments puis l'acquisition des données jusqu'à la visualisation et l'extraction d'informations quantitatives sur les phénomènes observés.
- Un traitement d'images plus poussé pourrait être réalisé afin de ressortir la dynamique locale de la mousse en fonction de la géométrie des pores et des seuils. On pourrait éventuellement développer des calculs en éléments finis pour extraire des informations sur le changement topologique de la mousse confinée en 3D.
- Pour le SANS, une perspective intéressante serait de pouvoir acquérir un grand domaine de q en une seule configuration ce qui permet de gagner en temps d'acquisitions. Une autre perspective peut être d'utiliser des mélanges de SDS hydrogéné et deutéré pour masquer le signal des micelles ce qui nous donnerait une précision encore plus grande sur le signal des lamelles.

Du point de vue des applications :

- Elles peuvent avoir pour objectif l'approfondissement de nos connaissances sur les écoulements de mousses dans des milieux très hétérogènes. Ce qui permettra d'ouvrir la voie vers une analyse fine des effets de perméabilités et de fractures sur les écoulements des mousses. On peut envisager d'adapter notre méthodologie à des systèmes mimant les matériaux naturels fissurés en introduisant un contraste de perméabilité. Ou utiliser un mélange de grains de différentes granulométries superposées pour étudier le passage entre zones de différentes perméabilités.
- Il semble intéressant d'appliquer les méthodes de caractérisation utilisée dans cette thèse pour étudier l'effet des hétérogénéités du milieu poreux sur l'intermittence du piégeage de la mousse.
- L'étude de l'influence du type de tensioactifs sur la génération et la coalescence des mousses, dans des milieux poreux et des conditions d'injections différentes. En effet, dans cette thèse nous n'avons pas abordé les effets d'adsorption de tensioactifs sur la phase solide. Dans la pratique, des quantités de tensioactifs limitées sont injectées au sein d'un réservoir et cela pourrait influencer la performance de la mousse et sa propagation.
- Dans cette étude nous nous sommes focalisés sur les écoulements de mousses en l'absence de l'huile. Il serait intéressant de visualiser les effets de l'huile sur l'écoulement de la mousse et son efficacité de balayage.

Annexes

Annexe A : Loi de Darcy

La loi de Darcy établie en 1856, en référence au physicien Henry Darcy, exprime le débit d'un fluide incompressible qui s'écoule en régime stationnaire au travers d'un milieu poreux. Il s'agit du cas particulier de l'écoulement laminaire, stationnaire et incompressible d'un fluide Newtonien, représenté par l'équation de Navier-Stockes.

Écoulement monophasique

Un écoulement monophasique désigne l'écoulement d'une phase homogène, pour lequel l'équation de Darcy s'écrit :

$$u = -\frac{K}{\mu}(\nabla P + \rho g h) \tag{A.1}$$

Où u est la vitesse superficielle (appelée aussi vitesse de Darcy des fois), K est la perméabilité de la roche, μ la viscosité du fluide, ∇P le gradient de pression exercé, ρ la densité du fluide, g l'accélération de la gravité et h la hauteur du fluide à partir d'une certaine hauteur de référence.

Si les effets de la gravité sont négligeables, la loi de Darcy devient tout simplement :

$$u = -\frac{K}{\mu}(\nabla P) \tag{A.2}$$

Écoulement diphasique

Le cas d'un écoulement multiphasique est une extension de la loi de Darcy, exprimée pour chaque phase i comme suit :

$$u_i = -\frac{k_i}{\mu_i}(\nabla P_i + \rho_i g h) \tag{A.3}$$

Où u_i est la vitesse superficielle de la phase i, k_i sa perméabilité effective, $\mu_i$la viscosité du fluide i, P_i la pression du fluide i et ρ_i sa densité. La mobilité de la phase i, qui a été introduite au début de ce manuscrit comme un paramètre déterminant dans l'efficacité du

déplacement d'un fluide par un autre en milieu poreux est définie par le ratio $\frac{k_i}{\mu_i}$. L'équation (A.3) montre que la mobilité de la phase i est une constante de proportionnalité qui relie le flux de la phase i à la force motrice de l'écoulement qui dans notre cas est le gradient de pression de la phase i. La forme de l'équation (A.3) est ainsi complétement analogue à la loi de Fick pour la diffusion, ou la loi de Fourier pour le transfert de chaleur, avec la mobilité qui agit en tant que conductance pour l'écoulement des fluides dans le cas de la loi de Darcy.

Annexe B : Perméabilités effectives et relatives

Les forces capillaires et le caractère de mouillabilité du milieu poreux jouent un rôle déterminant dans le comportement des écoulements multiphasiques. Ces deux paramètres sont en effet contenus dans les perméabilités effectives k_i de chaque phase i. La perméabilité effective est définie comme le produit de la perméabilité absolue K du milieu poreux par la perméabilité relative k_{ri} de chaque phase i :

$$k_i = K k_{ri} \tag{A.4}$$

La perméabilité absolue est une fonction de la géométrie du milieu poreux, et $\sqrt{K}$ représente la taille caractéristique des canaux d'écoulement du milieu poreux. Les perméabilités relatives sont généralement considérées comme fonctions qui dépendent uniquement de la mouillabilité du milieu et de la saturation de la phase i, S_i qui est la fraction volumique de la phase i dans l'espace poreux. Les courbes typiques d'un écoulement diphasique sont montrées sur la Figure 120. Ces courbes montrent que la perméabilité relative de chaque phase i, i.e. sa conductivité, décroît lorsque le volume de pore occupé par cette phase diminue. Ceci est consistant avec l'idée que la perméabilité est essentiellement reliée à la taille caractéristique des canaux d'écoulement dans le milieu poreux. Une faible saturation pour une des phases, correspond à un faible nombre de canaux contenant cette phase, ce qui veut dire une faible conductivité pour cette phase en comparaison avec l'ensemble des canaux disponibles du milieu poreux.

Les saturations $S_{m,irr}$ et $S_{n,irr}$ sur la figure correspondent à une autre caractéristique importante des écoulements multiphasiques en milieux poreux. Ils représentent respectivement les saturations critiques de la phase mouillante (k_{rm}) et la phase non mouillante (k_{rn}), en dessous desquelles les phases respectives ne s'écoulent pas. Dans un écoulement gaz-eau par exemple, $S_{m,irr}$ vaut S_{wc} qui désigne en anglais *connate water saturation* et $S_{n,irr}$ vaut S_{gc} qui désigne en anglais le *critical gas saturation*. Ce dernier décrit la saturation de gaz qui reste en place après un déplacement du gaz par de l'eau.

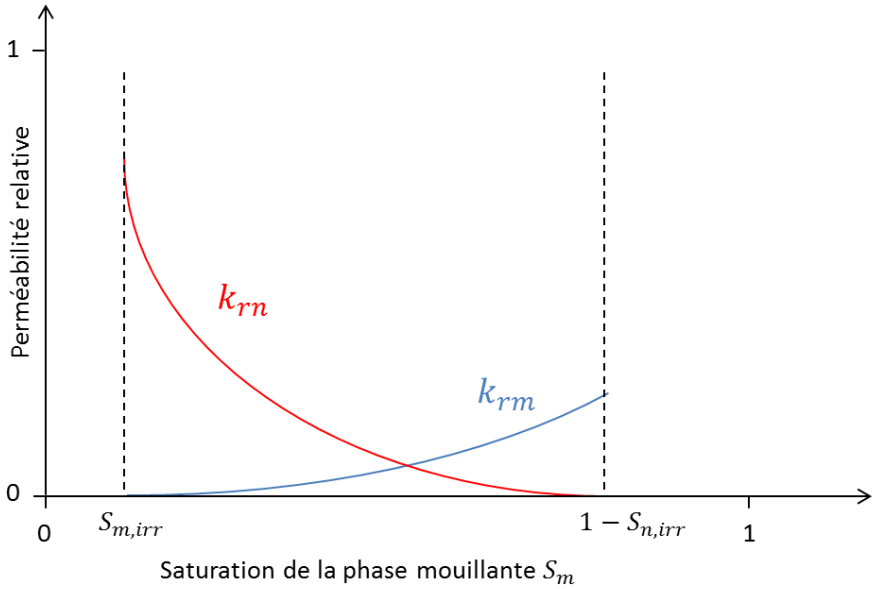


Figure 120 : Evolution des perméabilités relatives de la phase mouillante et de la phase non mouillante en fonction de de la saturation de la phase mouillante.

Annexe C : Tension de surface et pression capillaire

La tension de surface désigne l'énergie nécessaire par unité de surface à la fabrication d'une interface entre deux matériaux non miscibles. La tension de surface, superficielle ou interfaciale, sont des termes différents qui concernent la même quantité : une énergie par unité de surface, souvent notée σ (N/m). On parle de tension de surface dans le cas d'un fluide et d'un solide, de tension superficielle dans le cas d'un gaz et un fluide et de tension interfaciale dans le cas de deux fluides.

Dans le cas d'une interface courbée, une différence de pression existe entre les pressions des différents milieux (par exemple liquide et air). La tension de surface tend alors à rendre la surface plate en contrecarrant cette différence de pression, ce qui est connu sous la loi de Young Laplace :

$$\Delta P = \sigma(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}) \quad \text{(A.5)}$$

Où R_1 et R_2 sont les courbures des deux interfaces de la surface plane.

Dans le cas de deux fluides immiscibles au sein du milieu poreux, la pression dans le fluide non mouillant (n) est supérieure à celle qui règne dans le fluide mouillant (m). Cette différence de pression exprime ce qu'on appelle la pression capillaire :

$$P_c = P_n - P_m = \frac{\sigma}{R_c} \quad \text{(A.6)}$$

Où R_c est le rayon de courbure de l'interface égale à $\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}$.

L'équation (A.6) doit être adaptée pour tenir compte des effets de la mouillabilité associée à la surface du solide, pour pouvoir calculer la pression capillaire dans le milieu poreux. La mouillabilité est la mesure de la capacité d'étalement d'un fluide sur une surface solide. La seule mesure directe de la mouillabilité est l'angle de contact, qui est l'angle mesuré lorsqu'un fluide dense crée une interface fluide-fluide avec une surface solide. Pour un solide idéal, la phase mouillante est celle qui va créer un angle de contact plus petit que 90° avec le solide. Cette définition est difficile à appliquer directement sur des surfaces minéralogiques d'un système poreux réel, qui sont compliquées. Néanmoins beaucoup de

matrices rocheuses peuvent être considérées comme mouillable à l'eau, spécialement les roches de grès, ce qui veut dire que l'eau s'étalera de manière préférentielle sur la surface rocheuse que les fluides hydrocarbonés.

Afin d'illustrer l'effet de la mouillabilité sur les pressions capillaires, il est important d'avoir un modèle de la géométrie de l'espace poreux. Un ensemble de tubes capillaires est le modèle le plus simple qui existe pour rendre compte des effets de la pression capillaire en milieux poreux. La pression capillaire qui existe à l'interface, à un point donné le long d'un tube capillaire cylindrique peut être décrite par :

$$P_c = \frac{2\sigma\cos(\theta_c)}{R_T} \tag{A.7}$$

Où θ_c est l'angle de contact entre l'interface fluide-fluide et le solide et R_T le rayon du tube. Pour des milieux poreux qui sont fortement mouillables à l'eau, l'angle de contact est proche de 0°.

Annexe D : Utilisation des débitmètres Brooks

Le débitmètre Brooks modèle SLA est un débitmètre massique qui permet de délivrer un débit massique de gaz constant, dans une gamme de débits choisie $[D_{min}, D_{max}]$. D_{min} correspond souvent à la valeur 0. En revanche, plus on va vers des débits très faibles par rapport à la gamme du débitmètre, plus l'incertitude augmente, d'où le choix de travailler avec deux débitmètres avec deux gammes différentes. La gamme 0-180 NmL/h est la plus petite qui pouvait être fournie par Brooks. Une fois que le gaz de densité définie est choisi et que la calibration du débitmètre est réalisée pour ce gaz (dans notre cas l'azote), on peut facilement parler de débit volumique au lieu de débit massique. Les débits sont souvent exprimés par les fournisseurs en NmL/h ou en NL/h, ce qui correspond à la quantité de gaz qui s'écoule dans un tuyau dans les conditions normales (d'où la lettre « N ») de température et de pression (0°C et 1 bar). En fonction des conditions de température et de pression d'utilisation, on convertie le débit en mL/h ou en L/h, à l'aide de l'équation suivante :

$$d = D\frac{P_n T_{am}}{P_{am} T_n} \tag{A.8}$$

Où d est le débit volumique dans les unités usuelles (mL/h ou L/h) et D le débit volumique exprimé en NmL/h ou NL/h. T_{am} et P_{am} correspondent à la température et la pression de travail en entrée de la cellule respectivement. T_n et P_n représentent la température et la pression dans les conditions normales, i.e 0°C et 1 bar. Dans notre cas, l'utilisation du boitier de commande Brooks Microprocessor Control & read out unit (model 0152) permet de contrôler le débit en travaillant à une fraction (en pourcentage) de la valeur maximale du débitmètre d_{max}. Ainsi, si Q_g est la valeur de débit volumique de gaz souhaitée, la valeur q_g à entrer sur le boitier de commande correspond à :

$$q_g(\%) = 100\frac{Q_g(mL/h)}{d_{max}\ (mL/h)} \tag{A.9}$$

Un exemple de calcul du débit de gaz dans les gammes de débits des deux débitmètres Brooks SLA5850S et SLA 5850E est présenté dans le tableau ci-dessous :

Modèle	**Gamme de débit dans les conditions normales (NmL/h)**	**Gamme de débits dans les conditions de travail (mL/h)**	P_{am} **(bar)**	Q_g **(mL/h)**	q_g **(%)**
SLA52850S	0-180	0-19.6	10	5	25.6
SLA5850E	0-3000	0-326.2	10	65	19.9

Tableau 26 : Exemple de calcul du débit de gaz injecté à une température de 20°C.

Annexe E : Validation de l'hypothèse d'une compressibilité isotherme

L'écoulement de la mousse en milieu poreux induit des phénomènes de compressibilité. Afin de pouvoir estimer le débit de gaz en sortie, connaissant la pression aval, il faut pouvoir appliquer la loi de Boyle-Mariotte sous l'hypothèse d'une compressibilité isotherme.

Une compressibilité est considérée isotherme si le temps caractéristique de diffusion de la chaleur à travers une bulle est négligeable par rapport au temps caractéristique d'écoulement de la bulle à travers le milieu poreux. Le temps caractéristique de la diffusion de chaleur τ_c peut être défini par l'équation suivante :

$$\tau_c = \frac{l_c^2}{D} \tag{A.10}$$

Où l_c est la longueur caractéristique sur laquelle diffuse la chaleur, dans notre cas le diamètre de la bulle, et D le coefficient de diffusivité thermique qui vaut 2 10^{-5} m^2/s pour l'azote. Pour un diamètre moyen d'une bulle de 50 µm, on obtient $\tau_c = 1.25\,10^{-4}$ s. Or le temps caractéristique pour que la bulle traverse la carotte en entier vaut :

$$\tau = \frac{L}{v_{int_g}} \tag{A.11}$$

Où L est la longueur caractéristique de la carotte et v_{int_g} la vitesse interstitielle du gaz. Pour une grande vitesse interstitielle de 250 µm/s par exemple, on trouve $\tau = 200\ s$. Ainsi on montre que :

$$\frac{\tau}{\tau_c} \gg 1 \tag{A.12}$$

Ceci prouve que le temps caractéristique de diffusion de la chaleur à travers la bulle est négligeable devant le temps caractéristique de traversée du milieu poreux par la bulle. D'où la validation de l'application de la loi de Boyle-Mariotte.

