



HAL
open science

Etude microfluidique du colmatage d'un milieu poreux modèle par un écoulement de suspension

Youness Soumane

► **To cite this version:**

Youness Soumane. Etude microfluidique du colmatage d'un milieu poreux modèle par un écoulement de suspension. Autre. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2021. Français. NNT : 2021GRALI113 . tel-03615550

HAL Id: tel-03615550

<https://theses.hal.science/tel-03615550v1>

Submitted on 21 Mar 2022

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

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

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : MEP : Mécanique des fluides Energétique, Procédés

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Youness SOUMANE

Thèse dirigée par **Hugues BODIGUEL**, Professeur, Université Grenoble Alpes
et codirigée par **Antoine NAILLON**, Université Grenoble Alpes

préparée au sein du **Laboratoire Laboratoire Rhéologie et Procédés**
dans l'**École Doctorale I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production**

Étude microfluidique du colmatage d'un milieu poreux modèle par un écoulement de suspension

Microfluidic study of the clogging of a model porous medium by a flow of suspension

Thèse soutenue publiquement le **17 décembre 2021**,
devant le jury composé de :

Monsieur Hugues BODIGUEL

PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université Grenoble Alpes,
Directeur de thèse

Monsieur Philippe COUSSOT

INGENIEUR DOCTEUR, Université Paris-Est, Rapporteur

Monsieur Patrice BACCHIN

PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université Paul Sabatier Toulouse III, Rapporteur

Monsieur Gwennou COUPIER

CHARGE DE RECHERCHE, CNRS, Examinateur

Monsieur Laurent OXARANGO

PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université Grenoble Alpes,
Président

Madame Emilie DRESSAIRE

PROFESSEUR ASSISTANT, University of California, Examinatrice



Abstract

When suspensions of solid particles flow through a porous medium, they can accumulate in certain regions of the flow, forming plugs and leading to clogging. This problem has a negative impact on many applications as it reduces the permeability of the media. Because of its complexity, most recent studies focus on the pore scale through pore models and structures that mimic a porous medium such as simple constrictions. For this project, we tried to describe and understand this phenomenon at a larger scale (porous medium scale). To do so, we have chosen a micromodel approach in which two-dimensional model porous media are fabricated using microfluidic techniques. Thanks to direct observations and image analysis, we were able to follow the fluid trajectories, define different clogging regimes that vary according to the conditions and injection parameters, typically the injection rate, the size and the mass fraction of the particles. In a second phase of the project, we studied a strategy to limit or delay the accumulation of particles, which consists in disturbing the flow by applying periodic pressure signals, and to evaluate the effect of the variation of the characteristics of these signals (frequency, amplitude) on the different clogging regimes observed. The objective of the thesis is to see to how will these clogging mechanisms known at the pore scale extend to a larger scale. In our case we have limited ourselves to geometrical mechanisms (bridging and sieving) which do not involve particle/particle or particle/wall interactions. And we tried to study, thanks to bidisperse suspensions, how the presence of a too small quantity ($\leq 1\%$) of particles of size equivalent to the size of a pore can change totally the clogging regime.

Résumé

Lorsque des suspensions de particules solides s'écoulent dans un milieu poreux, elles peuvent s'accumuler dans certaines régions de l'écoulement, former des bouchons et conduire à du colmatage. Ce problème influe négativement sur plusieurs applications vu qu'il réduit la perméabilité des milieux. À cause de son caractère assez complexe, la plupart des études récentes s'intéressent à l'échelle du pore à travers des modèles de pores et des structures imitant un support poreux tels que des simples constriction. Pour ce projet, nous avons essayé de décrire et de comprendre ce phénomène à une échelle plus large (échelle du milieu poreux). Pour ce faire nous avons choisi une approche du type micromodèle dans le cadre de laquelle des milieux poreux modèles à deux dimensions sont fabriqués en utilisant des techniques microfluidiques. Grâce à des observations directes et à de l'analyse d'image, nous avons pu suivre les trajectoires des fluides, définir différents régimes de colmatage qui varient suivant les conditions et les paramètres d'injection typiquement le débit d'injection, la taille et la fraction massique des particules. Dans une deuxième phase du projet, nous avons étudié une stratégie pour limiter ou retarder l'accumulation de particules, qui consiste à perturber l'écoulement en appliquant des signaux périodiques de pression, et évaluer l'effet de la variation des caractéristiques de ces signaux (fréquence, amplitude) sur les différents régimes de colmatage observés. L'objectif de la thèse est de voir à quel point les mécanismes de colmatage connus à l'échelle du pore peuvent-ils s'étendre à une échelle plus large . Dans notre cas nous nous sommes limités aux mécanismes géométriques (pontage et tamisage) qui ne font pas intervenir les interactions particule/particule ou particule/paroi. Et nous avons essayé d'étudier, grâce à des suspensions bidisperses, comment est ce que la présence d'une quantité trop faible ($\leq 1\%$) de particules de taille équivalente à la taille d'un pore peut changer totalement le régime de colmatage.

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein du Laboratoire Rhéologie et Procédés, sous la direction de Monsieur Hugues Bodiguel, Professeur des universités à l'Université Grenoble Alpes et le co-encadrement de Monsieur Antoine Naillon, Maître de conférence à l'Université Grenoble Alpes.

Je tiens à remercier très chaleureusement tout d'abord mes chers encadrants Hugues et Antoine pour leur encadrement de très haute qualité, leur sympathie, leur patience, leur implication, leur exigence, leur disponibilité et leur confiance. Je les remercie également de m'avoir apporté énormément de choses à travers les nombreux échanges et discussions intéressantes que nous avons eu et de m'avoir laissé l'opportunité de m'épanouir dans cette thèse. Je leur suis infiniment reconnaissant pour tout et je leur dis : 'Ce fut un grand plaisir de travailler avec vous!'.

Je tiens également à remercier tous les membres du jury pour avoir accepté de participer à ma soutenance de thèse et pour l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux, à savoir, Laurent OXARANGO, Gwennou COUPIER, Emilie Dressaire, Hugues BODIGUEL et surtout aux rapporteurs Philippe COUSSOT et Patrice BACCHIN pour avoir pris le temps d'évaluer le contenu de ce manuscrit.

De nombreux membres que ce soit du Laboratoire Interdisciplinaire de Physique (LiPhy Grenoble) ou du Laboratoire d'analyse et d'architecture des systèmes (LAAS de Toulouse) m'ont soutenu pendant la préparation de cette thèse. Parmi eux je tiens à remercier Danièle CENTANNI du LiPhy, et surtout Fabien MESNILGRETE et Pierre JOSEPH du LAAS pour l'aide qu'ils m'ont apporté dans la partie fabrication microfluidique.

Je remercie l'équipe technique et administrative du Laboratoire Rhéologie et Procédés : Nadia EL KISSI, Frédéric BOSSARD, François BERGEROT, Louise INFUSO, Sylvie GAROFALO, Hélène GAILLARD, Vincent VERDOT, Frédéric HUGENELL, Didier BLESES, Mohammed KARROUCH et Eric FAIVRE pour leur bonne humeur, leur gentillesse, leur accueil et leur professionnalisme.

Je veux également remercier tous les chercheurs du laboratoire : Yahya RHARBI, Nicolas HENGL, Komla AKO, Albert MAGNIN, Denis ROUX, Clément DE LOUBENS, Emeline TALENSIER, Stéphane BAUP, Nicolas GONDREXON pour leurs conseils, les discussions scientifiques que nous avons eu, les propositions des heures d'enseignement. Et je profite de l'occasion pour remercier l'équipe de l'UFR de chimie avec laquelle j'ai

travaillé dans le cadre des TP CFMC surtout Sébastien MARC et Isabelle PERNIN WETZEL.

Un grand merci à tous les doctorants, les postdoctorants, les contractuels et les stagiaires qui ont accompagné mon quotidien : Said, William, Mehdi, Ayoub, Alice, Essa, Massaad, Khadija, Adja, Mathilde, Ali, Haimeng, Mohamad, Diego, Moctar, Béa, Clément, Olivier, Xavier, Revaz, Faisal, Ana, Lydia, Emilie, Clémentine, Houssine, Téko, Rohan, Maxime, Mourad, Adriana, Kaili, Martial, Hugues. Merci pour tous ces moments inoubliables passés ensemble!

J'aimerais également adresser mes remerciements à tous mes amis qui m'ont accompagné tout au long de ces trois ans à Grenoble en dehors du labo : Ali, Ayoub, Abderahmane, Khalil, Si Ahmed, Emmanuel, Yassine, Redouane, Youssef, Phillipe, Essa, Abdeljalil, Abdessamiaa, Abdellah, Ali, Abdelhadi, Hassan, Rachid, Hicham, Hamed, Mouad, Abderrahim, Lotfi (Merci à ton âme pure Sidi ABDESSALAM).

Avant de finir, je veux remercier ma petite famille et ma grande famille qui m'ont toujours soutenu et sans lesquelles je n'aurais, sans aucun doute pas eu la force et la confiance d'arriver jusque là. Merci très très chers parents (Baba Abdellah et Mama Habiba), merci Hajoura, Khaoulita, Tala, Mamiya, Bahaj, Immi, Jeddi Said, Tata, Khadouja, Imran, Khali Mohammed, Rachid, Mustapha, Aami Ibrahim, Hachemi, Fatima, Khadija, Keltoum, Amina. Vous êtes vraiment extraordinaires et je me contenterai de vous dire tout simplement "Merci !" parce que je ne saurais en cas exprimer par des mots ce que je ressens envers vous.

Et comme il faut garder le meilleur pour la fin : Merci à Toi qui connais sûrement les secrets, mêmes les plus cachées. Toi qui possède les noms les plus beaux.