Annexe F : Mesure de la densité de la silice

Une mesure de la densité de silice fondue a été réalisée à l'aide de technique de pycnométrie Hélium. Cette technique permet de mesurer la densité du solide, déduction faite de tous les vides (hors porosité fermée). La pycnométrie Hélium repose sur la loi de Boyle-Mariotte (PV = constante) qui établit une relation entre la pression et le volume d'un gaz réel à température constante (ici 25°C $\pm$1°C). Le principe de la mesure est d'injecter un gaz (ici l'hélium) à pression donnée P_1 dans une enceinte de référence de volume V_1 (cf. Figure 121), puis de détendre ce gaz dans l'enceinte de mesure de volume V_2 avec la nouvelle mesure de la pression P_2. Ceci permet de calculer le volume V_S de l'échantillon et de déduire la densité réelle d_g du matériau de masse m connue à travers l'équation suivante :

$$d_g = \frac{m}{V_S} \text{ où } V_S = V_1 - \frac{P_2 V_2}{(P_1 - P_2)} \qquad \text{(A.13)}$$

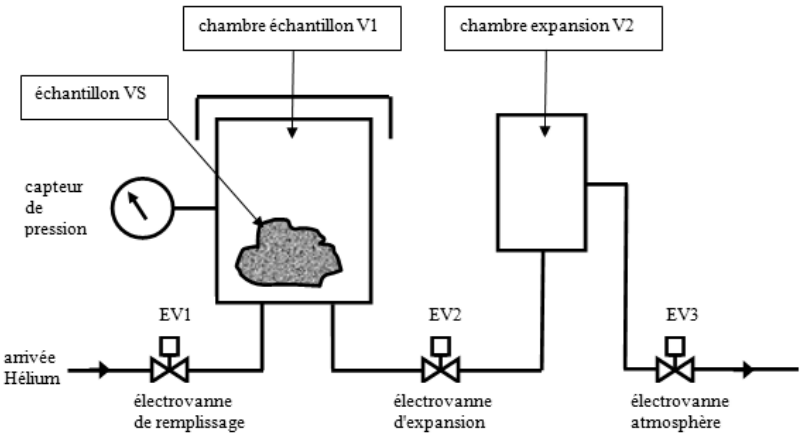


Figure 121 : Schéma du pycnomètre.

Annexe G : Analyse d'images 3D des grains

Réalisation des mesures en µ-tomographie

Les mesures en micro-tomographie-X des grains ont été réalisées à l'ESRF (European synchrotron radiation facility) à Grenoble sur la ligne ID19. Les cellules d'écoulement remplies avec de la silice préalablement préparée, identifiée en taille et utilisée pour les expériences d'écoulement de mousse ont été soumises à un faisceau X monochromatique de 37 KeV. Un support spécifique adapté à la plateforme de la table rotative de la ligne ID19 et aussi aux dimensions des embouts de la cellule SANS a été conçu pour maintenir la cellule verticale pendant la rotation de la plateforme motorisée lors de l'acquisition. L'image acquise représente 2016^3 pixel^3. La taille de pixel est de 1.1 µm. Une acquisition consiste en 2000 projections avec un temps moyen d'acquisition de 50s. Une caméra PCO DIMAX permet d'enregistrer une image de 2016^3 pixel^3 soit un volume physique total de 2.22mm x 2.22mm x 2.22 mm.

Analyse des grains sur l'image 3D

Le traitement de l'image consiste à créer d'abord un sous-volume de l'image initiale afin de réduire le temps de traitement tout en ayant une image représentative (cf. Figure 122). L'image en niveaux de gris est d'abord filtrée, puis segmentée et enfin un algorithme de séparation de grains est appliqué :

- Application d'un filtr**e :** L'image brute présente un bruit qu'on enlève en appliquant un filtre médian pour les granulométries C (71-112 µm) et D (112-150 µm) et un filtre de dé-bruitage par morceaux « *non local means* » pour les granulométries A (32-45 µm) et B (45-71 µm). Le dernier filtre consomme beaucoup de ressources et donc de temps de traitement. Dans le cas des grandes granulométries, les bords et les détails des grains se distinguent bien de l'espace poreux, le filtre médian est alors suffisant pour la suite du traitement. Dans le cas des petits grains, l'utilisation du débruitage par morceaux permet d'amoindrir la perte de détails au sein de l'image (cf. Figure 122.a).
- Segmentation : L'étape de segmentation consiste à séparer le vide de la matrice solide des grains en analysant la distribution du niveau de gris de l'image (cf. Figure 122.b). En effet, sur l'image en niveaux de gris, on obtient 2 pics bien distincts. La

segmentation est réalisée en choisissant le minimum entre les deux pics comme valeur de séparation entre les deux phases.

- Séparation d'objets : Utilisation de l'algorithme W*atershed* pour séparer et isoler les grains un par un (cf. Figure 122.c).
- Reconstruction de la surface des grains : Une fois les grains séparés, on peut isoler les pixels appartenant à chaque grain, puis reconstruire leurs surfaces (cf. Figure 122.d).

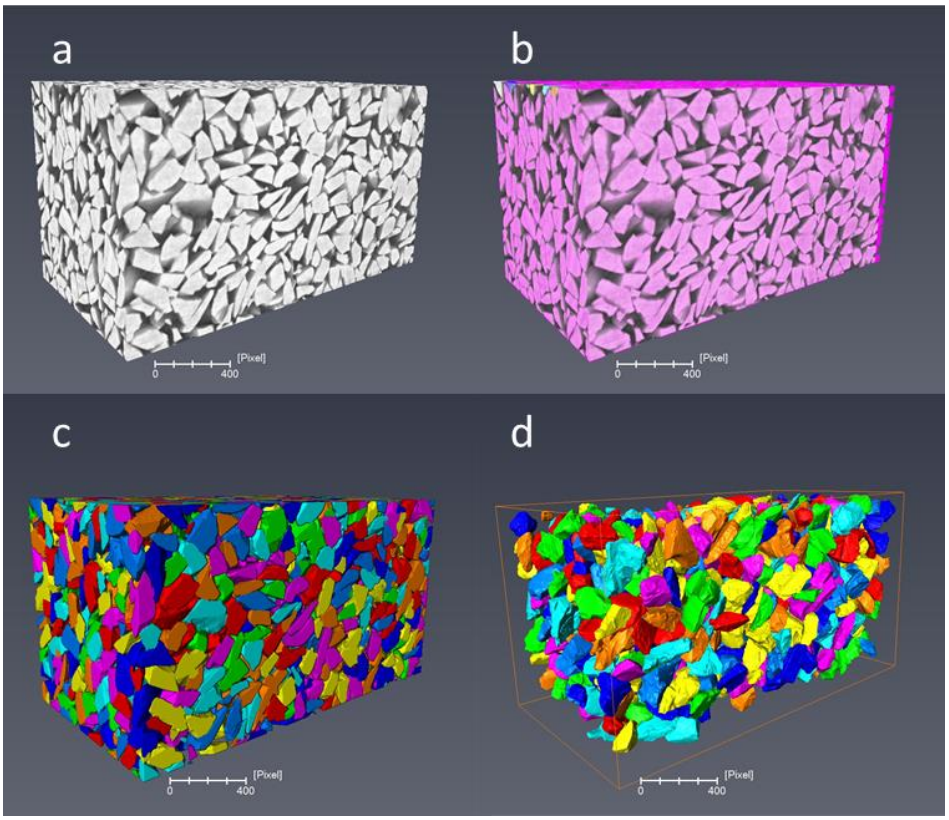


Figure 122 : (a) Sous-volume de l'image initial (taille 1000x1000 pixel). (b) Image segmentée. (c) Image avec séparation des grains. (d) Surfaces des grains isolées. Pixel = 1.1µm.

Extraction des paramètres géométriques décrivant les grains

A partir du traitement d'images décrit dans le paragraphe précédent, on peut facilement mesurer la surface et le volume de chaque grain à partir de modules de calculs dans le logiciel Avizo. Les paramètres géométriques d'intérêts sont présentés ci-dessous :

- Diamètre équivalent : Il s'agit du diamètre de la sphère équivalente au volume mesuré pour chaque grain, calculé à l'aide de la formule suivante :

$$d_s = (\frac{6\,V}{\pi})^{1/3} \quad \text{(A.14)}$$

Où V le volume du grain et d_s le diamètre de la sphère équivalente

- Surface spécifique : On la mesure en divisant la surface totale des grains S par un volume V sondé :

$$S_{spé} = \frac{S}{V} \quad \text{(A.15)}$$

- Sphéricité : Ce paramètre permet d'estimer de combien les grains sont proches de sphères parfaites. Il est mesuré par la formule suivante :

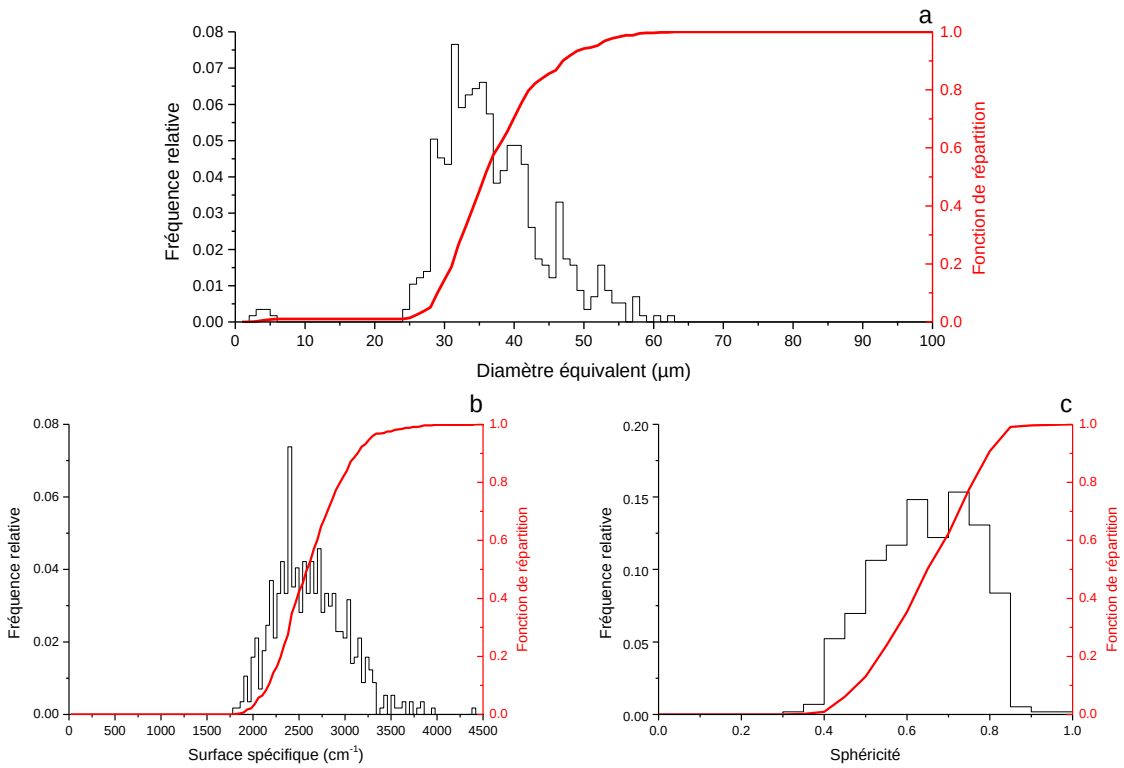
$$\varphi_A = \frac{\text{Volume de la sphère de même surface que la particule}}{\text{Volume de la particule}} \quad \text{(A.16)}$$

$$\varphi_A = (\frac{d_a}{d_s})^3 \quad \text{(A.17)}$$

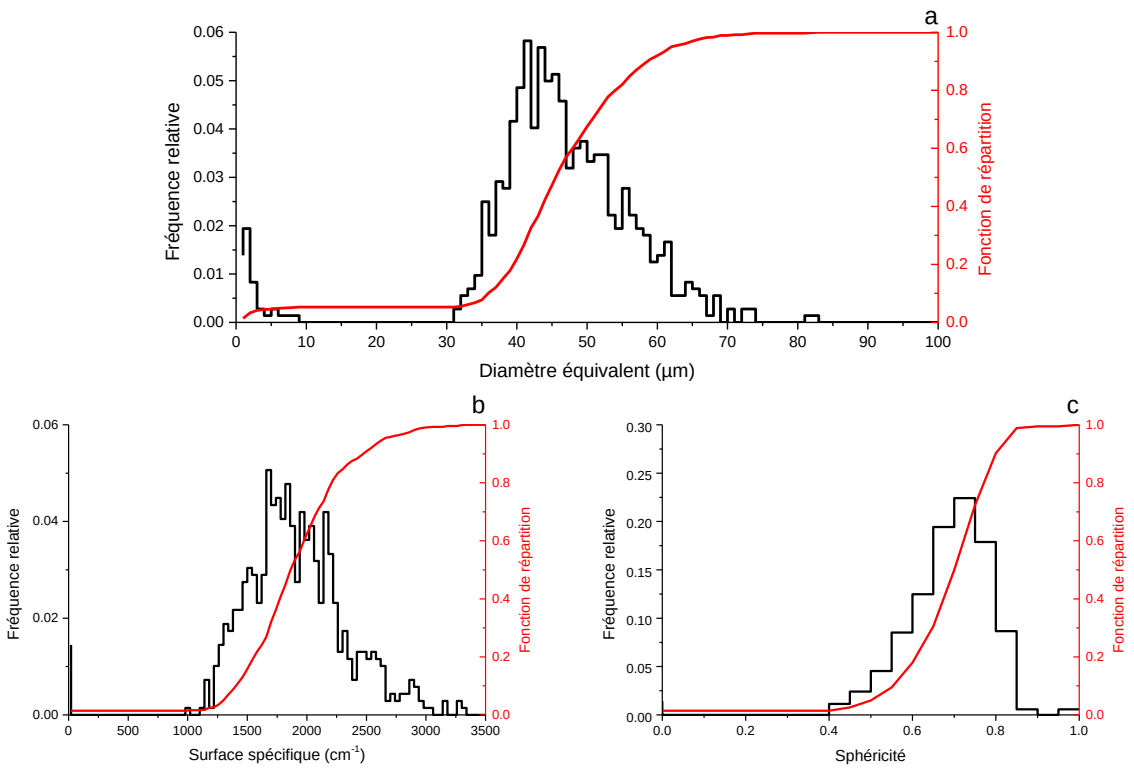
Où d_s est le diamètre de la sphère de même volume que le grain et d_a le diamètre calculé à partir de la surface de la sphère de même surface que le grain.

Annexe H : Distributions statistiques des paramètres géométriques des grains

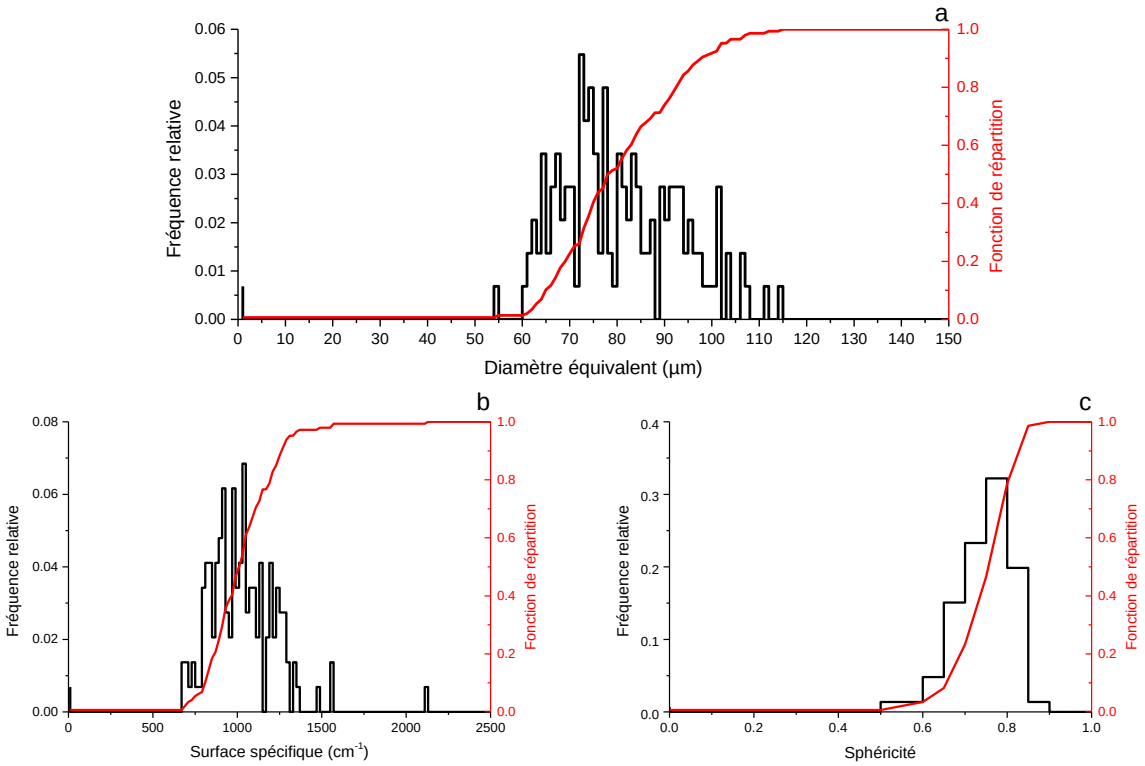
Granulométrie A (32-45 µm)



Granulométrie B (45-71 µm)



Granulométrie C (71-112 µm)



Annexe I : Diagramme de phase des micelles de SDS

De manière générale, lorsque les tensioactifs sont rajoutés au-delà la concentration micellaire critique, il se forme des agrégats en solutions qu'on nomme les micelles. Les micelles peuvent être définies par leur taille et leur nombre d'agrégation (nombre de molécules composant l'agrégat). La structure globale des micelles peut changer et donner des formes diverses et variées telles que des sphères, des cylindres ou des ellipsoïdes. Afin de caractériser cette forme, le paramètre d'empilement P est utilisé pour prédire la structure globale qui est défini par l'équation suivante :

$$P_m = \frac{V_m}{a_m . l_m} \qquad \text{(A.18)}$$

Où V_m est le volume de la chaîne hydrophobe, l_m la longueur de la chaîne et a_m l'aire de la section à l'interface.

En effet, ce paramètre rend compte du rapport volumétrique entre la partie hydrophobe et la partie hydrophile d'un monomère de tensioactif pour lui attribuer une valeur qui prédit la forme et la taille de l'agrégat en solution aqueuse (cf. Figure 123).

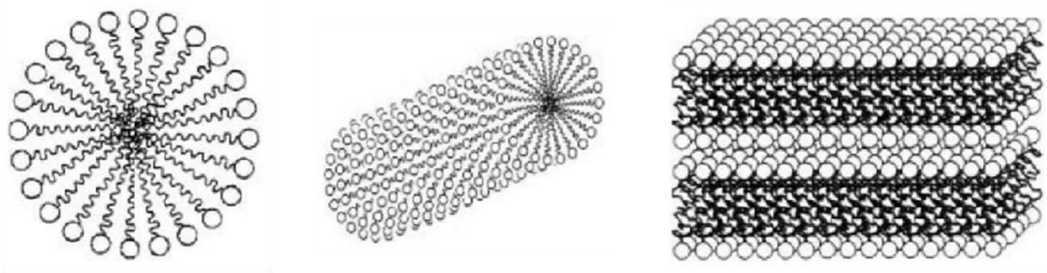


Figure 123 : Différentes configurations d'agrégats formés par les tensioactifs selon la valeur du paramètre d'empilement P.

La forme de ces agrégats peut changer en fonction des paramètres de température et de la concentration des tensioactifs en solution mais aussi en présence de sels ajoutés [128]. K. Fontell et al., [151] ont suggéré le diagramme de phase cité dans la Figure 124 dans le cas du Sodium Dodecyl Sulfate (SDS). A température ambiante (20°C), et à des concentrations inférieures à 32% en masse environ, le SDS forme des micelles en solution. Au-delà de cette

concentration, une phase hexagonale H_α correspondant à une forme de cylindres formant un hexagone apparaît puis à une concentration de 73% en masse et à températures élevées au-delà de 50°C apparaît une phase lamellaire L_α qui correspond à des bicouches de tensioactifs qui s'alternent avec des couches d'eau. Entre ces deux phases, il existe différentes autres mésophases.

Au concentrations proches de la CMC, la phase micellaire est considérée équivalente à des sphères ou à des ellipsoïdes [129, 152, 153]. La taille de ces micelles a tendance à se rétrécir lorsque la température augmente. Tandis que le nombre d'agrégation (nombre de molécules de tensioactifs par micelle) diminue lorsque la température augmente et décroît lorsque la concentration de SDS augmente [129].

Enfin, la température de Kraft pour le SDS se situe à environ 10°C (cf. Figure 124). Il s'agit de la température minimale pour que les tensioactifs puissent former des micelles. En dessous de cette température, la CMC n'existe pas.

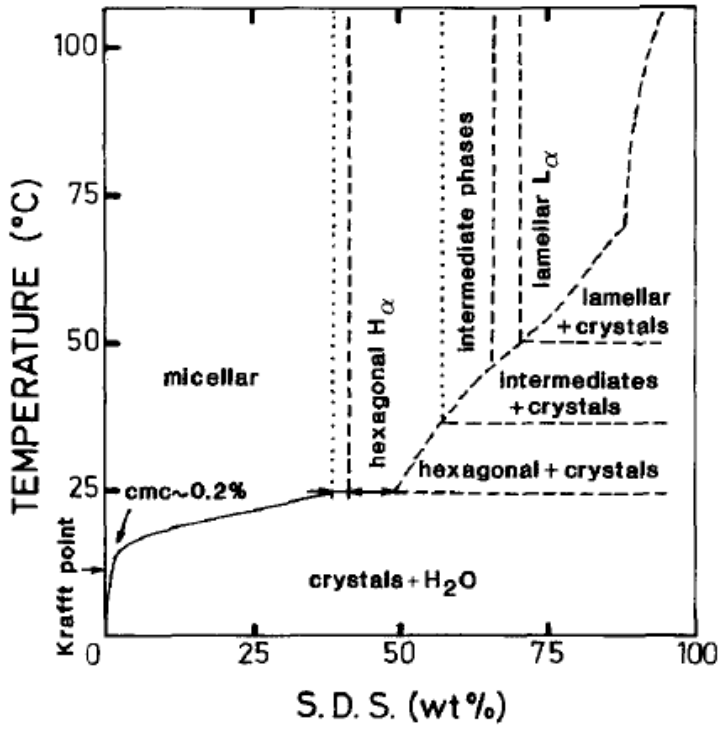


Figure 124 : Diagramme de phase de SDS selon K. Fontell [151].

Annexe J : Tests de validation des écoulements de mousse dans les milieux granulaires

Les tests effectués consistaient à réaliser des expériences d'écoulement de mousse dans les différents milieux granulaires, avant de partir en mission sur grands instruments (LLB et ILL). Cela permettait de connaître approximativement la durée de l'expérience et de maîtriser les conditions d'injection, i.e. travailler à des pressions acceptables pour les instruments utilisés dans notre montage. En effet, il est difficile, voire impossible de prédire à l'avance les gradients de pression développés par la mousse en fonction de la longueur de cellule, du milieu poreux ou des vitesses d'injection.

Le montage utilisé est celui qui a été présenté dans le chapitre 3 (cf. Figure 69). Chaque expérience est réalisée avec un milieu granulaire différent et/ou dans des conditions d'injection différentes. Le milieu granulaire est d'abord saturé avec une solution de saumure de 0.2% en masse de NaCl puis on co-injecte la solution de tensioactifs (0.5% en masse de SDS) et le gaz N_2 à une qualité de mousse définie à 0.5. Le débit total est calculé à partir de la vitesse interstitielle totale choisie pour être assez élevée et proche de 272 µm/s. Le choix d'une vitesse élevée permet de s'assurer un gain de temps lorsque les expériences sur les grands instruments sont réalisées. Toutefois, une grande vitesse d'injection développe des gradients de pression élevés qui peuvent dépasser la pression de sécurité du montage. D'où l'utilité aussi de ces tests.

Le tableau ci-dessous résume les différents tests effectués. Pour les faibles granulométries A (32-45 µm) et B (45- 71 µm), les pressions développées sont élevées même pour une longueur de cellule petite car il s'agit de milieux poreux fins, avec une perméabilité assez faible (entre 1 et 2 darcy). Un test à très faible vitesse (0.72 mL/h) a pu être réalisé avec la granulométrie la plus petite A (32-45 µm) pour voir si on atteint tout de même un état stationnaire (cf. test 1 dans le Tableau 27), ce qui n'est pas le cas. En plus, on obtient une durée de temps pour le régime transitoire qui est très élevée (>172h) ce qui ne peut être utilisée dans le cas d'expériences de grands instruments. La granulométrie C a pu être testée pour les deux longueurs de cellule disponibles (6 et 13 cm). Les pressions développées dans le cas de la grande cellule restent élevées et proches de la pression de sécurité de 30 bars même si un état stationnaire a pu être atteint au moins pour une première qualité de mousse à 0.5.

Afin de pourvoir être en mesure de réaliser d'autres injections à des qualités de mousses plus élevées il était préférable de privilégier la petite cellule pour la granulométrie C (71-112 µm) (cf. test 8 dans le Tableau 27). Enfin, dans le cas de la granulométrie la plus grande D (112-150 µm), l'utilisation d'une cellule longue de 13 cm n'a pas posé de réels problèmes ni au niveau de la pression ni pour injecter des qualités de mousse plus grandes. Pour cela, une cellule longue a été préférée pour cette granulométrie (cf. test 4 dans le Tableau 27). Il faut noter aussi que par mesure de précaution au niveau des pressions, nous avons légèrement baissé les valeurs des vitesses interstitielles injectées lors des expériences aux grands instruments de 272 µm/s à 241 µm/s.

Test	$V_{int\ tot}$ (µm/s) visée	Granulométrie (µm)	K (Darcy)	ϕ (%)	L (cm)	Q_t (ml/h)	Durée transitoire (h)	ΔP au stationnaire 1er f_g (bars)	P_{amont} au stationnaire 1er f_g (bars)	BP (bars)	f_g injectée
1 *	35	A	1.3	40.8%	6.4	0.72	> 173	---	---	10	0.5
2 *	272	A	1.2	40.8%	6.4	5.5	> 20.5	> 18	> 28	10	0.5
3 **	272	B	2.3	41.6%	6.4	5.8	40.8	22.3	27.3	5	0.5
4 ***	272	D	8.8	42%	13	6	13	9.6	14.6	5	0.5->
5 **	272	C	5.2	41.2%	13	6	> 24	19.4	24.4	5	0.5
6 *	272	C	5.3	41.2%	13	6	> 14	> 30	> 30	10	0.5
7 **	272	C	5.3	41.2%	13	6	30	20.5	25.5	5	0.5
8 ***	272	C	4	42%	6.4	5.9	15	11.3	16.3	5	0.5->

*Test non concluant ** Test concluant pour une seule qualité de mousse *** Test concluant

Tableau 27 : Tableau récapitulatif des tests d'écoulement de mousse dans la cellule SANS pour les différentes granulométries

Annexe K : Modélisation de la distribution des rayons hydrauliques équivalents des seuils de pores

La distribution log-normale est définie par l'équation suivante, où le logarithme de la variable (dans notre cas le rayon r_h) suit une distribution normale :

$$LogNorm(r_h, \alpha, s, p) = \frac{N}{c_{LN}} \frac{1}{{r_h}^p} \exp\left(-\frac{\ln(r_h/\alpha)^2}{2s^2}\right) \quad \text{(A.19)}$$

Avec

$$c_{LN} = \sqrt{2\pi} s \alpha^{1-p} \exp\left((1-p)^2 \frac{s^2}{2}\right) \quad \text{(A.20)}$$

Où α représente l'espérance, s définit l'écart-type (s^2 est la variance) et p un paramètre de forme. c_{LN} est choisi de manière à ce que $\int_0^\infty LogNorm(r_h, \alpha, s, p) = N$. Où N représente la densité volumique totale sur l'ensemble de la population de seuils.

Les fit sur les données obtenues pour r_h (cf. Annexe L) est ajusté aux grandes tailles de la distribution, qui représentent la plus grande population des tailles de seuils mesurées. Les résultats du Fit sont donnés dans le Tableau 28.

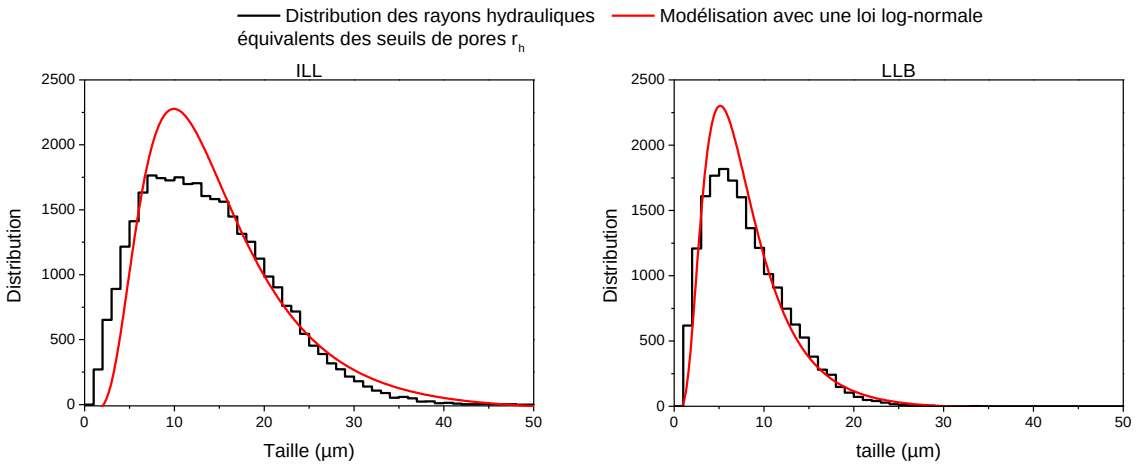


Figure 125 : Fit avec une loi log-normale des distributions des rayons hydrauliques équivalents des seuils de pores pour les milieux poreux ILL et LLB.

Statistique / Expérience	s	p	α	N
ILL	0.55	0.94	13.2	37000
LLB	0.57	1	7.1	20000

Tableau 28 : Statistique de la modélisation des rayons hydrauliques équivalents des seuils pour les milieux ILL et LLB.

Annexe L : Extraction de la géométrie du milieu poreux par PNA

Acquisition et traitement des images

Les cellules SANS ont été collées à un support adapté puis fixé verticalement sur la table rotative de chaque dispositif d'imagerie (ID19 ou RX solutions). Le milieu utilisé pour les expériences au LLB a été acquis à l'ESRF avec une taille de pixel de 1.1 µm et une énergie de 37 keV. L'utilisation de rayonnements Synchrotron permet d'avoir un faisceau X quasi-monochromatique et parallèle. Une Caméra PCO DIMAX permet d'acquérir des images de 2016x2016 pixels (2000 projections), ce qui représente un volume physique de 2.22^3 mm^3. La durée totale d'acquisition est de 50 s.

Le milieu utilisé pour les expériences à l'ILL a été acquis avec la machine RX Solutions disponible à l'IFPEN avec une taille de pixel de 4.3 µm, une énergie de 100 KeV et un courant de 200µA, une distance échantillon-détecteur de 52 cm et une distance échantillon-source de 16.2 mm (cf. Figure 126.b).