Table des matières

Abstract	3
Résumé	5
Remerciements	7
Introduction générale	13
1 L'état de l'art	17
1.1 Généralités sur les milieux poreux	18
1.1.1 Définition	18
1.1.2 Propriétés d'un milieu poreux	18
1.1.2.1 Porosité	19
1.1.2.2 Surface spécifique	20
1.1.2.3 Perméabilité	20
1.1.3 Milieu poreux modèle 2D	21
1.1.4 Écoulements dans un milieu poreux	23
1.2 Généralités sur les suspensions des particules	24
1.2.1 Définition	24
1.2.2 Nombres adimensionnels	25
1.2.3 Analyse adimensionnel	26
1.2.4 Discussion : forces mises en jeu	29
1.3 Colmatage de particules dans un milieu poreux	33
1.3.1 Colmatage à l'échelle macroscopique	33
1.3.2 Colmatage à l'échelle du pore	36
1.3.2.1 Tamisage	37
1.3.2.2 Pontage	39
1.3.2.3 Agrégation	43
1.3.3 Aperçu sur l'effet du débit	45
1.4 Problématique et cadre de l'étude	48

2	Matériels et méthodes	53
2.1	Fabrication des milieux poreux modèles	55
2.1.1	Définition du masque du dispositif	55
2.1.1.1	Génération des milieux poreux aléatoires	55
2.1.1.2	Canaux d'alimentation	56
2.1.1.3	Masque complet	57
2.1.2	Création du moule par photolithographie	57
2.1.3	Fabrication des puces microfluidiques en PDMS	59
2.2	Formulation et caractérisation de la suspension	60
2.2.1	Cahier des charges et principe de la mesure	60
2.2.2	Les particules	62
2.2.2.1	Caractéristiques des particules	62
2.2.2.2	Évaluation de la monodispersité des particules : quanti- fication du nombre de grosses particules	63
2.2.2.3	Processus de tamisage	64
2.2.3	Efficacité du processus de tamisage	65
2.2.4	Le fluide	67
2.2.4.1	Choix du fluide	67
2.2.4.2	Méthodologie de dosage	68
2.2.5	Rhéologie de la suspension	70
2.2.6	Tentative de mesures en lumière blanche	71
2.2.7	Mesure en microscopie à fluorescence	72
2.2.7.1	Principe de la microscopie à fluorescence	72
2.2.7.2	Marquage des particules en fluorescence	73
2.2.7.3	Marquage du fluide suspendant en fluorescence	76
2.3	Matériel expérimental et protocole d'injection	78
2.3.1	Dispositif expérimental	78
2.3.2	Expérience à débit imposé	79
2.3.3	Expérience à pression imposée	80
2.3.4	Mesure de débit	81
2.3.5	Mesure de pression	83
2.3.5.1	Capteur de pression	83
2.3.5.2	Estimation des pertes de charges	84
2.4	Validation du dispositif expérimental	85
2.4.1	Caractérisation du gonflement du dispositif en PDMS	85
2.4.2	Calcul de la perméabilité	88
2.4.3	Traitement et analyse d'image	90
2.4.3.1	Protocole	90
2.4.3.2	Extraction des résultats	94

2.4.4	Reproductibilité	95
2.5	Perspectives : vers une cartographie du champ de concentration	96
2.6	Conclusion	97
3	Article : Particle accumulation and clogging of a 2D model porous media by suspensions of non-Brownian hard spheres	99
3.1	Introduction	100
3.2	Materials and Methods	102
3.2.1	Micromodels	102
3.2.2	Suspension	102
3.2.3	Experimental procedure and image processing	104
3.3	Results and discussion	107
3.3.1	Clogging phase diagram	107
3.3.2	Particle accumulation	108
3.3.3	Cluster size	111
3.3.4	Cluster dynamics	113
3.3.5	Discussion	115
3.3.5.1	Clogging mechanism and percolation	115
3.3.5.2	Role of flow rate	116
3.3.5.3	Role of volume fraction and cluster dynamics	117
3.4	Conclusion	118
4	Écoulement sous signaux périodiques de pression	121
4.1	Écoulement à pression imposée	122
4.1.1	Comparaison entre écoulement à débit imposé et écoulement à pres- sion imposée	123
4.1.2	Diagramme de phase	123
4.1.2.1	Effet de la concentration	124
4.1.2.2	Effet de la pression	126
4.1.3	Signaux périodiques de pression d'injection : phénoménologie	129
4.1.4	Effet de la fréquence	131
4.1.4.1	Accumulation	131
4.1.4.2	Taille des clusters	135
4.1.5	Rôle de la déformabilité du milieu	139
4.1.6	Effet de l'amplitude	140
4.1.6.1	Accumulation	140
4.1.6.2	Taille des clusters	141
4.2	Conclusion et discussion	143

5 Colmatage par une suspension bidisperse	145
5.1 Caractérisation de la suspension	146
5.2 État du colmatage	147
5.3 Effet de la concentration et du débit	147
5.3.1 En terme d'accumulation	148
5.3.2 En terme de taille des clusters	152
5.3.3 En terme de centre de masse des clusters	153
5.4 Comparaison avec la suspension monodisperse	155
5.5 Conclusion et discussion	158
Conclusion	161
Table des figures	167
Liste des tableaux	181
Bibliographie	183

Introduction

Les écoulements de suspensions sont d'une grande importance dans notre vie de tous les jours même si nous ne nous rendons pas compte. Elles sous-entendent un transport d'une matière solide par une phase fluide. Ce transport peut avoir des impacts positifs, vu qu'il peut nous faciliter la vie sur plusieurs plans mais peut avoir également des conséquences désastreuses surtout lorsque les éléments transportés sont indésirables et que le processus de transport n'est pas maîtrisé. Dans ce cas la première chose qu'il faut chercher à faire c'est de comprendre comment le processus marche pour éviter les dégâts quand il y a des dégâts ou profiter au maximum de la situation quand ce transport joue à notre faveur. Maintenant si le transport de la matière solide par un fluide est effectué dans un milieu poreux le processus devient de plus en plus complexe et compliqué à comprendre vu qu'il faut prendre en compte à la fois le comportement des particules vis-à-vis d'autres particules, le fluide et les parois. Plusieurs applications font preuve de l'omniprésence des écoulements de suspensions à travers les milieux poreux autour de nous, par exemple : l'impression par jet d'encre, le traitement des eaux usées, la récupération du pétrole, les écoulements de globules rouges et le transport de sédiments etc .

Dans de nombreuses situations, ces écoulements peuvent être affectés par le colmatage, qui signifie l'ensemble des mécanismes interrompant le transport de particules dans des géométries confinées. Le colmatage d'un milieu poreux peut poser de gros problèmes. Par exemple, c'est l'obstacle majeur au développement des procédés de filtration membranaire en raison de la diminution de la perméabilité au cours du temps. Ce phénomène est très complexe car il implique des interactions physico-chimiques entre particules/particules, particules/fluide suspendant, et particules/paroi du milieu poreux. Il a été largement étudié au niveau macroscopique, par exemple en mesurant le taux de rétention des particules ou la dynamique de croissance d'un gâteau à l'entrée du milieu poreux lorsque la suspension le traverse. Mais récemment, les progrès de la microfabrication ont permis de fabriquer des modèles microfluidiques bidimensionnels et transparents de milieux poreux permettant d'étudier le colmatage à l'échelle des pores. De plus, le colmatage des pores peut être considéré comme la phase initiale de l'encrassement total d'un milieu poreux, avant la formation d'une couche de gâteau à son entrée. Ainsi, les études des phénomènes de colmatage menées à l'échelle locale avec des dispositifs microfluidiques sont une grande opportunité pour fournir des données ou des mécanismes qui peuvent

aider à interpréter les expériences macroscopiques. A ce jour, de nombreux progrès ont été réalisés grâce à la microfluidique pour étudier les phénomènes de colmatage dans les milieux poreux. Néanmoins, l'effet de l'aléa géométrique intrinsèque de la plupart des espaces poreux est encore inexploré. De plus, il y a un manque d'étude du colmatage dans le cas d'une suspension dense dans des milieux poreux modèles, probablement à cause des difficultés expérimentales pour caractériser l'écoulement et pour avoir un ensemble cohérent d'expériences, alors que des phénomènes intéressants ont été observés à une échelle de constriction comme l'auto-filtration et les écoulements oscillatoires de particules. Ainsi, le but du présent travail est d'étendre les résultats précédents au colmatage d'un micromodèle 2D désordonné pour un écoulement de suspension dense. Notre objectif est d'analyser l'effet des conditions d'écoulement et des propriétés de la suspension sur la dynamique du colmatage. L'étude se concentrera spécifiquement sur le mécanisme de colmatage dans un écoulement laminaire de particules non browniennes, sans inertie, non flottantes et non adhésives.

Dans le premier chapitre, nous passerons en revue les bases des milieux poreux et des écoulements des fluides en leur sein, des généralités sur les suspensions de particules, et l'état actuel des connaissances sur le colmatage des milieux poreux allant des premières études effectuées à l'échelle macroscopique jusqu'aux études récentes réalisées à l'échelle du pore qui se sont servies des outils microfluidiques pour identifier les principaux mécanismes de colmatage. Avant de clôturer le chapitre par la problématique à laquelle nous allons de répondre à travers ce travail.

Le deuxième chapitre est le chapitre des matériels et méthodes. Dans celui-ci, nous allons présenter les différents moyens mis-en-oeuvre pour l'élaboration d'un système expérimental et un protocole fiables pour notre étude. Nous aborderons la conception du milieu poreux modèle, les modes opératoires ayant servi dans la fabrication du dispositif micro-fluidique en question. Puis nous allons détailler la formulation et la caractérisation des fluides et des particules composant la suspension. Ensuite nous allons donner un aperçu sur les expériences réalisées, en terme de matériel utilisé, de protocole d'injection de la suspension et de mesure de grandeurs physiques (pression, débit) essentiels dans l'étude. Avant de clore sur la validation du dispositif expérimental, et la méthode adoptée pour le traitement d'images et l'extraction des résultats.

Dans le troisième chapitre, nous allons détailler les résultats de l'étude du colmatage sur notre milieu poreux modèle désordonné 2D, et nous allons définir le cadre dans lequel nous allons travailler en terme des mécanismes de colmatage mis en jeu dans notre cas, à savoir le colmatage géométrique (tamisage et pontage). Le premier aspect sera l'effet du rapport de taille des particule/ tailles des pores et son importance dans la définition des différents régimes de colmatage (régime de colmatage, régime intermédiaire et régime de non colmatage). Nous allons voir est-ce que les valeurs de ce rapport à l'échelle large correspondent bien aux valeurs de l'échelle du pore. Puis nous allons mettre un accent

sur l'effet de la fraction massique et l'effet du débit sur la dynamique et les régimes de colmatage en définissant des variables (accumulations, taille des clusters, mobilité, centre de masse des clusters) qui vont nous servir pour quantifier nos résultats.

Dans le quatrième chapitre, nous allons évaluer l'effet de la non-stationnarité de l'écoulement sur les différents régimes de colmatage. Et comment le fait de piloter cette non-stationnarité par des pulsations périodiques permet de réduire, de ralentir et d'éviter carrément le colmatage dans certains cas et selon les régimes de colmatage.

Dans le cinquième chapitre, nous allons étudier le colmatage en utilisant une suspension de particules bidisperses mais majoritairement monodisperse ($\geq 99\%$). Nous allons voir comment est ce qu'une valeur de moins de 1% de particules ayant une taille de l'ordre de la taille des pores peut complètement changer le régime de colmatage. Ensuite nous allons procéder à une comparaison entre le cas monodisperse et le cas bidisperse sur tous les aspects déjà étudiés et déduire leurs principales différences.

Pour clore, nous allons résumer dans le chapitre de conclusion les principaux résultats de cette thèse ainsi que les perspectives et les pistes que nous estimons intéressantes à creuser pour aller plus loin dans la compréhension du phénomène.

Chapitre 1

L'état de l'art

Sommaire

1.1 Généralités sur les milieux poreux	18
1.1.1 Définition	18
1.1.2 Propriétés d'un milieu poreux	18
1.1.2.1 Porosité	19
1.1.2.2 Surface spécifique	20
1.1.2.3 Perméabilité	20
1.1.3 Milieu poreux modèle 2D	21
1.1.4 Écoulements dans un milieu poreux	23
1.2 Généralités sur les suspensions des particules	24
1.2.1 Définition	24
1.2.2 Nombres adimensionnels	25
1.2.3 Analyse adimensionnel	26
1.2.4 Discussion : forces mises en jeu	29
1.3 Colmatage de particules dans un milieu poreux	33
1.3.1 Colmatage à l'échelle macroscopique	33
1.3.2 Colmatage à l'échelle du pore	36
1.3.2.1 Tamisage	37
1.3.2.2 Pontage	39
1.3.2.3 Agrégation	43
1.3.3 Aperçu sur l'effet du débit	45
1.4 Problématique et cadre de l'étude	48

Dans ce chapitre on introduit les principales composantes entrant en jeu dans le sujet de thèse, commençant par des généralités sur les milieux poreux et les écoulements des fluides en leur sein, puis on passe à une brève description des principales caractéristiques des suspensions ainsi que leur écoulement au sein des géométries simples, par la suite on donne un aperçu général sur le transport des particules dans les milieux poreux, ce qui nous emmène vers la problématique principale du colmatage dans les systèmes microfluidiques et surtout dans les milieux poreux et les principaux résultats scientifiques publiés jusqu'au jour d'aujourd'hui.

1.1 Généralités sur les milieux poreux

1.1.1 Définition

Un milieu poreux est un milieu ou un matériau se composant d'une structure solide et des espaces vides appelés pores. Ces derniers peuvent être connectés ou non, dispersés de manière régulière ou aléatoire et remplis partiellement ou totalement d'un ou plusieurs fluides, sous une ou plusieurs phases. Les milieux poreux peuvent être consolidés, comme une roche par exemple, ou non consolidés, comme un sable ou un empilement de billes. Ils sont présents partout autour de nous, dans la nature comme dans les systèmes industriels, et à partir d'une certaine échelle tout objet peut être considéré comme fissuré ou poreux. Plusieurs exemples dans plusieurs domaines peuvent être cités pour illustrer l'omniprésence des milieux poreux. À titre d'exemple :

En génie pétrolier : Une roche réservoir est un milieu poreux qui stocke du pétrole brut et du gaz naturel.(1.1a)

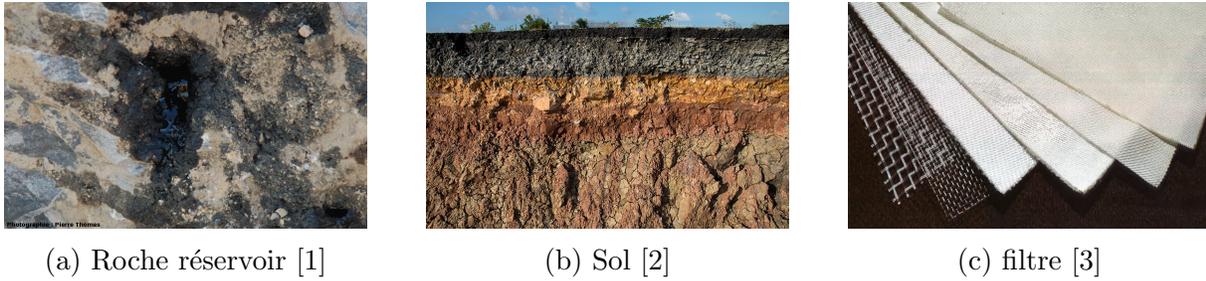
En science des sols : Le sol est un milieu poreux qui contient et transporte l'eau et les nutriments vers les plantes.(1.1b)

En génie chimique : Un filtre est un milieu poreux permettant de retenir des éléments indésirables.(1.1c)

...

1.1.2 Propriétés d'un milieu poreux

Un milieu poreux peut être caractérisé par une variété de propriétés géométriques.

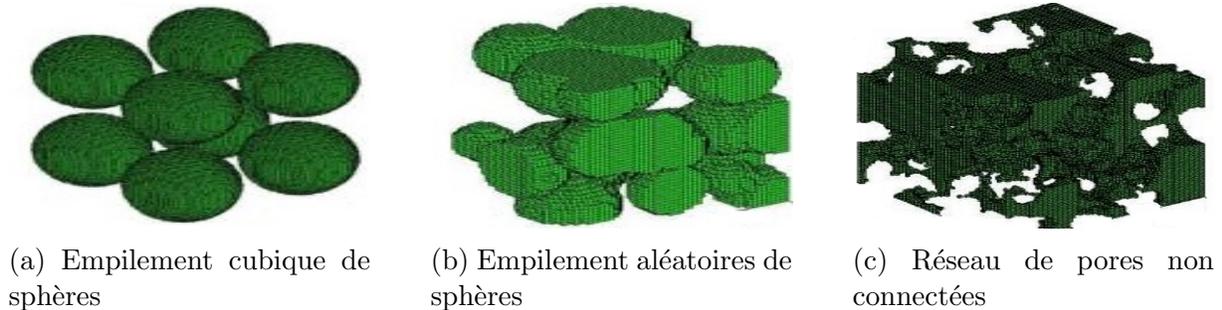


(a) Roche réservoir [1]

(b) Sol [2]

(c) filtre [3]

FIGURE 1.1 – Exemples de milieux poreux



(a) Empilement cubique de sphères

(b) Empilement aléatoires de sphères

(c) Réseau de pores non connectées

FIGURE 1.2 – Quelques structures de milieux poreux [4]

1.1.2.1 Porosité

La porosité est l'une des propriétés les plus importantes d'un milieu poreux. Elle représente le rapport entre le volume des vides (pores) et le volume total du milieu.

$$\Phi = \frac{V_{pores}}{V_{total}} \quad (1.1)$$

C'est une grandeur physique comprise entre 0 et 1, conditionnant les capacités d'écoulement. Elle peut changer au cours du temps avec l'évolution de la forme de la matrice solide.

Matériaux	Porosité (%)
Gravier	30 - 40
Sable	30 - 40
Tourbe	60 - 80
Argile	45 - 55
Grès	10 - 20
Calcaire	1 - 10
Silt	40 - 50
Sols	50 - 60

TABLE 1.1 – porosité de quelques matériaux [5]

On peut distinguer plusieurs types de porosité [6] : selon la forme et l'origine des pores (primaire ou de pores, secondaire ou de fissures), selon la taille (microporosité,

mésoporosité et acroporosité), ou selon la nature de pores (biologique, texturale, structurale) etc.

En physique des sols, on utilise souvent, au lieu de la porosité, ce qu'on appelle l'indice des vides définit en fonction de la porosité par :

$$e = \frac{\Phi}{(1 - \Phi)} \quad (1.2)$$

1.1.2.2 Surface spécifique

La surface spécifique est une autre propriété géométrique des milieux poreux, elle peut être définie comme étant le rapport entre la surface de l'interface solide et le volume du solide et dans ce cas elle sera notée S_o ou bien le rapport entre la surface de l'interface solide et le volume total du milieu et dans ce cas elle sera notée S_v . Cette propriété s'avère importante pour les phénomènes mettant en jeu la surface tels que : l'absorption, les échanges de chaleur, l'adsorption, le catalyse ...

$$S_v = \frac{S_{interface}}{V_{total}} \quad (1.3)$$

$$S_o = \frac{S_{interface}}{V_{solide}} \quad (1.4)$$

1.1.2.3 Perméabilité

La perméabilité d'un milieu poreux k exprimée en (m^2) mesure sa capacité à se laisser traverser par un fluide quand un gradient de pression s'applique[7]. Elle figure dans l'expression de la loi de Darcy que nous allons définir plus loin.