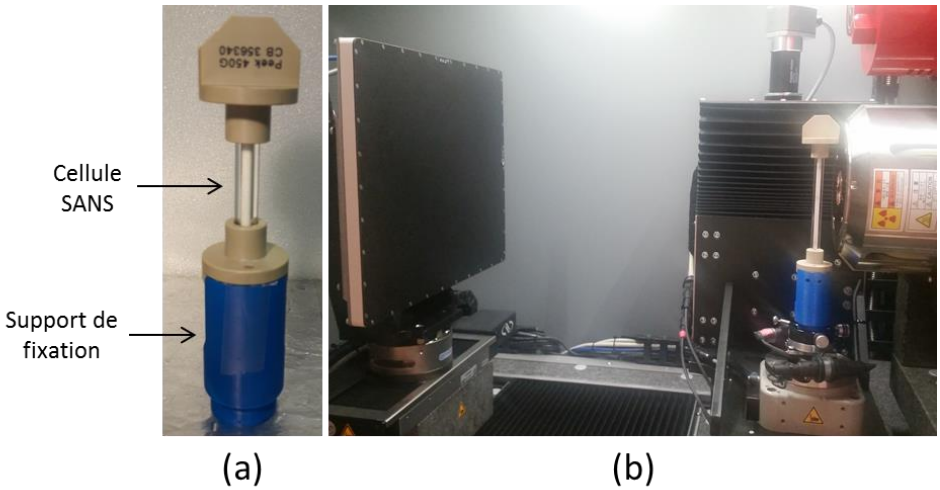


Figure 126 : (a) Cellule SANS sur son support de fixation. (b) acquisition d'images micro-tomographiques à l'aide du tomographe RX-solutions.

La méthodologie d'extraction du réseau poreux repose sur plusieurs étapes : d'abord l'image brute en 32-bits est transformée en 8-bits, puis elle est segmentée. Ensuite on extrait

le squelette du réseau poreux et on crée un partitionnement de l'espace poreux. Enfin, on détermine les paramètres géométriques du réseau de pores et de seuils.

Étape de segmentation

Cette étape consiste à séparer la phase solide (les grains) de la phase poreuse (le vide) (cf. Figure 95) et d'associer à chaque phase une couleur (blanc pour le vide et noir pour le solide). On part de l'histogramme en niveaux de gris de l'image en 8-bits (échelle de 0 à 255). La silice présente une seule phase dense, ce qui fait que l'histogramme des niveaux de gris possède 2 pics bien distincts (cf. Figure 127). La porosité du volume analysé est estimée par la formule suivante :

$$\Phi_s = \frac{NG_{max} - NG_{moy}}{NG_{max} - NG_{min}} \qquad \text{(III.61)}$$

Avec NG_{max} et NG_{min} représentant les niveaux de gris du pic du solide et du vide respectivement. NG_{moy} est la valeur moyenne de l'histogramme en niveaux de gris sur tout le volume considéré. Le seuillage est choisi de manière à obtenir en fin de segmentation, après lissage et nettoyage de l'image, une valeur de porosité égale à Φ_s. En effet, avant de calculer le squelette du réseau poreux, on applique systématiquement sur l'image segmentée un filtre de de lissage (Smooth) et on élimine les petits ilots (Remove Islands) à l'aide du logiciel Avizo dans la phase solide et dans la porosité.

Les histogrammes en niveau de gris de plusieurs sous-volumes de différentes tailles et pris à différents endroits sont représentés sur la Figure 127. Dans le cas du milieu poreux utilisé lors de l'expérience LLB correspondant à la granulométrie C (71-112 µm), on obtient une porosité moyenne de 40%$\pm$1.2%. Dans le cas du milieu poreux de l'expérience ILL (granulométrie D (112-150 µm)), on trouve une porosité moyenne de 41.3%$\pm$0.5%. Ces porosités restent du même ordre de grandeur que celles mesurées par la pesée. Il faut noter que les porosités pour des grains empilés de formes allongées se situent entre 40 et 45% [154]. En plus, la porosité ne varient pas beaucoup en fonction du sous-volume extrait.

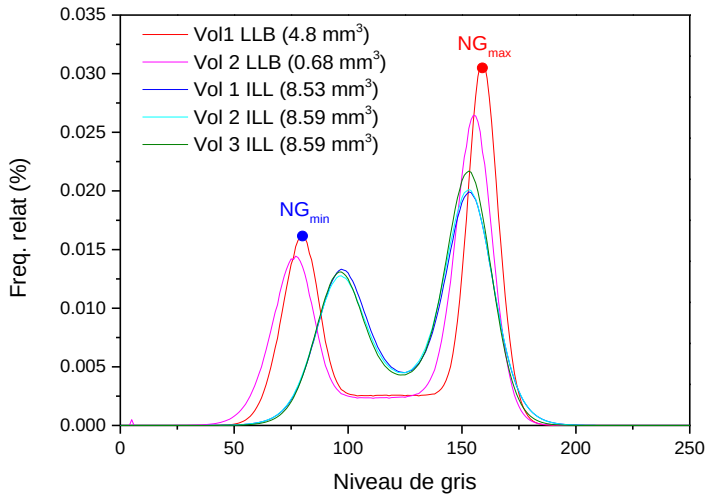


Figure 127 : Histogrammes en niveaux de gris pour différents sous-volumes des images initiales des cellules SANS LLB et ILL.

Extraction du squelette

L'extraction du squelette du réseau poreux est réalisée sur Avizo par un algorithme qui calcule la carte des distances du réseau poreux qui consiste à associer à chaque point du réseau poreux sa distance au point le plus proche de la phase solide (Méthode de *Chamfer* [35]). Les maxima locaux de la carte de distance correspondent exactement aux points du squelette. Chaque voxel du squelette est indexé par sa distance minimale aux bords de l'espace poreux. Ensuite, un algorithme d'amincissement « *Thinning* » est appliqué pour former le squelette du milieu poreux.

Partitionnement de l'espace poreux

Cette étape consiste à créer une distinction entre les pores et les seuils en utilisant le squelette généré précédemment. Un algorithme en C++ développé à IFP Énergies Nouvelles permet de chercher les restrictions de pores (les seuils) en déterminant les diamètres les plus petits sur l'ensemble de l'espace poreux. Cet algorithme considère les pores comme un ensemble de lignes ou de vertex interconnectés alors qu'un canal est représenté par une seule ligne (cf. Figure 128.a). Après nettoyage du squelette des branches mortes (en jaune sur la Figure 128.b) et des lignes en boucle fermée, on calcule la longueur de chaque ligne. Si la longueur de la ligne est inférieure au rayon d'une de ses extrémités, la ligne est classifiée en tant que ligne de pore. Sinon, il s'agit d'une ligne d'un canal. Le partitionnement de l'espace

poreux est ensuite réalisé en créant des groupements de lignes connectées qui appartiennent au même pore. On cherche ensuite la sphère de rayon maximal inscrite dans ce groupement (cf. Figure 128.c). Enfin, on reconstruit les images des pores en additionnant l'image labélisée par les groupements à l'image binaire de l'espace vide (cf. Figure 128.d), ce qui permet ensuite de visualiser les volumes de pores séparés sur Avizo et générer des surfaces qui permettent de calculer la surface et le périmètre des seuils dans un autre programme écrit aussi en C++.

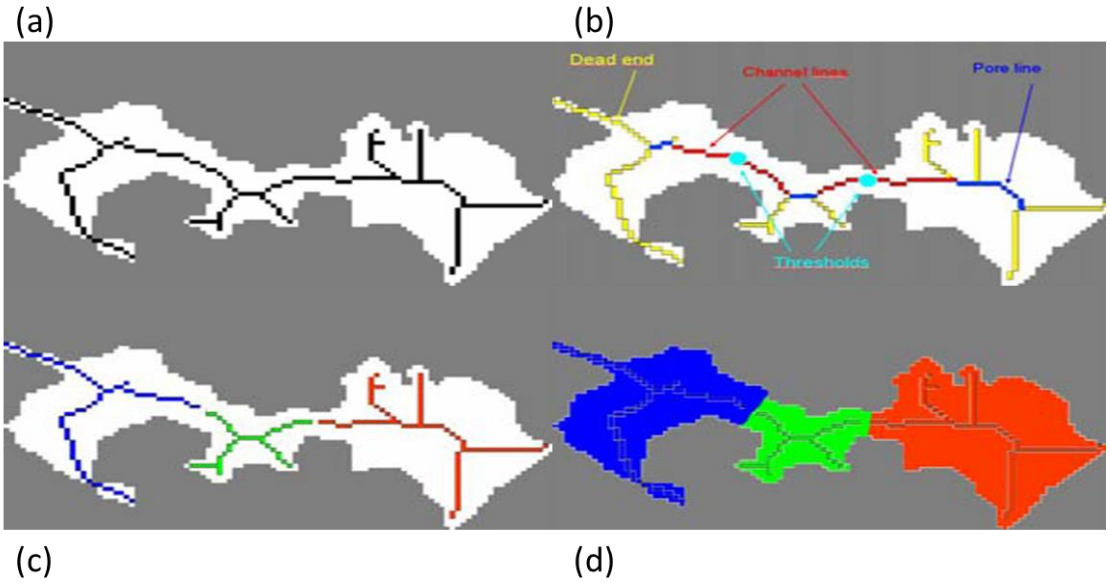


Figure 128 : (a) Le squelette initial de l'espace poreux, (b) Identification des canaux (rouge), les lignes des pores (bleu) et des branches mortes (jaune), (c) Identification des seuils de pore (diamètre minimal) et (d) reconstruction des pores en volume [136].

Paramètres géométriques extraits

Une fois que ce traitement est réalisé, on peut avoir accès à différents paramètres géométriques [136] :

- Le rayon équivalent de pore noté R_{eq} qui décrit le rayon de la sphère maximale délimitée par les restrictions du volume du pore
- Le rayon de seuil minimum r_{min} qui correspond au rayon de la plus petite constriction qui existe entre deux pores
- Le rayon hydraulique équivalent au seuil de pore r_h qui exprime le rapport entre la surface d'un seuil et son périmètre ($r_h = 2\ surface/périmètre$). Ce paramètre est utilisé en mécanique des fluides pour décrire l'influence du frottement liquide sur

les parois d'une canalisation. La perte de charge linéique sera d'autant plus faible que le rayon hydraulique sera grand.

- Le nombre de coordination N_c qui permet d'estimer le nombre de pores connectés à un pore donné
- La longueur hydraulique d'un canal l_h qui permet de rendre compte de sa conductivité hydraulique. En effet le modèle poreux utilisé par cette analyse PNA, prend en compte la variation du diamètre le long d'un canal. Ainsi, ce dernier peut être représenté par une série de cylindres élémentaires de rayons variables et connus r_i et dont l'épaisseur est égale à la taille du pixel (cf. Figure 129).
- La conductivité d'un fluide dans un cylindre élémentaire est définie par :

$$g_i = \frac{\prod_i r_i^4}{8\mu l_i} \tag{III.62}$$

- Or, la conductivité équivalente au cylindre de rayon r_{min} est définie par :

$$\frac{1}{g_{eq}} = \sum_i \frac{1}{g_i} = \frac{8\mu}{\pi} \sum_i \frac{l_i}{{r_i}^4} = \frac{8\mu l_h}{\pi r_{min}^4} \tag{III.63}$$

- D'où on montre que $l_{eq} = \sum_i^{n_{max}} l_i \, (\frac{r_{min}}{r_i})^4$ où n_{max} est le nombre d'éléments existants dans le canal. A noter que l_{eq} peut être très différent de la longueur réelle d'un canal.

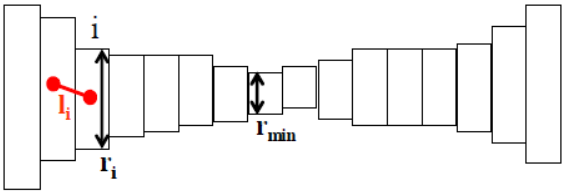


Figure 129 : Schéma d'un canal représenté par une série de cylindres [136].

- Le dernier paramètre est le rapport d'aspect R_a qui est calculé en divisant le rayon de pore par le rayon hydraulique équivalent des seuils.

Comparaison entre les milieux poreux LLB et ILL

La distribution statistique des paramètres R_{eq},r_{min}, r_h, l_h, N_c et R_a cités ci-dessus ont été représentés sur la Figure 130, pour les deux milieux poreux, LLB et ILL. Les distributions

semblent suivre une loi log-normale. Les rayons équivalents de pores s'étalent entre 2 et 60 µm avec une moyenne de 20.8 µm pour le milieu poreux LLB et entre 10 et 107 µm avec une moyenne de 42.7 µm pour le milieu poreux ILL. Le rayon hydraulique varie entre 1 et 26 µm avec un pic à 5µm pour le milieu poreux LLB, tandis que la distribution est plus large dans le cas du milieu poreux ILL, entre 1 et 40 µm avec un pic autour de 10 µm. Le paramètre r_{min} semble être décalé légèrement vers les grandes tailles pour le milieu ILL que pour le milieu LLB. La distribution des longueurs hydrauliques sont très proches de celles des rayons équivalents de pore. Ces variations montrent, qu'en moyenne, les paramètres géométriques R_{eq}, r_{min}, r_h et l_h sont deux fois plus grands pour le milieu poreux LLB que celui utilisé pour l'expérience ILL. En revanche, la distribution du nombre de coordination (entre 0 et 14) et du rapport d'aspect (entre 1 et 20) sont quasi-équivalents pour les deux milieux poreux. Il faut noter que la proportion de pores avec un nombre de coordination très faible (0 ou 1) est très petite dans les deux cas. Les valeurs moyennes des paramètres géométriques sont résumées dans le Tableau 29. Pour les cellules remplies de milieux granulaires de silice, on fait l'hypothèse que les distributions statistiques des tailles de pore et de seuil sont identiques et isotropes en toute position au niveau du milieu poreux, ce qui est largement acceptable pour un empilement de grains homogènes bien classifiés.

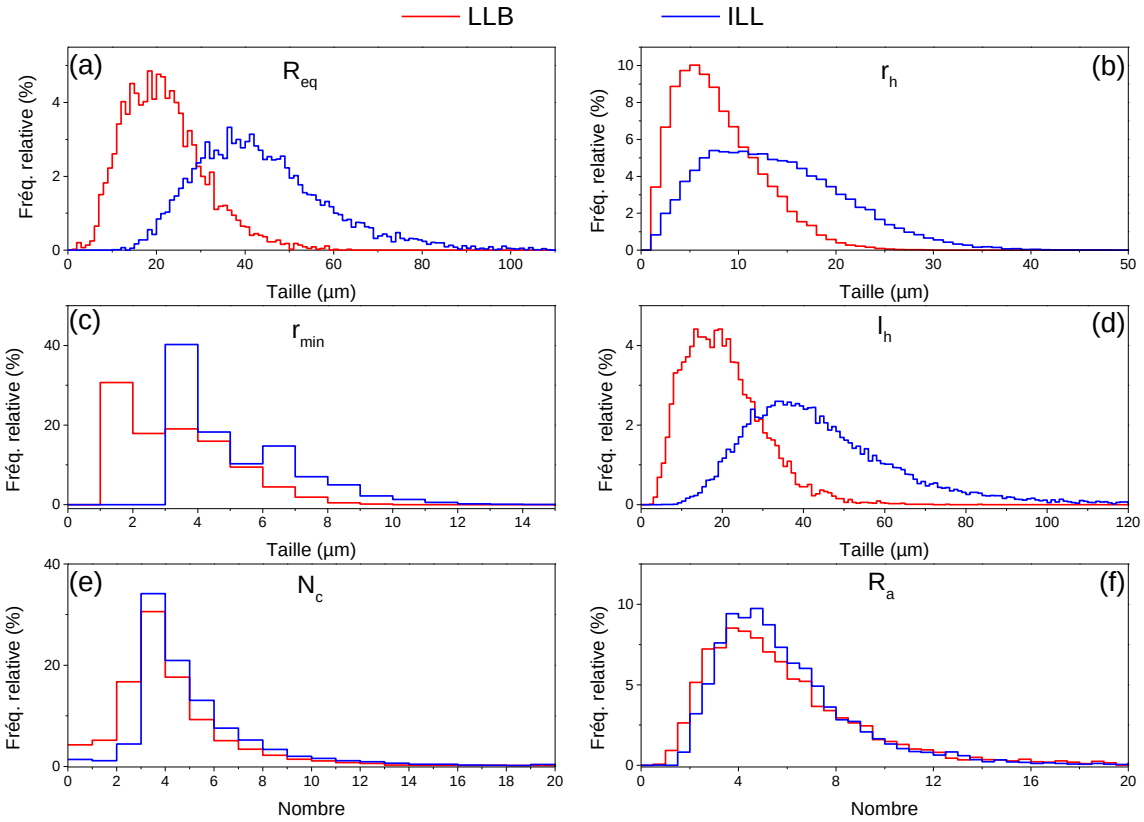


Figure 130 : Distributions statistiques des paramètres géométriques.