Matériaux	Perméabilité k en (m^2)
Gravier	$10^{-7} - 10^{-9}$
Sable	$10^{-9} - 10^{-12}$
Tourbe	$10^{-11} - 10^{-13}$
Roche pétrolifère	$10^{-11} - 10^{-14}$
Sable fin, silt	$10^{-12} - 10^{-16}$
Argile stratifié	$10^{-13} - 10^{-16}$
Grès	$10^{-14} - 10^{-16}$
Calcaire	$10^{-16} - 10^{-18}$
Granite	$10^{-18} - 10^{-23}$
Argile compacte	$10^{-16} - 10^{-24}$

TABLE 1.2 – Exemples de perméabilité de quelques matériaux [5]

1.1.3 Milieu poreux modèle 2D

En terme d'écoulements diphasiques dans des milieux poreux, un micromodèle d'après Karadimitriou et al [8] est une représentation artificielle ou idéalisée, généralement bidimensionnelle, d'un milieu poreux ou d'un réseau de pores connectés, mesurant quelques dizaines de microns, à travers lequel les fluides s'écoulent et les solutés se répandent. Le micromodèle est typiquement constitué d'un matériau transparent tel que le verre, le quartz ou un matériau polymère, permettant une observation visuelle des écoulements des fluides et du mouvement des colloïdes ou des solutés. Les pores devraient avoir une taille inférieure à 1 mm pour que les effets capillaires soient pertinents. La taille globale d'un micromodèle est généralement de l'ordre du centimètre.

La plupart des micromodèles sont bidimensionnels, mais des exemples de micromodèles tridimensionnels peuvent être trouvés dans les travaux de Montemagno et Gray [9] et d'Avraam et Payatakes [10]. La différence entre les micromodèles bidimensionnels et tridimensionnels est liée aux limites du dispositif de visualisation. En principe, les méthodes optiques ne peuvent pas être utilisées pour la visualisation sur toute la profondeur du modèle.

Durant les quarante dernières années, le recours aux micromodèles est devenu de plus en plus fréquent lorsqu'il s'agit des études des comportements des fluides au sein des microstructures dans divers domaines de recherche ; biologiques, physiques et chimiques. Les géométries des micromodèles sont choisies selon le besoin. Chatenever et Calhoun [11] et Nuss et Whiting [12] étaient les premiers à concevoir des micromodèles de milieux poreux mais leurs spécificité c'est qu'ils avaient une géométrie simple et régulière. Dans les années 1980, des géométries plus compliquées ont vu le jour grâce à l'utilisation des ordinateurs. Karadimitriou et al [8] ont classés les micromodèles en fonction de la géométrie et de la topologie du milieu poreux, et cette classification a donné quatre catégories principales :

- **Modèles parfaitement réguliers** : modèles dans lesquels les pores ont la même forme, la même profondeur et la même distance, tels que les modèles de Chen et Wilkinson [13] et ceux de Corapcioglu et al. [14]

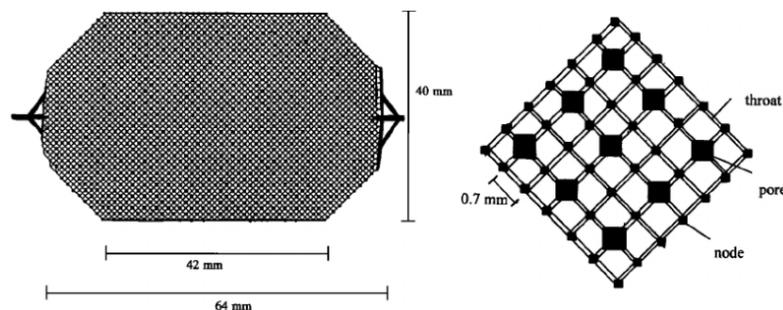


FIGURE 1.3 – Exemple d'un micromodèle parfaitement régulier [14]

- **Modèles partiellement réguliers** : modèles qui forment un réseau régulier com-

posé des pores de la même forme mais pas de la même taille. Les tailles des pores sont choisies à partir d'une distribution statistique et peuvent être corrélées ou non. Nous citons à titre d'exemple les modèles de Tsakiroglou et Avraam [15] et de Sbragaglia et al [16]

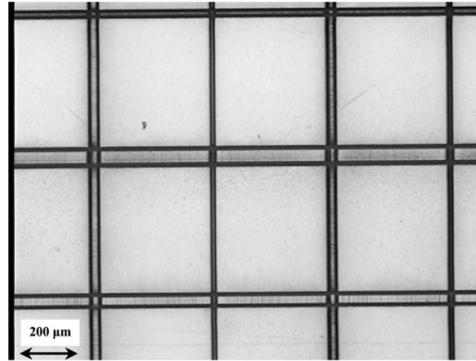


FIGURE 1.4 – Exemple d'un micromodèle partiellement régulier [15]

- **Motifs fractals** : ces motifs peuvent être spatialement corrélés ou non. Un micromodèle fractal peut sembler avoir un motif complètement irrégulier, mais en réalité il ne l'est pas. Des exemples peuvent être trouvés dans les travaux de Cheng et al [17] et de Nolte et Pyrak-Nolte [18], Nolte et al. [19], et Pyrak-Nolte et al. [20]

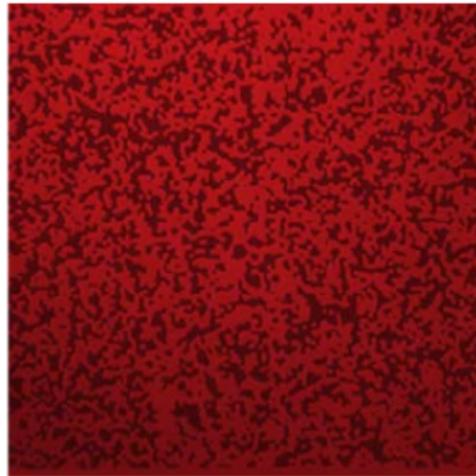


FIGURE 1.5 – Exemple d'un micromodèle présentant des motifs fractals [17]

- **Motifs irréguliers** : sur ces motifs la corrélation spatiale est absente et les pores sont placés de façon aléatoire dans le réseau et leurs tailles sont choisies à partir d'une distribution statistique. Plusieurs exemples peuvent être cités la-dessus : les micromodèles de Sandnes et al [21], de Heiba et al [22] et de Blunt et al [23]...

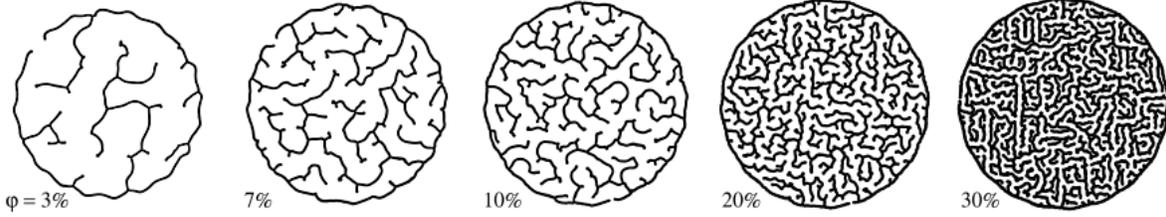


FIGURE 1.6 – Exemples des micromodèles présentant des motifs irréguliers [21]

Dans la présente thèse nous allons utiliser également des motifs irréguliers aléatoires que nous allons voir par la suite en détail.

1.1.4 Écoulements dans un milieu poreux

Nous allons voir par la suite que le fluide et la suspension qui seront utilisés dans le cadre de cette thèse sont newtoniens. Rappelons qu'un fluide newtonien veut dire un fluide ayant une viscosité qui ne dépend pas de la contrainte mécanique qui lui est appliqué, c'est-à-dire que sa loi contrainte-vitesse de déformation est linéaire. Ensuite, lorsque nous parlons d'un écoulement dans un milieu poreux, il faut préciser les conditions de saturation pour bien définir les paramètres qui régissent cet écoulement [24]. En effet, il faut distinguer entre :

- les milieux saturés dans lesquels l'écoulement est conditionné par la gravité et les forces de frottement au niveau des murs. [25]
- les milieux non saturés dans lesquels, en plus de la phase liquide et la phase solide, la phase gazeuse se rajoute et par conséquent d'autres forces se rajoutent. Ces forces sont les forces de surface qui viennent intervenir au niveau des interfaces liquide/gaz et solide/gaz.[26]

Jusqu'à présent, les milieux poreux saturés sont les plus souvent étudiés, vu qu'ils présentent moins de complexité en plus de leur présence très abondante dans la nature et dans divers domaines industriels. Dans le même sens, nous avons choisi de travailler en conditions de saturation dans le cadre de cette thèse. Pour étudier l'écoulement, partons du cas le plus simple d'un fluide newtonien incompressible monophasique s'écoulant à travers un milieu poreux. L'équation qui régit un tel écoulement est l'équation de Navier-Stokes [27] :

$$\frac{\partial(\rho \vec{v})}{\partial t} + (\rho \vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} = -\vec{\nabla} p + \rho \vec{g} + \mu \Delta \vec{v} \quad (1.5)$$

Où μ la viscosité dynamique du fluide ($Kg/(m.s)$), ρ sa masse volumique (Kg/m^3), v sa vitesse (m/s), p la pression ($Kg/(m.s^2)$) et g l'accélération de la pesanteur (m/s^2).

La résolution de cette équation à l'échelle du pore pour passer à l'échelle du milieu en entier est possible numériquement mais nous serons limités par le temps de calcul la taille de mémoire etc. C'est pourquoi une échelle intermédiaire entre l'échelle du pore et

l'échelle du milieu a été définie et elle s'appelle l'échelle de Darcy. À cette échelle, il a été possible de dériver de l'équation de Navier-Stokes une loi reliant la perte de charge Δp et le débit Q appelée loi de Darcy. Elle s'écrit sous la forme suivante :

$$\overrightarrow{v_{Dar}} = \frac{k}{\mu}(\rho \overrightarrow{g} - \overrightarrow{\nabla p}) \quad (1.6)$$

Ou sous forme scalaire :

$$Q = -\frac{kS\Delta p}{\mu L} \quad (1.7)$$

où k la perméabilité (m^2), S la section (m^2), L la longueur du milieu poreux (m) et $\overrightarrow{v_{Dar}}$ la vitesse de Darcy (m/s) qui figure dans l'expression du débit Q (m^3/Kg) :

$$Q = \int_S \overrightarrow{v_{Dar}} \cdot \overrightarrow{dS} \quad (1.8)$$

À la base de cette vitesse de Darcy, nous pouvons définir une autre vitesse qui nous rapproche plus de la réalité. Il s'agit de la vitesse interstitielle $\overrightarrow{v_{Int}}$ qui s'écrit sous la forme :

$$\overrightarrow{v_{Int}} = \frac{\overrightarrow{v_{Dar}}}{\Phi} \quad (1.9)$$

Sa particularité est qu'elle ne prend en compte que la partie poreuse de la section totale, qui est justement la partie traversée par le fluide.

1.2 Généralités sur les suspensions des particules

1.2.1 Définition

Une suspension est un ensemble de particules dispersées dans un fluide. Dans le cas d'un écoulement, ces particules constituent la phase solide qui est transportée par la phase liquide. Elles peuvent généralement interagir entre elles que ce soit moyennant un contact direct entre elles et dans ce cas nous parlons des interactions de contact frottants ou par l'intermédiaire du fluide et dans ce cas il s'agit des interactions de lubrification. Parmi les éléments fondamentaux à définir dans l'étude des suspensions est la fraction volumique ϕ ou la fraction solide définit comme suit :

$$\phi = \frac{\text{Volumique des particules}}{\text{Volume totale}} \quad (1.10)$$

Elle est importante car c'est l'un des paramètres permettant de définir quand est ce qu'un type de force est prédominant par rapport à autre.

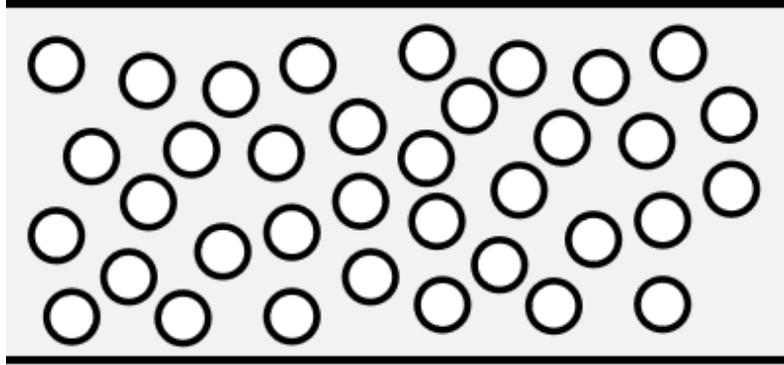


FIGURE 1.7 – Schéma d’une suspension de particule : le fluide suspendant en gris et les particules en blanc

1.2.2 Nombres adimensionnels

Dans cette thèse, nous allons nous intéresser uniquement aux particules rigides. Nous considérons donc un système simple de particules rigides en suspension dans un fluide newtonien. Nous commençons par définir les nombres adimensionnels qui contrôlent le comportement des suspensions.

Nombre de Reynolds

Le nombre de Reynolds est un nombre adimensionnel permettant de comparer les forces d’inerties aux forces visqueuses. Il est défini de façon générale pour un fluide en fonction de sa vitesse v , sa viscosité dynamique μ , sa masse volumique ρ et une longueur caractéristique d_{cara} , comme suit :

$$Re = \frac{\rho v d_{cara}}{\mu} \quad (1.11)$$

Dans le cas des suspensions, on définit le nombre de Reynolds particulaire pour lequel la longueur caractéristique correspond à la taille des particules d_p , est défini en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, la taille des particules d_p , la masse volumique du fluide ρ_f et sa viscosité dynamique μ_f , comme suit :

$$Re_p = \frac{\rho_f \dot{\gamma} d_p^2}{\mu_f} \quad (1.12)$$

À bas Reynolds l’écoulement est dit laminaire et les forces visqueuses prédominent. À haut Reynolds l’écoulement est dit turbulent et les forces d’inertie sont dominantes. Souvent dans les milieux poreux, on est à bas Reynolds vu que généralement la taille caractéristique, que ce soit la taille des pores ou de particules, est faible. Donc les forces d’inertie sont négligeables.

Nombre de Peclet

Le nombre de Peclet compare le transfert par convection forcée et le transport par diffusion. Il permet de quantifier l'importance du mouvement brownien sur le déplacement des particules. Il est défini en fonction de l'énergie thermique $k_B T$, la taille des particules d_p , la viscosité dynamique μ_f du fluide et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$:

$$Pe = \frac{6\pi\mu_f d_p^3 \dot{\gamma}}{k_B T} \quad (1.13)$$

À faible Peclet ($Pe \ll 1$), les effets browniens sont plus importantes que les effets hydrodynamiques. Dans le cas où le nombre de Peclet est élevé ($Pe \gg 1$), les suspensions sont non-browniennes.

Nombre de Stokes

Le nombre de Stokes représente le rapport entre l'effet d'inertie de la particule en mouvement et la traînée visqueuse sur les particules. Il est défini comme suit :

$$St = \frac{\rho_p \dot{\gamma} d_p^2}{\mu_f} \quad (1.14)$$

Nombre de Shields

Le nombre de Shields est un nombre adimensionnel utilisé pour calculer l'initiation du mouvement des sédiments dans un écoulement fluide. Il s'agit de la non-dimensionnalisation d'une contrainte de cisaillement. Il est défini comme suit :

$$Sh = \frac{\mu_f \dot{\gamma}}{(\rho_p - \rho_f) g d_p} \quad (1.15)$$

1.2.3 Analyse adimensionnel

La compréhension des écoulements de suspension passe par le paramètre de viscosité, qui signifie la résistance à l'écoulement et qui est la réponse du fluide au cisaillement. La viscosité dynamique est le rapport entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement :

$$\mu = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} \quad (1.16)$$

Dans le cas des suspensions, il est toujours pertinent de raisonner en terme de viscosité réduite μ_s , qui est le rapport entre la viscosité dynamique de la suspension μ et celle du fluide suspendant μ_f :

$$\mu_s = \frac{\mu}{\mu_f} \quad (1.17)$$

Ainsi l'équation 1.16 devient :

$$\mu_s = \frac{\sigma}{\mu_f \dot{\gamma}} \quad (1.18)$$

Dans cette thèse, nous allons nous intéresser à une suspension iso-dense. De façon générale, la rhéologie des suspensions iso-dense peut être divisée en quatre régimes, en fonction du Nombre de Reynolds Re_p et du nombre de Peclet Pe . Ces régimes sont présentés sur la figure 1.8 :

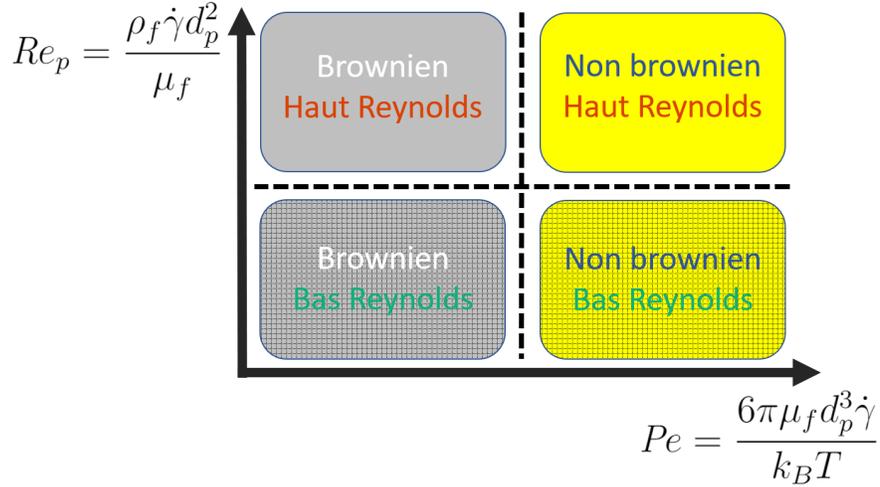


FIGURE 1.8 – Schéma simplifié des différents régimes caractérisant la rhéologie des suspensions iso-denses de particules rigides

Pour ce travail la taille des particules utilisée dépasse $1\mu\text{m}$, et le nombre de Peclet est élevé ($Pe \sim 2 \times 10^5$), donc l'effet brownien sera négligé. D'autre part, le nombre de Reynolds est très faible ($Re_p \sim 1 \times 10^{-3}$), et nous rappelons que souvent dans les milieux poreux le régime est laminaire vu que la taille des pores est petite et qu'à bas Reynolds les forces visqueuses sont prépondérantes sur les forces d'inertie. Donc en conclusion, le régime associé à notre étude sera le régime **bas Reynolds - non brownien** (cf schéma 1.8).

$$I_v = \frac{\mu_f \dot{\gamma}}{P_p} \quad (1.19)$$

Les mesures rhéométriques classiques se basent sur le fait d'imposer un cisaillement sur un volume constant de fluide puis ensuite mesurer la contrainte de cisaillement, elles sont dites des mesures à débit imposé. Mais il existe une autre méthode à pression imposée [28] basée sur le fait de varier la fraction volumique en jouant sur cette pression imposée. C'est cette méthode qui permet d'introduire le nombre I_v que nous venons de définir ci-dessus. Selon Cassar et al [29], ce nombre contrôle la rhéologie de la suspension dense via deux fonctions $\phi = f_1(I_v)$ et $\sigma = f_2(I_v) \times P$ qui sont respectivement le rapport entre la contrainte de cisaillement et la pression imposée, et la variation de la fraction volumique

en fonction de ce nombre visqueux. Ceci permet d'obtenir l'équation suivante (pour plus de détails cf [29, 28]) :

$$\sigma = \mu_s(\phi)\dot{\gamma} \quad (1.20)$$

Sur cette équation, nous pouvons constater que la viscosité dépend de la fraction solide. Cette dépendance s'appelle une loi de comportement. Nous rappelons qu'on ne peut parler de loi de comportement que si on est en régime laminaire. Les lois de comportements permettent généralement de décrire macroscopiquement le comportement de la suspension en cisaillement, mais elles ne sont pas capables de donner les détails sur le comportement au niveau microscopique. Chercher ces détails nécessite des outils numériques qui, moyennant l'introduction des modèles de contact à l'échelle microscopique et la simulation de la réponse macroscopique sous cisaillement, peuvent apporter des éléments de réponse sur le comportement au niveau microscopique.