Expérience/Paramètre	$\overline{R_{eq}}$	$\overline{r_h}$	$\overline{r_{min}}$	$\overline{l_h}$	$\overline{N_c}$	$\overline{R_a}$
LLB-granulométrie C	20.8	7	2.3	19.4	3.9	5.7
ILL- granulométrie D	42.7	12.8	4	44.2	4.8	5.8

Tableau 29 : Paramètres géométriques moyens pour les milieux poreux LLB et ILL.

Annexe M : Coupes axiales d'images 3D de mousses à différentes f_g et positions

Nous décrivons qualitativement quelques coupes axiales de la mousse en écoulement dans le milieu poreux à différentes positions de la cellule : Entrée, milieu et sortie (2.5, 4.6 et 6.6 cm depuis l'entrée de la cellule). Le choix de ces images a été fait en fonction de leur qualité et de la facilité à voir la structure de la mousse et son évolution au sein du réseau poreux.

f_g 0.5 (entrée, milieu et sortie) stationnaire

On présente dans la Figure 131 et la Figure 132, une succession d'images 2D (coupes axiales, taille de pixel = 0.55 µm, taille image = 825 µm de diamètre) lors de l'écoulement de la mousse à une qualité de mousse f_g de 0.5. Les temps t1, t2 et t3 sont des temps de référence pour désigner la 1ère image de chaque position sur cette figure. Les gradients de pression au moment de l'acquisition ont été indiqués sur ces figures.

Les images acquises à cette qualité de mousse montrent globalement une quantité de liquide relativement élevée et des bulles bien séparées et très peu jointives. Notons que les lamelles dans le prolongement des bords de Plateau sont en dessous de la résolution spatiale et ne peuvent être vues même à cette qualité de mousse. Notons aussi qu'une quantité de liquide interstitiel importante est présente entre les grains dans les espaces les plus fins. En effet, pour que les bulles de gaz puissent pénétrer dans ce genre d'espaces et drainer cette phase liquide, il faut qu'elles développent une très grande pression capillaire d'entrée. Elles préfèrent alors minimiser leur énergie d'écoulement pour occuper des espaces plus larges.

Les bulles adoptent une géométrie globalement sphérique. Ces dernières ont tendance à se piéger dans les pores les plus larges et à se déformer lors de leur passage dans les constrictions de pores pour épouser la forme des espaces disponibles.

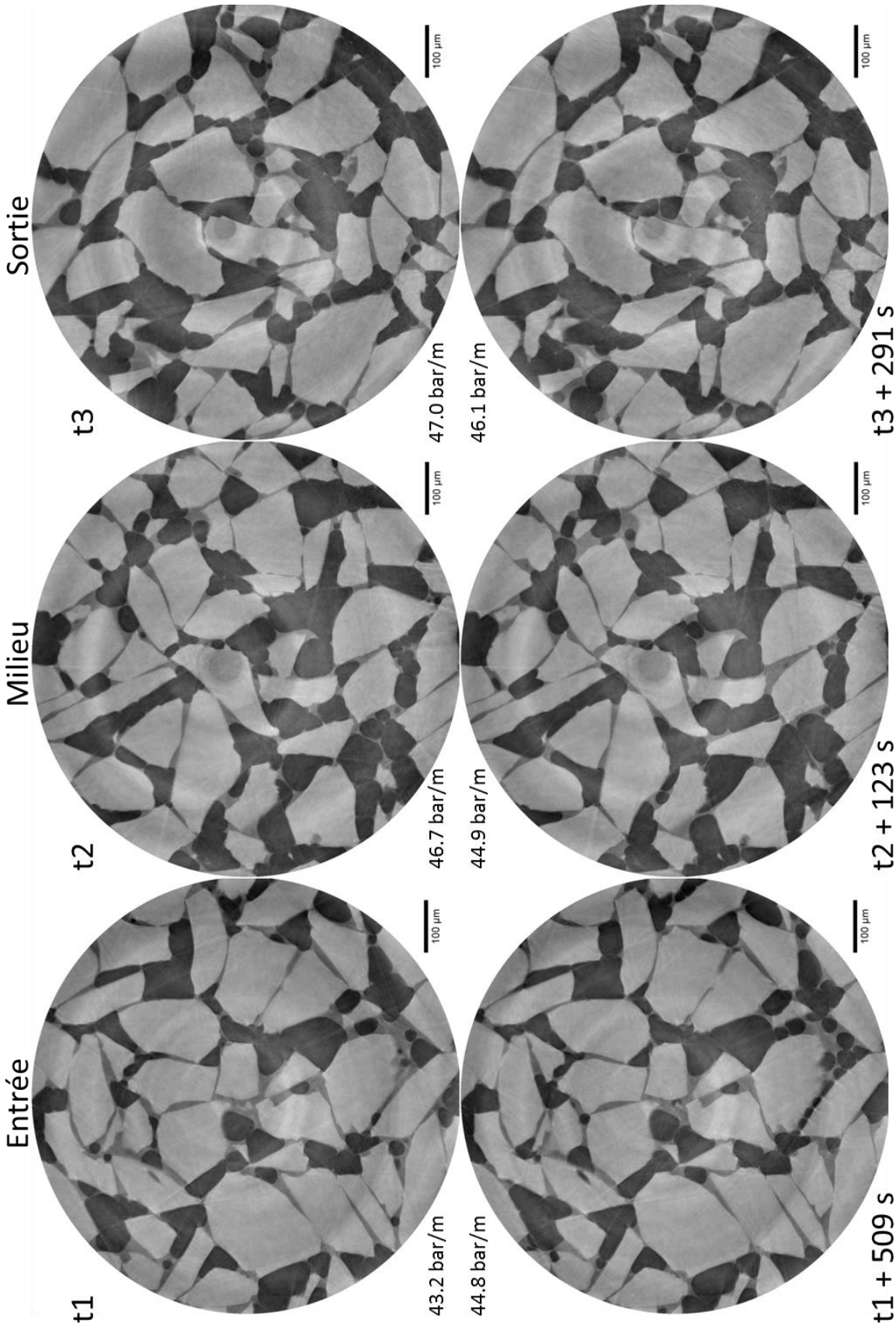


Figure 131 : Premier jeu d'images 2D correspondant à différents temps d'acquisition et à différentes positions. f_g = 0.5.

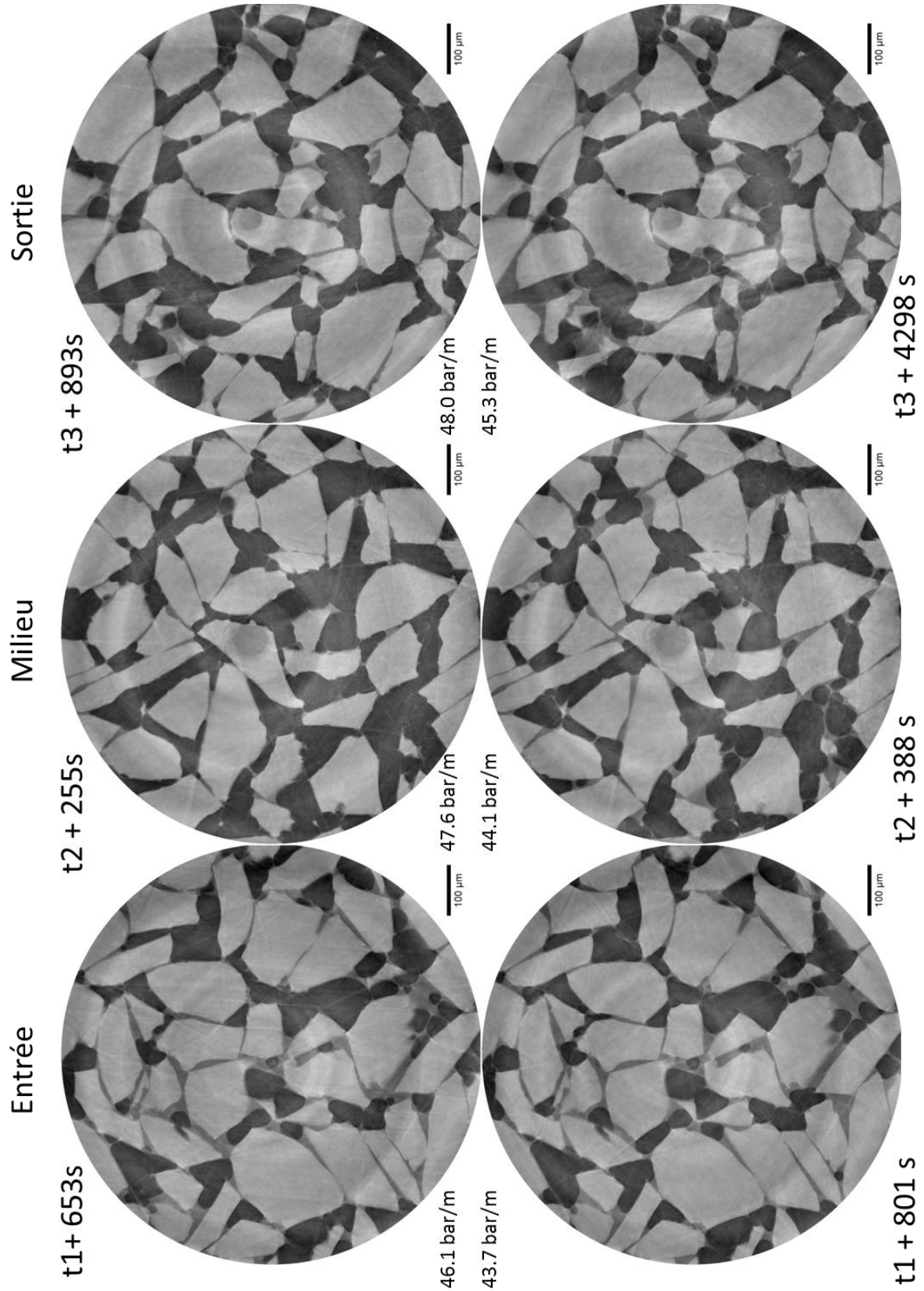


Figure 132 : Deuxième jeu d'images 2D correspondant à différents temps d'acquisition et différentes positions. f_g = 0.5

f_g 0.7 à l'état stationnaire (entrée, milieu et sortie)

L'augmentation de la qualité de mousse de f_g0.5 à f_g 0.7 engendre une augmentation du gradient de pression moyen (environ 60 bar/m) et une diminution de la fraction liquide. Ceci est illustré sur les coupes axiales des Figure 133 et Figure 134 avec une taille d'image plus petite (500 µm de diamètre pour les images à l'entrée, 540 µm au milieu, et 530 µm à la sortie) mais une résolution identique aux images à f_g 0.5 (taille de pixel = 0.55 µm).

On remarque que la fraction liquide diminue clairement entre l'entrée et la sortie de la cellule. Cette diminution s'accompagne d'une diminution de la taille des bulles de l'entrée vers la sortie. La taille de bulle a aussi diminué en comparaison avec la première qualité de mousse f_g 0.5 à iso-position.

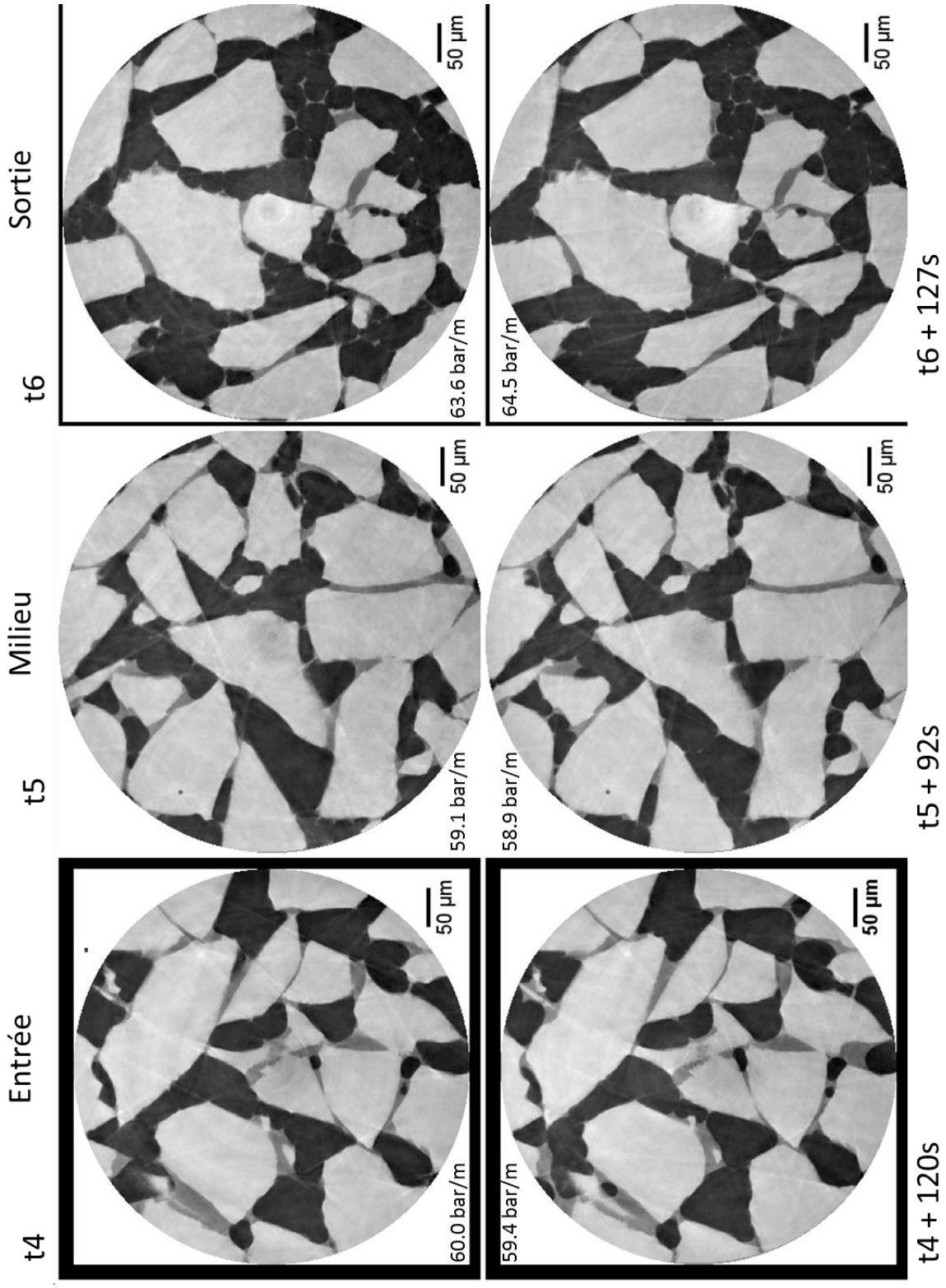


Figure 133 : Premier jeu d'images 2D correspondant à différents temps d'acquisition et différentes positions. f_g = 0.7