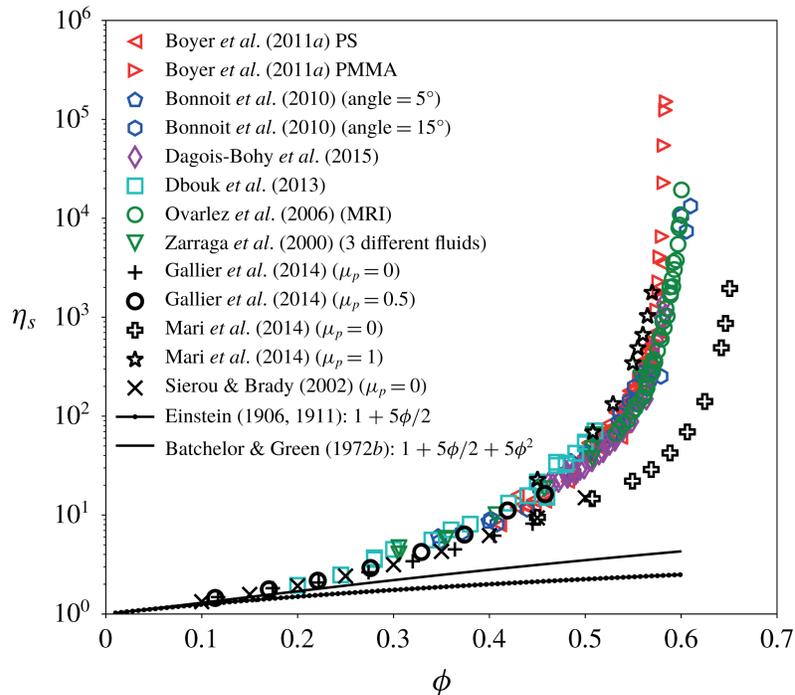


FIGURE 1.9 – Évolution de la viscosité réduite μ_s en fonction de la fraction solide [30]. Les points de données sans indication de μ_p sont issus de travaux expérimentaux et ceux avec la mention μ_p sont issus de travaux numériques.

Beaucoup d'études se sont intéressées à l'étude des lois de comportement depuis l'article pionnier d'Einstein en 1960 [31]. Guazzelli et al ont recueilli en 2018 un ensemble de lois de comportement, élaborées depuis le début du Vingt-et-unième siècle, pour différents types de particules rigides, de fluides suspendants et de configurations d'écoulement. La figure 1.9 reporte le tracé de ces lois (Viscosité réduite en fonction de la fraction solide), certaines proviennent des expériences (n'ont pas la mention μ_p sur le graphe)

[28, 32, 33, 34, 35] et d'autres proviennent de la simulation numérique (ont la mention μ_p sur le graphe) [36, 37, 38]. Nous pouvons remarquer deux choses essentielles à partir du graphe, la première c'est que les courbes divergent au delà d'une certaine valeur de ϕ et la deuxième c'est que les courbes ne se superposent pas c'est-à-dire qu'elles sont proches mais pas identiques. En effet, concernant le premier point il faut savoir que lorsque la suspension devient dense elle peut arriver à un certain stade au-delà duquel l'écoulement n'est plus possible. Dans ce cas, ϕ atteint une valeur ϕ_m comprise entre 0.56 et 0.64 mais pas fixée de façon universelle, nommée fraction massique de divergence de la viscosité. Sa valeur est inférieure à la fraction volumique d'empilement maximum pour des sphères, elle dépend de plusieurs paramètres, et peut être déduite soit expérimentalement soit via des simulations. Puis concernant le deuxième point, les courbes ne coïncident pas car nous avons négligé le coefficient de friction microscopique. Il est nul lorsque le contact est lubrifié.

Dans cette thèse, le modèle qui semble le plus proche des résultats expérimentaux obtenus dans le cas de notre suspension est le modèle de Zarraga [39] qui donne la viscosité effective défini par :

$$\mu_{eff} \sim \mu_0 \frac{\exp(-2.34\phi)}{(1 - \phi/\phi_m)^3} \quad (1.21)$$

où $\phi_m = 0,58$. Nous allons voir dans le chapitre matériels et méthodes 2 plus de détails sur ce point.

1.2.4 Discussion : forces mises en jeu

De façon générale, les forces qui rentrent en jeu au sein d'une suspension et affectent son comportement sont les suivantes :

- **L'inertie** : qui signifie tout simplement la tendance d'un corps à conserver sa vitesse. Elle apparaît dans l'expression du nombre de Reynolds qui traduit la compétition entre les forces d'inertie et les forces visqueuses
- **L'agitation thermique** : qui peut amener les particules à avoir ce qu'on appelle un mouvement brownien lorsque celles-ci sont trop petites c'est-à-dire qu'elles ont une taille de l'ordre du micromètre
- **Les interactions hydrodynamiques** : traduites par le fait que la présence des particules dans un fluide en écoulement peut modifier les lignes de courant de celui-ci. Elles englobent 3 forces : les forces de traînées, les interactions longue portée, les forces de lubrification.
- **La flottabilité** : veut dire que les particules flottent lorsqu'elles ont une masse volumique inférieur à celle du fluide suspendant ou elles sédimentent dans le cas contraire.
- **Les forces de contact solide** : lorsque les particules sont lisses, les forces de

lubrifications les empêchent de se mettre en contact les unes avec les autres. Mais à vrai dire, les particules sont dotées d'une rugosité même s'elle est petite. Celle-ci est très importante dans le sens où elle permet d'avoir du contact solide.

- **Les forces colloïdales** : lorsque la taille des particules est inférieure à 1 μm , elles peuvent interagir entre elles via des forces appelées force colloïdales[40]. Ces forces sont soit des forces de van der Waals, des forces électrostatiques et d'effets stériques liés à l'adsorption de polymères.

- **Les forces de van der Waals** : proviennent des fluctuations thermodynamiques du champ électromagnétique autour et à l'intérieur des particules. Ces fluctuations donnent lieu à une force généralement attractive entre particules qui dépend de leur structure, leur forme et du fluide interstitiel.

- **Les forces électrostatiques** : lorsque des ions adsorbés sont présentes à la surface des particules solides, on parle des forces électrostatiques. Ces ions diffusent dans le liquide et permettent de former une structure appelée double-couche.

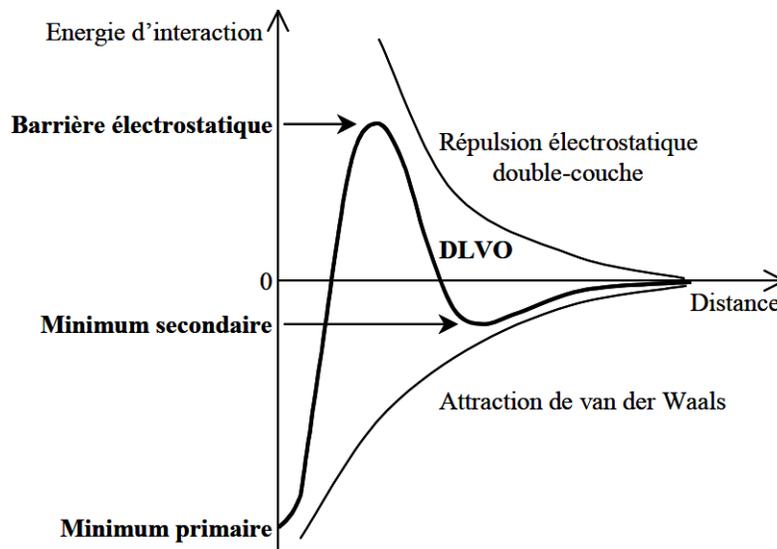


FIGURE 1.10 – Représentation schématisée du profil d'interaction de type DLVO [41]

La théorie dite DLVO qui porte les noms des chercheurs qui ont participé à son élaboration (Derjaguin et Landau [42], Verwey et Overbeek [43]), est une théorie qui considère le potentiel d'interaction total entre deux particules et détermine l'importance relative des deux effets associées la répulsion électrostatique et à l'attraction de van der Waals. L'effet qui va dominer le profil de force dépend de la distance d qui sépare les deux particules. La force de van der Waals varie en $1/d^2$ et la force répulsive est exponentielle. Donc aux très longues distances la répulsion électrostatique domine. Par contre aux très courtes distances, c'est

l'attraction de van der Waals qui sera prépondérante [41]. Sur la figure 1.10 est reportée une représentation schématique du profil d'interaction de type DLVO. Les forces colloïdales vont être responsables de plusieurs comportements compliqués, comme la rhéofluidification, rhéoépaississement, la formation des gels etc. Il est important de les étudier car elles comptent beaucoup dans le cas du bouchage des milieux poreux par agrégation. Dans ce paragraphe nous allons nous intéresser au régime d'épaississement par cisaillement. Dans les suspensions rhéologiques rhéoépaississantes la viscosité augmente en fonction du taux de cisaillement. Cette augmentation est considérée comme un passage d'un état de contact lubrifié à un état de friction. En effet, lorsque le cisaillement augmente la contrainte normale augmente également c'est-à-dire que la pression interparticulaire augmente. Au début, les particules sont dans un état de contact lubrifié, mais la présence des forces colloïdales fait que la répulsion entre particule s'active et avec l'augmentation du taux de cisaillement, un certain moment la force normale induite par l'écoulement dépassera la force colloïdale et donc on passe à l'état de friction. Il en résulte que le système n'est plus décrit par la même loi $\mu(\phi)$.

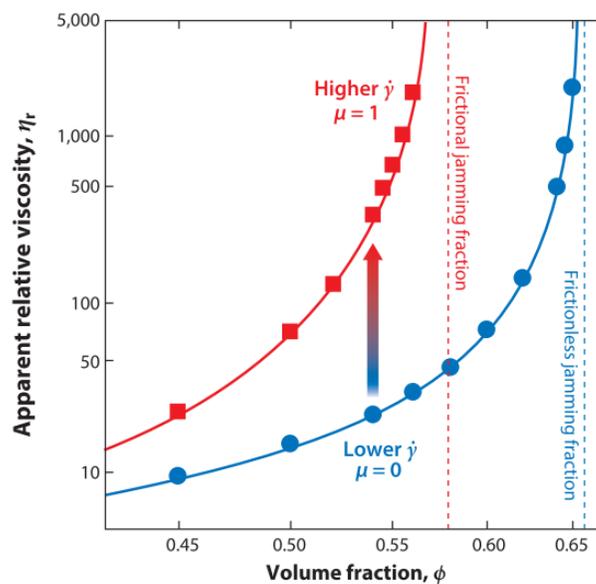


FIGURE 1.11 – Deux branches de la viscosité : inférieure (lubrifiée, avec un coefficient de friction $\mu_{friction} = 0$) et supérieure (frictionnelle, avec $\mu_{friction} = 1$), avec une flèche indiquant la transition entre la courbe inférieure et la courbe supérieure avec l'augmentation du taux de cisaillement. [44]

Sur la figure 1.11 une représentation (Morris et al [44]) de deux branches de viscosité, la branche inférieure en bleu correspondant à l'état de contact lubrifié (coefficient de friction $\mu_{friction} = 0$) et la branche supérieure en rouge correspondant à l'état de friction (coefficient de friction $\mu_{friction} = 1$).

Ensuite, nous allons donner un bref aperçu sur le régime d'amincissement par cisaille-

ment. Le comportement dans ce régime a été lié à deux principaux mécanismes d'après Chatté et al [45].

- À faible taux de cisaillement, la présence des forces répulsives à courte portée conduisent à l'amincissement par cisaillement qui se produit pour une rhéologie lubrifiée (cf figure 1.12-a). Dans ce régime, la suspension se comporte essentiellement comme des particules molles, avec une taille apparente qui inclut la sphère dure et une partie du potentiel répulsif mou environnant. Lorsque le taux de cisaillement augmente la pression interparticulaire augmente également et la fraction solide effective diminue et par conséquent la viscosité diminue. Donc on finit par avoir un amincissement par cisaillement.

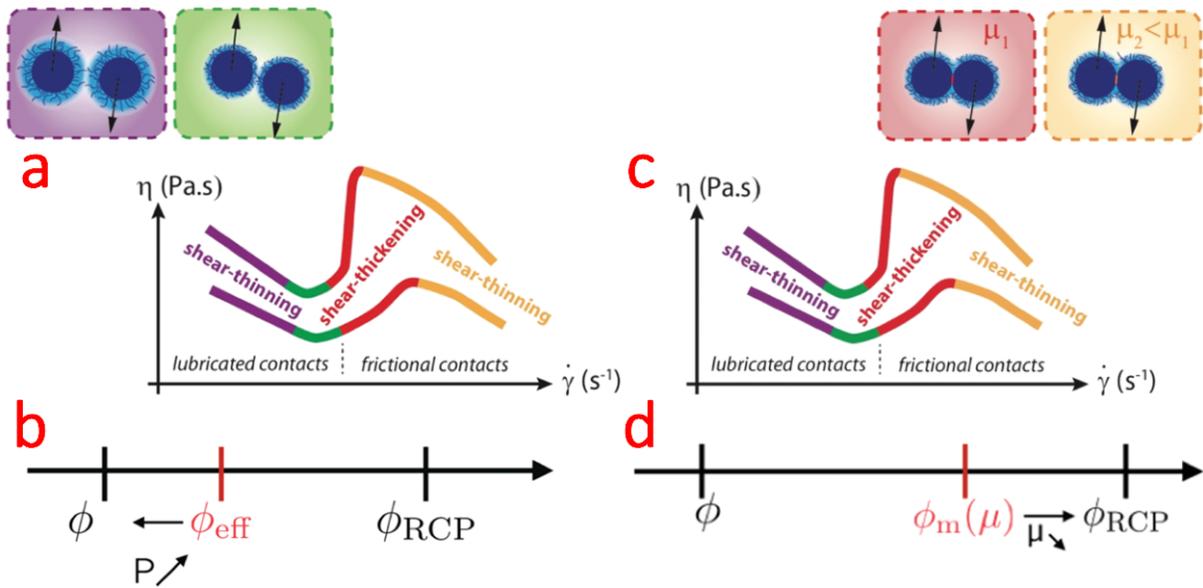


FIGURE 1.12 – a) (respectivement c)) Schémas du processus impliqué dans le premier (respectivement le deuxième) régime d'amincissement par cisaillement. b) La diminution de la fraction volumique effective ϕ_{eff} vers la fraction solide pour les sphères dures ϕ conduit à une augmentation de la distance de la fraction d'emballage proche aléatoire ϕ_{RCP} à laquelle la viscosité diverge pour les particules sans friction, et donc à une diminution de la viscosité de la suspension. d) La diminution du coefficient de frottement microscopique $\mu_{friction}$ conduit à une augmentation de la fraction volumique critique $\phi_m(\mu_{friction})$ à laquelle la viscosité diverge pour la sphère de frottement vers la fraction d'emballage proche aléatoire ϕ_{RCP} . La distance croissante entre la fraction volumique de la suspension ϕ et $\phi_m(\mu_{friction})$ avec l'augmentation de la pression conduit à une diminution de la viscosité de la suspension. [45]

- À fort taux de cisaillement, l'amincissement par cisaillement se produit juste après la transition d'épaississement par cisaillement et donc pour une rhéologie frictionnelle (cf figure 1.12-c). Dans ce second régime, lorsque le taux de cisaillement augmente la pression interparticulaire augmente et la fraction volumique critique

$\phi_m(\mu_{friction})$ à laquelle la viscosité diverge pour les sphères frictionnelles augmente également. D'où l'écart observé entre la viscosité et le taux de cisaillement.

Nous avons vu en général les principales forces colloïdales ainsi que quelques fortes conséquences de celle-ci. Dans le cas non Brownien ($Pe \gg 1$) à bas Reynolds ($Re \ll 1$) qui est le notre, et étant donné que les forces colloïdales dans ce travail sont négligeables, nous aurons deux régimes :

- un régime dilué où les forces hydrodynamiques sont prépondérantes. Donc il y aura les forces de lubrification et les particules vont interagir hydrodynamiquement entre elles. Les forces de contacts seront négligeables parce qu'il a été démontré [46] qu'il faut que ϕ atteigne une valeur autour de 40% pour que ces forces dominent. Il faut noter qu'au milieu des clusters, la fraction solide 40% est facilement atteignable et dans ce cas même si la suspension injectée est diluée il y aura des interactions de contacts au niveau des clusters.
- un régime concentré où les forces visqueuses dominent.

1.3 Colmatage de particules dans un milieu poreux

Les suspensions de particules occupent une place assez importante dans notre vie vu leur présence abondante que ce soit dans la nature ou dans l'industrie pour la simple raison de permettre un transport des éléments solides (particules, grains...) moyennant un fluide suspendant (phase fluide). Ce transport peut se faire sur des systèmes ouverts (rivières, canaux à surface libre ...) ou des systèmes confinés. Les milieux poreux sont parmi les systèmes confinés les plus connus. Les écoulements de suspensions à travers ces milieux sont aussi omniprésents et peuvent être retrouvés dans plusieurs applications telles que la filtration [47, 48], les écoulements dans les systèmes biologiques [49], la production de sable dans les réservoirs de pétrole [50, 51], l'extraction de l'eau et du pétrole [52, 53], la production de gaz à partir de sédiments contenant des hydrates[54], le transport de contaminants dans les milieux poreux saturés [55, 56], l'écoulement des particules détachées du sol dans ouvrages hydrauliques (érosion interne) [57, 58]. Mais malgré leur omniprésence et leur importance, la communauté scientifique qui s'intéresse à ce sujet est toujours incapable de cerner tous les processus gouvernant ce phénomène vu la complexité des relations entre les différentes composantes de ce système à savoir : les interactions des particules entre elles tout d'abord puis avec le fluide et ensuite avec le milieu qui prend généralement la forme de réseaux complexes difficiles à étudier.

1.3.1 Colmatage à l'échelle macroscopique

Les premiers travaux dans ce sens ont été effectués à l'échelle macroscopique en utilisant à titre d'exemple des colonnes poreuses [59] comme ce qui est montré sur la figure

1.13, des colonnes de billes [60, 61], des membranes avec des pores cylindriques [62] ou des fibres [63].