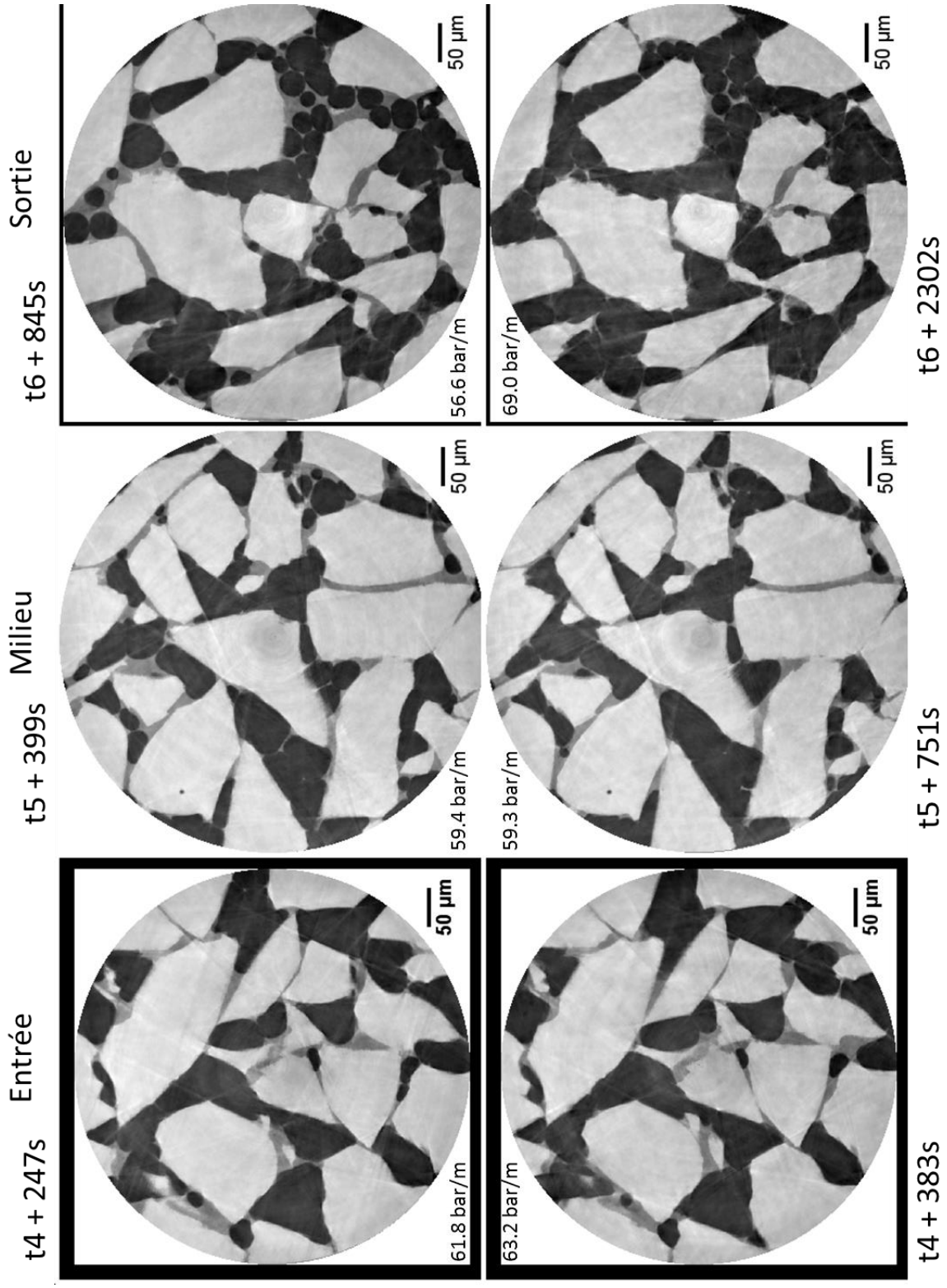


Figure 134 : Deuxième jeu d'images 2D correspondant à différents temps d'acquisition et différentes positions. f_g = 0.7

f_g 0.9 (entrée et sortie)

Sur la Figure 136, on voit des images d'une mousse à une qualité de mousse f_g encore plus élevée de 0.9. Ces images ont été acquises à une taille de pixel de 0.55 µm et représentaient initialement une taille d'image de 1008 x 1008 pixels. Elles ont été rognées pour mieux faire ressortir les caractéristiques du réseau liquide très fin formant la mousse. Ainsi, on constate que les bulles sont quasiment toutes jointives et forment des polyèdres qui occupent les pores et les canaux. Il est difficile d'isoler une bulle entière dans ces images, car les bords de Plateau sont très secs et se confondent avec le bruit et les artefacts de reconstruction à certains endroits. Le gradient de pression (118 bar/m) enregistré lors de ces acquisitions vaut deux fois celui enregistré pour la mousse à une qualité de mousse de 0.7 (~ 60 bar/m). Il est surprenant de voir qu'une mousse aussi sèche peut résister à des gradients de pressions aussi élevés. Par ailleurs, on observe toujours du liquide interstitiel qui occupe les canaux de très petite taille entre les grains. Il se pourrait que la présence constante de ce liquide interstitiel entre les grains aide la mousse à maintenir sa dynamique d'écoulement tout en ayant une structure très sèche dans les pores.

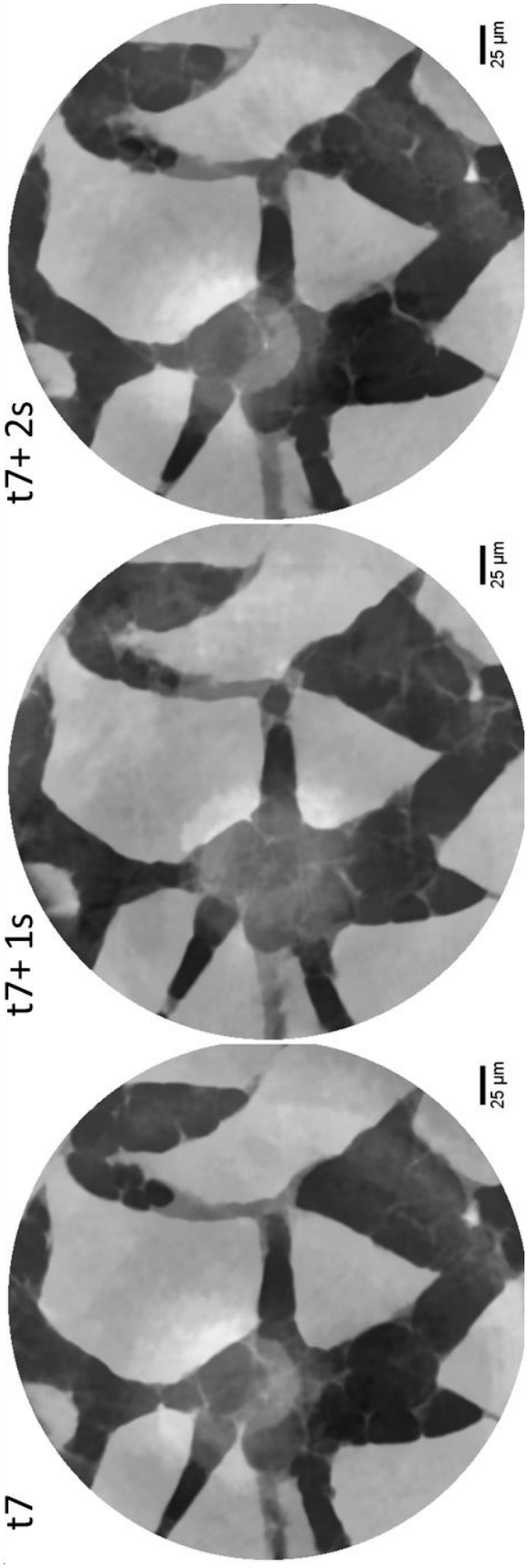


Figure 135: Images 2D correspondant à différents temps d'injection mais à la même position (proche du milieu de la cellule). $f_g = 0.7$. $\Delta P/L = 118$ bar/m

Annexe N : Images d'une mousse piégée dans un milieu poreux

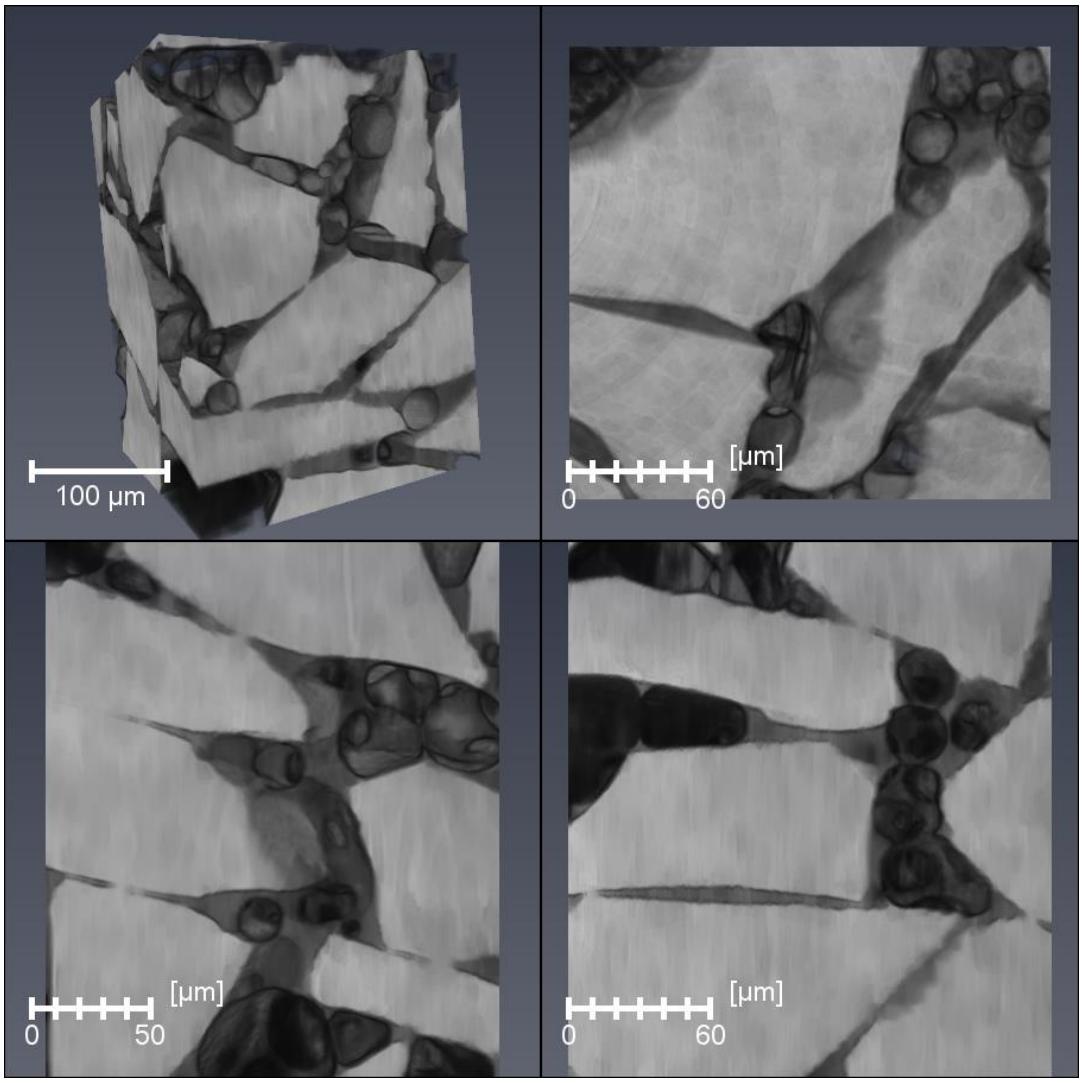


Figure 136 : Quelques images illustratives d'une mousse piégée dans le milieu poreux pour une qualité de mousse $f_g = 0.7$.

Références bibliographiques

[1] British petroleum, BP Statistical Review of World Energy, 67th ed., 2018.

[2] Zaid Kamil, Enhanced Oil Recovery Methods- An Overview, International Journal of New Technologies in Science and Engineering 2 (2015).

[3] A. Muggeridge, A. Cockin, K. Webb, H. Frampton, I. Collins, T. Moulds, P. Salino, Recovery rates, enhanced oil recovery and technological limits, Philosophical transactions. Series A, Mathematical, physical, and engineering sciences 372 (2014) 20120320.

[4] Hamed Hematpur, Syed Mohammad Mahmood, Negar Hadian Nasr, Khaled Abdalla Elraies, Foam flow in porous media: Concepts, models and challenges, Journal of Natural Gas Science and Engineering 53 (2018) 163–180.

[5] L.W. Holm, Foam Injection Test in the Siggins Field, Illinois, SPE-2750-PA (1970).

[6] J.P. Heller, D.A. Boone, R.J. Watts, Field Test of CO2 Mobility Control at Rock Creek, SPE-14395-MS (1985).

[7] M.L. Hoefner, E.M. Evans, CO2 Foam: Results From Four Developmental Field Trials, SPE-27787-PA (1995).

[8] T.M. Jonas, S.I. Chou, S.L. Vasicek (Eds.), Evaluation of a C02 Foam Field Trial: Rangely Weber Sand Unit. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. New Orleans, Louisiana. 23-26 September, 1990.

[9] D.C. Boud, O.C. Holbrook, Gas drive oil recovery process, Patent, 1958, US2866507.

[10] R. Farajzadeh, A. Andrianov, R. Krastev, G.J. Hirasaki, W.R. Rossen, Foam-oil interaction in porous media: implications for foam assisted enhanced oil recovery, Advances in colloid and interface science 183-184 (2012) 1–13.

[11] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, A. Saint-Jalmes, R. Flatman, S. Cox, Foams: Structure and dynamics, Oxford University Press, 2013.

[12] R.-M. Guillermic, Propriétés physico-chimiques des mousses études approfondies sur des mousses modèles et études exploratoires sur de nouvelles mousses. Ph.D. Dissertation, 2011.

[13] L. Lobo, D.T. Wasan, Mechanisms of aqueous foam stability in the presence of emulsified non-aqueous-phase liquids: Structure and stability of the pseudoemulsion film, Langmuir 9 (1993) 1668–1677.

[14] Rio Emmanuelle., Stabilité des mousses: Quelques expériences montrant l'influence de la rhéologie de surface. Fluid Dynamics.Université Paris Sud-Paris XI, 2013.

[15] C.J. Radke, J.V. Gillis (Eds.), A Dual Gas Tracer Technique for Determining Trapped Gas Saturation During Steady Foam Flow in Porous Media. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. New Orleans, Louisiana. 23-26 September, 1990.

[16] R.K. Prud'homme, S.A. Khan, Foams: Theory, measurements, and applications, Marcel Dekker, Inc, New York, 1996.

[17] A. Skauge, M.G. Aarra, L. Surguchev, H.A. Martinsen, L. Rasmussen, Foam-Assisted WAG: Experience from the Snorre Field. Improved Oil Recovery Symposium.Tulsa, Oklahoma, 2002-04-13.

[18] Mannhardt K., Svorstøl I., Surfactant Concentration for Foam Formation and Propagation in Snorre. Reservoir Core. Journal of petroleum science and engineering, N° 30 (2001) 105.

[19] J. Chad, P. Malsalla, J.J. Novosad, Foam Forming Surfactants In Pembina/Ostracod 'G' Pool, in: Petroleum Society of Canada, 1988, p. 10.

[20] A.T. Turta, A.K. Singhal (Eds.), Field Foam Applications in Enhanced Oil Recovery Projects: Screening and Design Aspects. SPE International Oil and Gas Conference and Exhibition in Beijing, China. 1998-11-02.

[21] G.J. Hirasaki, J.B. Lawson, Mechanisms of Foam Flow in Porous Media: Apparent Viscosity in Smooth Capillaries, Society of Petroleum Engineers Journal 25 (1985) 176–190.

[22] A.H. Falls, J.J. Musters, J. Ratulowski, The Apparent Viscosity of Foams in Homogeneous Bead Packs, SPE Reservoir Engineering 4 (1989) 155–164.

[23] Z.F. Dholkawala, H.K. Sarma, S.I. Kam, Application of fractional flow theory to foams in porous media. Journal of petroleum science and engineering, 57 (2007) 152–165.

[24] R.A. Ettinger and C.J. Radke, Influence of Texture on steady Foam flow in Berea sandstone, Society of petroleum engineering (1992).

[25] S.S. Marsden, J.P. Eerligh, R.A. Albrecht, A. David (Eds.), Use of Foam in Petroleum Operations. 7th World Petroleum Congress, 2-9 April, Mexico City, Mexico (1967).

[26] F. Friedmann, J.A. Jensen (Eds.), Some Parameters Influencing the Formation and Propagation of Foams in Porous Media. SPE California Regional Meeting. Oakland, California. 2-4 Avril, 1986.

[27] T.C. Ransohoff, C.J. Radke, Mechanisms of Foam Generation in Glass-Bead Packs, SPE Reservoir Engineering 3 (1988) 573–585.

[28] O. Gassara, Modélisation des écoulements de mousse dans les milieux poreux en récupération assistée du pétrole. Ph.D. Dissertation, 2017.

[29] Schramm Laurier L., Foams: Fundamentals and Applications in the Petroleum Industry, American Chemical Society, Washington, DC, 1994.

[30] R. Liontas, K. Ma, G.J. Hirasaki, S.L. Biswal, Neighbor-induced bubble pinch-off: Novel mechanisms of in situ foam generation in microfluidic channels, Soft matter 9 (2013) 10971.

[31] K.T. Chambers, Pore-level Basics for Modeling Foam Flow in Porous Media with Randomly Connected Pore Throats and Bodies. Ph.D. Dissertation, University of California, Berkeley, 1984.

[32] S.I. Kam, W.R. Rossen, A Model for Foam Generation in Homogeneous Media, in: Society of Petroleum Engineers, 2002.

[33] L. Cui, Application of Foam for Mobility Control in Enhanced Oil Recovery (EOR) Process. Ph.D. Dissertation, Rice University, 2014.

[34] Hirasaki G. J., The Steam-Foam Process, J. Pet. Technol. 41 (1989) 449.

[35] M. Chen, Y.C. Yortsos, W.R. Rossen, Pore-network study of the mechanisms of foam generation in porous media, Physical review. E, Statistical, nonlinear, and soft matter physics 73 (2006) 36304.

[36] A.S. Aronson, V. Bergeron, M.E. Fagan, C.J. Radke, The influence of disjoining pressure on foam stability and flow in porous media, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 83 (1994) 109–120.

[37] V. Bergeron, C.J. Radke, Equilibrium measurements of oscillatory disjoining pressures in aqueous foam films, Langmuir 8 (1992) 3020–3026.

[38] G. Singh, G.J. Hirasaki, C.A. Miller, Dynamics of foam films in constricted pores, AIChE J. 43 (1997) 3241–3252.

[39] A.I. JIMENEZ, C.J. Radke, Dynamic stability of foam lamellae flowing through a periodically constricted pore, ACS SYMPOSIUM SERIES 396 (1989) 460–479.

[40] K.G. Kornev, A.V. Neimark, A.N. Rozhkov, Foam in porous media: thermodynamic and hydrodynamic peculiarities, Advances in colloid and interface science 82 (1999) 127–187.

[41] R. Farajzadeh, R.M. Muruganathan, W.R. Rossen, R. Krastev, Effect of gas type on foam film permeability and its implications for foam flow in porous media, Advances in colloid and interface science 168 (2011) 71–78.

[42] Quoc P. Nguyen, Peter K. Currie, Marten Buijse, Pacelli L.J. Zitha, Mapping of foam mobility in porous media. Journal of petroleum science and engineering 58 (2007) 119–132.

[43] Mingming Lv, Shuzhong Wang, Zefeng Jing, Ming Luo, Studies on Foam Flow in the Porous Media in the Last Decade A Review, Advanced Materials Research 616-618 (2013) 257–262.

[44] N.D. Denkov, Mechanisms of foam destruction by oil-based antifoams, Langmuir the ACS journal of surfaces and colloids 20 (2004) 9463–9505.

[45] A. Andrianov, R. Farajzadeh, M. Mahmoodi Nick, M. Talanana, P. L. J. Zitha, Immiscible Foam for Enhancing Oil Recovery: Bulk and Porous Media Experiments, Ind. Eng. Chem. Res. 51 (2012) 2214–2226.

[46] S.I. Chou (Ed.), Conditions for Generating Foam in Porous Media. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Dallas, Texas. 6-9 October, Society of Petroleum Engineers, 1991.

[47] P. Persoff, C.J. Radke, K. Pruess, S.M. Benson, P.A. Witherspoon, A Laboratory Investigation of Foam Flow in Sandstone at Elevated Pressure, SPE-18781-PA (1991).

[48] W.T. Osterloh and M.J. Jante Jr., Effects of Gas and Liquid Velocity on Steady-State Foam Flow at High Temperature, Society of petroleum engineering (1992).

[49] M. Simjoo, Q.P. Nguyen, Zitha, P. L. J., Rheological Transition during Foam Flow in Porous Media, Ind. Eng. Chem. Res. 51 (2012) 10225–10231.

[50] O.G. Apaydin, H. Bertin, L.M. Castanier, A.R. Kovscek, An Experimental Investigation of Foam Flow in Homogeneous and Heterogeneous Porous Media. SUPRI TR – 112 Report. Stanford University, 1999.

[51] Q.P. Nguyen, Dynamics of foam in porous media. Ph.D. Dissertation. TUDelft, Netherlands. 2004.

[52] F.R. Wassmuth, K.A. Green, L. Randall, Details of In situ Foam Propagation Exposed With Magnetic Resonance Imaging, (2001), SPE-71300-PA.

[53] Zitha, Pacelli L. J., Q.P. Nguyen, P.K. Currie (Eds.), Effect of Flow Velocity and Rock Layering on Foam Flow: an X-ray Computed Tomography Study. SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition. Jakarata, Indonesia. 9-11 september, 2003.

[54] Q.P. Nguyen, P.K. Currie, Zitha, Pacelli L. J. (Eds.), Determination of Foam Induced Fluid Partitioning in Porous Media using X-ray Computed Tomography. International Symposium on Oil Field Chemistry. Houston, Texas. 5-7 February, 2003.

[55] W.R. Rossen, P.A. Gauglitz, Percolation theory of creation and mobilization of foams in porous media, AIChE J. 36 (1990) 1176–1188.

[56] D. Tanzil, G.J. Hirasaki, C.A. Miller (Eds.), Conditions for Foam Generation in Homogeneous Porous Media. SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium. Tulsa, Oklahoma. 13-17 April, Society of Petroleum Engineers, 2002.

[57] W.R. Rossen, Theories of Foam Mobilization Pressure Gradient. SPE Enhanced Oil Recovery Symposium, 16-21 April, Tulsa, Oklahoma, 1990b.

[58] P. Gauglitz, F. Friedmann, Kam, S.I.c d, W. Rossen, Foam generation in homogeneous porous media, Chemical Engineering Science 57 (2002) 4037–4052.

[59] J.M. Alvarez, H.J. Rivas, W.R. Rossen (Eds.), Unified Model for Steady-State Foam Behavior at High and Low Foam Qualities. SPE Annual technical conference and exhibition. Houston, Texas. 3-6 October, 1999.

[60] Z. I. Khatib, G. J. Hirasaki, A. H. Falls, Effects of Capillary Pressure on Coalescence and Phase Mobilities in Foams Flowing Through Porous Media, Society of petroleum engineering (1988).

[61] R. Farajzadeh, M. Lotfollahi, A.A. Eftekhari, W.R. Rossen, G.J.H. Hirasaki, Effect of Permeability on Implicit-Texture Foam Model Parameters and the Limiting Capillary Pressure, Energy Fuels 29 (2015) 3011–3018.

[62] S.Y. Baghdikian, L.L. Handy, Transient behavior of simultaneous flow of gas and surfactant solution in consolidated porous media. Report. University of Southern California, Los Angeles, CA (United States), 1991.

[63] A.R. Kovscek, Q. Chen, M. Gerritsen, Modeling Foam Displacement With the Local-Equilibrium Approximation: Theory and Experimental Verification, SPE-116735-PA (2010).

[64] W. de Vries, Rheology of Gas/Water Foam in the Quality Range Relevant to Steam Foam, SPE Reservoir Eng (1990).

[65] E. Ashoori, D. Marchesin, W.R. Rossen, Dynamic foam behavior in the entrance region of a porous medium, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 377 (2011) 217–227.

[66] Timothy J. Myers†, and Clayton J. Radke*, Transient Foam Displacement in the Presence of Residual Oil: Experiment and Simulation Using a Population-Balance Model, Ind. Eng. Chem. Res. 39 (2000) 2725–2741.

[67] G.-Q. Tang, A.R. Kovscek, Trapped Gas Fraction During Steady-State Foam Flow, Transp Porous Med 65 (2006) 287–307.

[68] K.R. Kibodeaux, S.C. Zeilinger, W.R. Rossen, Sensitivity Study of Foam Diversion Processes for Matrix Acidization. SPE Annual Technical Conference and Exhibition, 25-28 September, New Orleans, Louisiana, 1994.

[69] H.O. Lee, J.P. Heller, A. Hoefer, Change in Apparent Viscosity of CO2 Foam With Rock Permeability, SPE Reservoir Engineering 6 (1991) 421–428.

[70] H.J.Bertin, O.G.Apaydin, L.M.Castanier, A.R. Kovsceck, Foam Flow in Heterogeneous Porous Media: Effect of Cross Flow, Society of petroleum engineering (1999).

[71] A. R. KOVSCEK and H. J. BERTIN, Foam Mobility in Heterogeneous Porous Media (II: Experimental Observations), Transport in porous media (2003).

[72] R. Farajzadeh, A. Andrianov, H. Bruining, Zitha, Pacelli L. J., Comparative Study of CO 2 and N 2 Foams in Porous Media at Low and High Pressure−Temperatures, Ind. Eng. Chem. Res. 48 (2009) 4542–4552.

[73] Yongchao Zeng, Rouhi Farajzadeh, Ali Akbar Eftekhari, Sebastien Vincent-Bonnieu, Aarthi Muthuswamy, William R. Rossen, George J. Hirasaki, Sibani L. Biswal, Role of Gas Type on Foam Transport in Porous Media. Langmuir (2016).

[74] S.A. Jones, G. Laskaris, S. Vincent-Bonnieu, R. Farajzadeh, W.R. Rossen, Surfactant Effect On Foam: From Core Flood Experiments To Implicit-Texture Foam-Model Parameters, in: Society of Petroleum Engineers, 2016, p. 15.

[75] Kun Ma, Guangwei Ren, Khalid Mateen, Danielle Morel, and Philippe Cordelier, Modeling Techniques for Foam Flow in Porous Media, Society of petroleum engineering (2015).

[76] O. Gassara, F. Douarche, B. Braconnier, B. Bourbiaux, Calibrating and interpreting implicit-texture models of foam flow through porous media of different permeabilities. Journal of petroleum science and engineering 159 (2017) 588–602.

[77] O. Gassara, F. Douarche, B. Braconnier, B. Bourbiaux, Equivalence Between Semi-empirical and Population-Balance Foam Models, Transp Porous Med 120 (2017) 473–493.

[78] F.P. Bretherton, The motion of long bubbles in tubes, Journal of Fluid Mechanics 10 (1961) 166–188.

[79] A.H. Falls, G.J. Hirasaki, T.W. Patzek, D.A. Gauglitz, D.D. Miller, T. Ratulowski, Development of a Mechanistic Foam Simulator: The Population Balance and Generation by Snap-Off, SPE-14961-PA (1988).

[80] A.R. Kovscek, W.P. Tadeusz, C.J. Radke, Mechanistic Foam Flow Simulation in Heterogeneous and Multidimensional Porous Media, SPE-39102-PA (1997).

[81] S.I. Kam, Q.P. Nguyen, Q. Li, W.R. Rossen, Dynamic Simulations With an Improved Model for Foam Generation, SPE Journal 12 (2007) 35–48.

[82] A.R. Kovscek, H.J. Bertin (Eds.), Estimation of Foam Mobility in Heterogeneous Porous Media I. SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium. Tulsa, Oklahoma. 13-17 April, 2002.

[83] H.J. Bertin, M.Y. Quintard, L.M. Castanier, Development of a Bubble-Population Correlation for Foam-Flow Modeling in Porous Media, SPE Journal 3 (1998) 356–362.

[84] Géraud Baudouin, Jones Siân A., Cantat Isabelle, Dollet Benjamin, Méheust Yves, The flow of a foam in a two-dimensional porous medium, Water Resources Research 52 (2016) 773–790.

[85] B.H. Nahid, Non-Darcy flow of gas through porous media in the presence of surface active agents. Ph.D. Dissertation., United States, 1971.

[86] F. Friedmann, W.H. Chen, P.A. Gauglitz, Experimental and Simulation Study of High-Temperature Foam Displacement in Porous Media, SPE-17357-PA 6 (1991).

[87] S.A. Jones, N. Getrouw, S. Vincent-Bonnieu, Foam flow in a model porous medium: II. the effect of trapped gas, Soft matter 14 (2018) 3497–3503.

[88] J. Banhart, Advanced tomographic methods in materials research and engineering, Oxford University Press, Oxford, New York, 2008.

[89] S. Akin, A.R. Kovscek, Computed tomography in petroleum engineering research, Geological Society, London, Special Publications 215 (2003) 23–38.

[90] S. Siddiqui, M.R.H. Sarker, Trends in CT-Scanning of Reservoir Rocks, in: Khalid A. Alshibli, Allen H. Reed (Ed.), Advances in Computed Tomography for Geomaterials, Wiley-Blackwell, 2013, pp. 189–196.

[91] G.N. Hounsfield, Method of and apparatus for examining a body by radiation such as x or gamma radiation. Patent US 3919552, 1975.

[92] Mikel Morvan, Max Chabert, Manilal S. Dahanakaye, Enhanced foam stability applications and methods. Patent US8985206B2, 2012.

[93] Chabert Max, LACOMBE Emie, CUENCA Amandine, MORVAN Mikel (Eds.), Advanced screening tools for enhanced oil recovery foaming formulations. Royal Society of Chemistry. Chemistry in the oil industry XIII. Manchester, 2013.

[94] D.D. Huang, A. Nikolov, D.T. Wasan, Foams: Basic properties with application to porous media, Langmuir 2 (1986) 672–677.

[95] K.T. Chambers, C.J. Radke, Micromodel foam flow study, US Department of Energy, University of California, Berkeley, 1990.

[96] B. Le NEINDRE, Tensions superficielles et interfaciales. Techniques de l'ingénieur (1993).

[97] S. Kahrobaei, S. Vincent-Bonnieu, R. Farajzadeh, Experimental Study of Hysteresis behavior of Foam Generation in Porous Media, Scientific Reports 7 (2017) 8986.

[98] A.R. Kovscek, D.C. Tretheway, P. Persoff, C.J. Radke, Foam flow through a transparent rough-walled rock fracture, JOURNAL OF PETROLEUM SCIENCE AND ENGINEERING 13 (1995) 75–86.

[99] O. M'barki, K. Ma, G. Ren, K. Mateen, G. Bourdarot, D.C. Morel, Q.P. Nguyen, Repeatable Steady-State Foam Experimental Data and Investigations of Foam Hysteresis in a Sand Pack. SPE Annual Technical Conference and Exhibition, 9-11 October, San Antonio, Texas, USA, (2017).

[100] M. Simjoo, Y. Dong, A. Andrianov, M. Talanana, P.L. Zitha, Novel Insight Into Foam Mobility Control. International Petroleum Technology Conference, 15-17 November, Bangkok, Thailand, SPE-163092-PA, 2011.

[101] S.A. Jones, B. Dollet, Y. Méheust, S.J. Cox, I. Cantat, Structure-dependent mobility of a dry aqueous foam flowing along two parallel channels, Physics of Fluids 25 (2013) 63101.

[102] S.A. Jones, N. Getrouw, S. Vincent-Bonnieu, The effect of trapped gas on foam flow in a model porous medium, IOR NORWAY 2017 - 19th European Symposium on Improved Oil Recovery: Sustainable IOR in a Low Oil Price World (2017).

[103] W.R. Rossen, M.W. Wang, Modeling Foams for Acid Diversion, SPE-56396-PA (1999).

[104] K.R. Kibodeaux, W.R. Rossen, Coreflood Study of Surfactant-Alternating-Gas Foam Processes: Implications for Field Design, in: Society of Petroleum Engineers, 1997.

[105] Q. Xu, W.R. Rossen, Experimental Study of Gas Injection in a Surfactant-Alternating-Gas, SPE-84183-PA (2004).

[106] Z.H. Zhou, W.R. Rossen, Applying Fractional-Flow Theory to Foams for Diversion in Matrix Acidization, SPE-24660-PA (1994).

[107] B. Géraud, Y. Méheust, I. Cantat, B. Dollet, Lamella Division in a Foam Flowing through a Two-Dimensional Porous Medium: A Model Fragmentation Process, Physical review letters 118 (2017) 98003.

[108] L. Auvray, A. Brûlet, Diffusion de neutrons aux petits angles appliquée aux études d'interfaces et de systèmes confinés, JDN 12 (2007) 179–205.

[109] R. Knott, Review of the SANS toolbox, Neutron News 20 (2009) 34.

[110] F. Cousin, M. Ceretti, W. Paulus, M.-H. Mathon, C. Ritter, Small angle neutron scattering, EPJ Web of Conferences 104 (2015) 1004.

[111] Sung-Min Choi, SANS Experimental Methods: Neutron Small Angle Scattering and Reflectometry from Submicron Structures, 2000.

[112] M. Valero, I. Grillo, C.A. Dreiss, Rupture of pluronic micelles by di-methylated β-cyclodextrin is not due to polypseudorotaxane formation, The journal of physical chemistry. B 116 (2012) 1273–1281.

[113] B. Cabane, R. Duplessix, T. Zemb, High resolution neutron scattering on ionic surfactant micelles: Sds in water, J. Phys. France 46 (1985) 2161–2178.

[114] D. Espinat, Application of light, X-ray and neutron diffusion techniques to the study of colloidal systems. Part one: theoretical description of three techniques, Revue - Institut Francais du Petrole 45 (1990) 775–820.

[115] I. Grillo, Small-Angle Neutron Scattering and Applications in Soft Condensed Matter, Soft Matter Characterization (2008).

[116] M. Doucet et al. SasView Version 4.1.2, Zenodo, 10.5281/zenodo.825675, Sas View 4.1.2, 2017.

[117] M.A.V. Axelos, F. Boué, Foams As Viewed by Small-Angle Neutron Scattering, Langmuir 19 (2003) 6598–6604.

[118] A. Mikhailovskaya, L. Zhang, F. Cousin, F. Boué, P. Yazhgur, F. Muller, C. Gay, A. Salonen, Probing foam with neutrons, Advances in colloid and interface science 247 (2017) 444–453.

[119] J. Etrillard, M.A.V. Axelos, I. Cantat, F. Artzner, A. Renault, T. Weiss, R. Delannay, F. Boue, In situ investigations on organic foam films using neutron and synchrotron radiation, Langmuir the ACS journal of surfaces and colloids 21 (2005) 2229–2234.

[120] C. Micheau, Tensioactif carboxylique polyéthoxylé pour la flottation ionique: Étude fondamentale de la solution à la mousse. Ph.D. Dissertation, 2013.

[121] W.M. Haynes, D.R. Lide (Eds.), CRC handbook of chemistry and physics: A ready-reference book of chemical and physical data / 2011-2012, 92nd ed., CRC Press, Boca Raton (Fla.), London, New York, 2011.

[122] C.J. Jafta, A. Petzold, S. Risse, D. Clemens, D. Wallacher, G. Goerigk, M. Ballauff, Correlating pore size and shape to local disorder in microporous carbon: A combined small angle neutron and X-ray scattering study, Carbon 123 (2017) 440–447.

[123] Z. Mileeva, D.K. Ross, D. Wilkinson, S.M. King, T.A. Ryan, H. Sharrock, The use of small angle neutron scattering with contrast matching and variable adsorbate partial pressures in the study of porosity in activated carbons, Carbon 50 (2012) 5062–5075.

[124] R. Mhanna, A.R. Abdel Hamid, S. Dutta, R. Lefort, L. Noirez, B. Frick, D. Morineau, More room for microphase separation: An extended study on binary liquids confined in SBA-15 cylindrical pores, The Journal of chemical physics 146 (2017) 24501.

[125] C.G. Lopez, T. Watanabe, A. Martel, L. Porcar, J.T. Cabral, Microfluidic-SANS: flow processing of complex fluids, Scientific Reports 5 (2015) 7727 EP -.

[126] M. Adamo, A.S. Poulos, R.M. Miller, C.G. Lopez, A. Martel, L. Porcar, J.T. Cabral, Rapid contrast matching by microfluidic SANS, Lab on a chip 17 (2017) 1559–1569.

[127] Emmanuel Terriac, Janine Emile, Monique A.V. Axelos, Isabelle Grillo, Florian Meneau, François Boué, Characterization of bamboo foam films by neutron and X-ray experiments, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 309 (2007) 112–116.

[128] M. Bergström, J. Skov Pedersen, Structure of pure SDS and DTAB micelles in brine determined by small-angle neutron scattering (SANS), Phys. Chem. 1 (1999) 4437–4446.

[129] B. Hammouda, Temperature Effect on the Nanostructure of SDS Micelles in Water, Journal of research of the National Institute of Standards and Technology 118 (2013) 151–167.

[130] P.C. CARMAN, Fluid Flow through Granular Beds, Trans. Inst. Chem. Eng. 15 (1937) 150–166.

[131] CEA, SPECTROMETRE DE DIFFUSION AUX PETITS ANGLES PAXY, 1999, http://www-llb.cea.fr/spectros/spectro/paxy.html, accessed 14 November 2018.

[132] J. Morris, U. Olsson, H. Wennerström, Homogeneous Nucleation in a Monodisperse Oil-in-Water Emulsion, Langmuir 13 (1997) 606–608.

[133] Huseyin Onur Balan, Dynamics of foam mobility in porous media. Ph.D. Dissertation., 2013.

[134] J. Penfold, R.K. Thomas, Neutron reflectivity and small angle neutron scattering: An introduction and perspective on recent progress, Current Opinion in Colloid & Interface Science 19 (2014) 198–206.

[135] T. Zemb, P. Charpin, Micellar structure from comparison of X-ray and neutron small-angle scattering, J. Phys. France 46 (1985) 249–256.

[136] S. Youssef, E. Rosenberg, N. Gland, S. Bekri, O. Vizika (Eds.), Quantitative 3D Characterisation of the pore space of real rocks: Improved µ-CT resolution and pore extraction methodology, 2007.

[137] J. Gostick, M. Aghighi, J. Hinebaugh, T. Tranter, M. A. Hoeh, H. Day, B. Spellacy, M. H. Sharqawy, A. Bazylak, A. Burns, W. Lehnert, A. Putz, OpenPNM: A Pore Network Modeling Package, Computing in Science Engineering 18 (2016) 60–74.

[138] Q. Xiong, T.G. Baychev, A.P. Jivkov, Review of pore network modelling of porous media: Experimental characterisations, network constructions and applications to reactive transport, Journal of contaminant hydrology 192 (2016) 101–117.

[139] C. Raufaste, B. Dollet, K. Mader, S. Santucci, R. Mokso, Three-dimensional foam flow resolved by fast X-ray tomographic microscopy, EPL 111 (2015) 38004.

[140] J. Lambert, I. Cantat, R. Delannay, A. Renault, F. Graner, J.A. Glazier, I. Veretennikov, P. Cloetens, Extraction of relevant physical parameters from 3D images of foams obtained by X-ray tomography, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 263 (2005) 295–302.

[141] A.J. Meagher, M. Mukherjee, D. Weaire, S. Hutzler, J. Banhart, F. Garcia-Moreno, Analysis of the internal structure of monodisperse liquid foams by X-ray tomography, Soft matter 7 (2011) 9881.

[142] J. Lambert, I. Cantat, R. Delannay, R. Mokso, P. Cloetens, J.A. Glazier, F. Graner, Experimental Growth Law for Bubbles in a Moderately “Wet” 3D Liquid Foam, Phys. Rev. Lett. 99 (2007) 58304.

[143] A. Mirone, E. Brun, E. Gouillart, P. Tafforeau, J. Kieffer, The PyHST2 hybrid distributed code for high speed tomographic reconstruction with iterative reconstruction and a priori knowledge capabilities, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 324 (2014) 41–48.

[144] C. Tomasi, R. Manduchi, Bilateral filtering for gray and color images, in: Sixth International Conference on Computer Vision (IEEE Cat. No.98CH36271), 1998, pp. 839–846.

[145] S. Beucher, F. Meyer, The morphological approach to segmentation: The watershed transformation, in: Mathematical Morphology in Image Processing, (2010), 433–481.

[146] O.S. Owete, W.E. Brigham, Flow Behavior of Foam: A Porous Micromodel Study, SPE-11349-PA (1987).

[147] R.F. Mast, Microscopic Behavior of Foam in Porous Media, in: Society of Petroleum Engineers, 1972, p. 12.

[148] A.I. Shirley, Foam Formation in Porous Media, in: D.H. Smith (Ed.), Surfactant-based mobility control: Progress in miscible-flood enhanced oil recovery, American Chemical Society, Washington, DC, 1988, pp. 234–257.

[149] J. Erik Hanssen, Foam as a gas-blocking agent in petroleum reservoirs II: Mechanisms of gas blockage by foam, JOURNAL OF PETROLEUM SCIENCE AND ENGINEERING 10 (1993) 135–156.

[150] A.R. Kovscek, T.W. Patzek, C.J. Radke, Mechanistic Prediction of Foam Displacement in Multidimensions: A Population Balance Approach, in: Society of Petroleum Engineers, 1994, p. 15.

[151] Krister Fontell, Liquid Crystallinity in Lipid-Water Systems, Molecular Crystals and Liquid Crystals 63 (1981) 59–82.

[152] D. Bendedouch, S.H. Chen, W.C. Koehler, Structure of ionic micelles from small angle neutron scattering, The Journal of Physical Chemistry 87 (1983) 153–159.

[153] S. Borbély, L. Cser, S. Vass, Y.M. Ostanevich, Small-angle neutron scattering study of sodium alkyl sulfate mixed micelles, Journal of Applied Crystallography 24 (1991) 747–752.

[154] Paul W.J.Glover, Formation Evaluation. MSc Course Notes. Chapter 5: Porosity, University of Aberdeen, UK, 2012.

Résumé

L'utilisation de la mousse en récupération assistée du pétrole (*Enhanced Oil Recovery*, EOR) présente un avantage indéniable par rapport à l'injection du gaz seul pour pallier les problèmes de ségrégation gravitaire et de digitations visqueuses. Son utilisation systématique en ingénierie du réservoir nécessite des connaissances plus approfondies sur son comportement en milieu poreux. La littérature montre deux types d'approches expérimentales basées soit sur des études pétrophysiques effectuées sur des systèmes poreux 3D et basées sur des mesures de pressions intégrées sur l'ensemble du milieu poreux, soit sur des études micro-fluidiques qui permettent une visualisation directe de l'écoulement mais qui sont limitées à des systèmes modèles dans des géométries à 1 ou 2 dimensions. L'objectif de cette thèse est de faire le pont entre ces deux approches. La stratégie proposée consiste à caractériser *in situ* l'écoulement de la mousse dans des milieux poreux 3D à différentes échelles, en utilisant des techniques complémentaires permettant d'accéder à une large gamme de résolutions spatiale et temporelle. Un environnement instrumenté donnant accès aux mesures pétro-physiques classiques a été développé puis couplé à différentes cellules d'observation conçues spécifiquement pour chaque instrument de caractérisation.

Dans un premier temps, un scanner X a été utilisé pour décrire et visualiser les écoulements de la mousse à l'échelle de la carotte. La rhéologie de la mousse à cette échelle a pu être étudiée en fonction des conditions d'injections comme la vitesse interstitielle du gaz et la qualité de mousse. Dans un deuxième temps, la technique de diffusion des neutrons aux petits angles (SANS) a permis de sonder la texture de la mousse en écoulement sur trois ordres de grandeurs en taille. Des informations in situ sur la texture de la mousse en écoulement (taille et densité des bulles et des lamelles) ont pu être mesurées pour différentes qualités de mousse puis en fonction de la distance au point d'injection. Une comparaison avec les caractéristiques géométriques du milieu poreux a également été effectuée. Dans un troisième temps, la micro-tomographie X rapide haute résolution sur Synchrotron a été utilisée pour visualiser la mousse en écoulement à l'échelle du pore. Cette technique a permis de confirmer *de visu* certaines caractéristiques de la mousse mesurées par SANS et de décrire en sus les effets d'intermittence du piégeage de la mousse. Cette étude constitue une étape importante de la caractérisation multi-échelle de l'écoulement des mousses en milieux poreux 3D et apporte des éléments de réponse à certaines hypothèses admises.

Mots Clés : Mousse, Milieu poreux, Texture, Bulle, Lamelle, Écoulements polyphasiques, Tomographie, SANS, 3D, Neutrons, Rayons X, Mousse (chimie) -- Propriétés physico-chimiques, Récupération assistée du pétrole.

Abstract

Foam has long been used as a mobility control agent in Enhanced Oil Recovery (EOR) processes to enhance sweep efficiency and overcome gravity segregation, viscous fingering and gas channeling, which are gas-related problems when the latter is injected alone in the reservoir. However, the systematic use of foam in reservoir engineering requires more in-depth knowledge of its dynamics in porous media. The literature shows two types of experimental approaches based either on petrophysical studies carried out on 3D porous systems and based on pressure measurements, or on microfluidic studies that allow direct visualization of foam flow but are limited to 1D or 2D model systems. The research investigated in this thesis aims to bridge the gap between these two approaches. The proposed strategy is to characterize *in situ* the foam flow in 3D porous media with techniques providing a wide range of temporal and spatial resolutions. A coreflood setup giving access to classical petro-physical measurements was developed and then coupled to different observation cells designed specifically for each characterization instrument.

First, an X-ray CT scanner was used to describe and visualize the foam flow at the core scale. The rheological behavior of foam on this scale was studied as a function of the injection conditions such as gas velocity and foam quality. Secondly, Small Angle Neutron Scattering (SANS) was used to probe the foam structure *in situ* during the flow, on a wide length scale, up to three orders of magnitude in size. *In situ* foam texture (size and density of bubbles and lamellae) was measured for different foam qualities and at different propagation distances from the injection point. A comparison to the geometric characteristics of the porous medium was also realized. Thirdly, High Resolution Fast X-ray Micro-tomography on a Synchrotron was used to visualize the foam flow at the pore scale. This allowed to confirm visually some foam characteristics measured with SANS and to investigate on local intermittent gas trapping and mobilization effects. This study is an important step in the multi-scale characterization of foam flow in 3D porous media and provides some answers to certain generally accepted assumptions.

Key words: foam, porous media, bubble, texture, lamella, multiphase flow, tomography, SANS, 3D, Neutrons, X rays, Enhanced oil recovery.