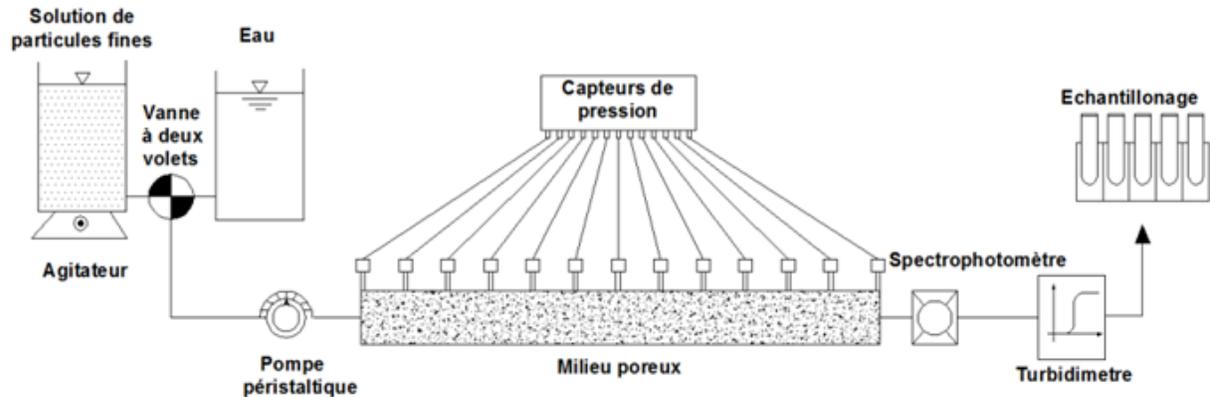


FIGURE 1.13 – Exemple de schéma d'injection d'une suspension à travers une colonne poreuse horizontale [59]

Ce qui se fait d'habitude dans ces cas c'est qu'une suspension de particules est injectée, la pression est suivie dans différents endroits de la colonne moyennant des capteurs de pression et à la sortie les effluents sont collectés pour être exploités selon le besoin en terme de mesures de la teneur en particules moyennant la masse des particules évacuées par exemple ou des mesures de turbidité de la suspension etc. Les aspects les plus abordés en général sont la rétention des particules [61, 64] tant que l'écoulement est toujours possible et le colmatage des milieux. Mais ces aspects, malgré leur importance, restent insuffisants pour avoir une vision complète sur le phénomène. À ce stade, ce qui a été compris c'est qu'il va y avoir, comme il est montré sur le schéma explicatif de la figure 1.14, un ensemble de mécanismes tels que la filtration de la surface, de la filtration à l'intérieur du milieu, des mécanismes qui vont attacher des particules sur les parois et d'autres qui vont les enlever.

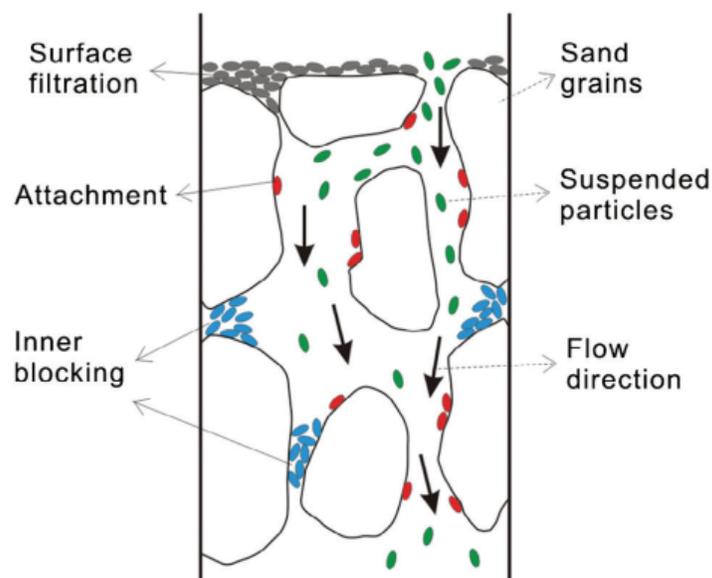


FIGURE 1.14 – Schéma explicatif des différents mécanismes se produisant au sein d'un milieu poreux traversé par une suspension de particule [65]

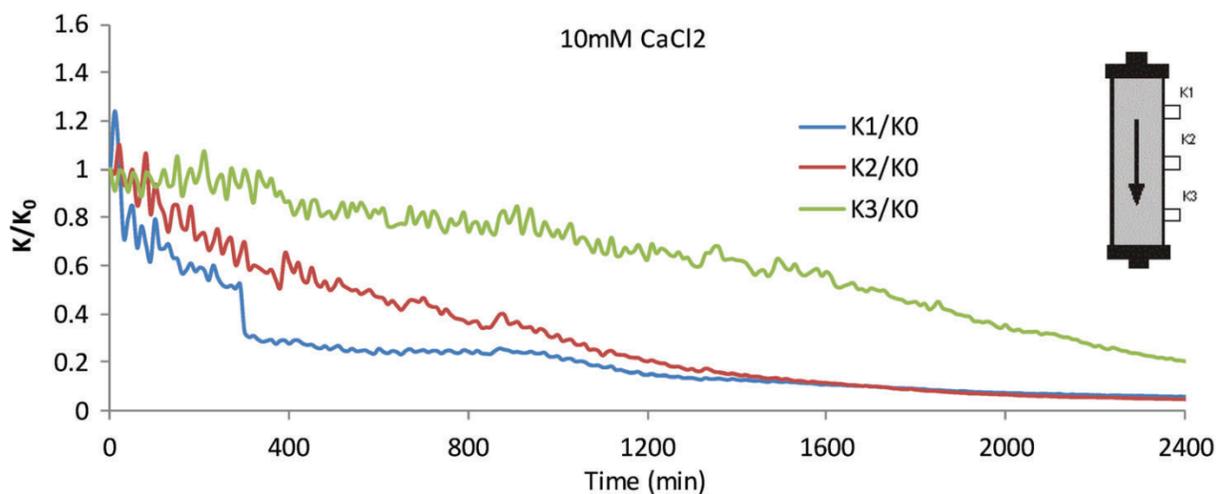


FIGURE 1.15 – Profils de réduction de perméabilité en fonction du temps, à différents points d'une colonne poreuse pour une condition ionique donnée [65]

Toujours à l'échelle macroscopique d'autres études au début du Vingt-et-unième siècle se sont basées sur des milieux poreux modèles 3D moyennant les techniques de microtomographie aux rayons X [66].

Tous ces mécanismes font qu'au bout d'un certain temps des bouchons, des clusters ou des agrégats de particules commencent à se construire dans les différentes parties du milieu poreux. Dans quelques situations très rares, la formation de ces bouchons est souhaitable dans le sens où elle permet par exemple de renforcer les substrats fracturés tels

que le béton ou les roches [67, 68]. Mais dans la plupart des situations elle reste nuisible vu qu'elle peut réduire significativement la perméabilité du milieu et donc l'efficacité et la durée de vie du système. Un exemple de Ye et al [65] est donné sur la figure 1.16 pour illustrer les profils de réduction de perméabilité du milieu poreux au fil de temps. La perméabilité est mesurée pour cet exemple sur trois points (K1, K2 et K3) de la colonne poreuse, et diminue au fil du temps jusqu'à ce que l'écoulement devient très difficile ou même impossible lorsque le milieu est complètement colmaté.

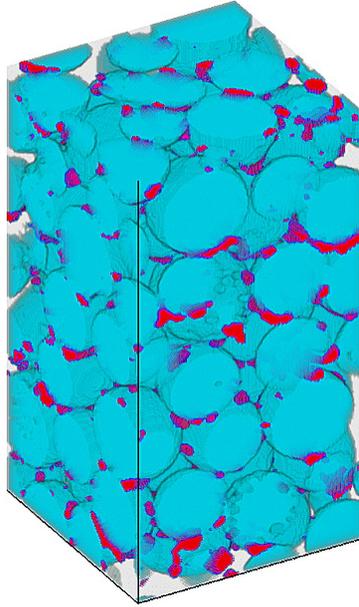


FIGURE 1.16 – Représentation tridimensionnelle d'un volume interne de colonne de dimension $0,6 \times 0,6 \times 1,2$ mm montrant les sphères de verre (bleu) et les dépôts de zircon (rouge) [66]

Elles ont démontré que ces techniques peuvent être utilisées pour obtenir des informations structurelles détaillées sur la formation de dépôts de particules dans un milieu poreux granulaire et pour observer la structure des pores avant et après le dépôt de particules au moyen d'une seule mesure non invasive. Mais bien qu'elles soient puissantes, ces méthodes sont sujettes à des limitations importantes et ne permettent ni de fournir la structure à l'échelle des particules, ni d'étudier la dynamique du processus de colmatage.

1.3.2 Colmatage à l'échelle du pore

Afin de mieux comprendre ce phénomène et aider à interpréter les expériences macroscopiques, plusieurs études se sont intéressées à l'échelle du pore. Ces recherches se sont basées sur des suspensions de microparticules ($D_{par} \approx$ quelques μm) pour essayer de comprendre et décrire le processus de colmatage. Et la microfluidique s'est avérée d'après

Wyss et al [69] un très bon outil pour étudier le transport de particules à cette échelle. La particularité de ces écoulements c'est qu'ils ont un nombre de Reynolds trop bas, ce qui fait que les forces inertielles sont négligées [70], et donc les équations de Stokes peuvent être utiles pour les caractériser. Lorsqu'une suspension de particule passe à travers un pore, trois possibilités s'offrent : soit l'écoulement se fait de façon fluide sans interruption, soit il est bloqué totalement ou soit il est intermittent [71].

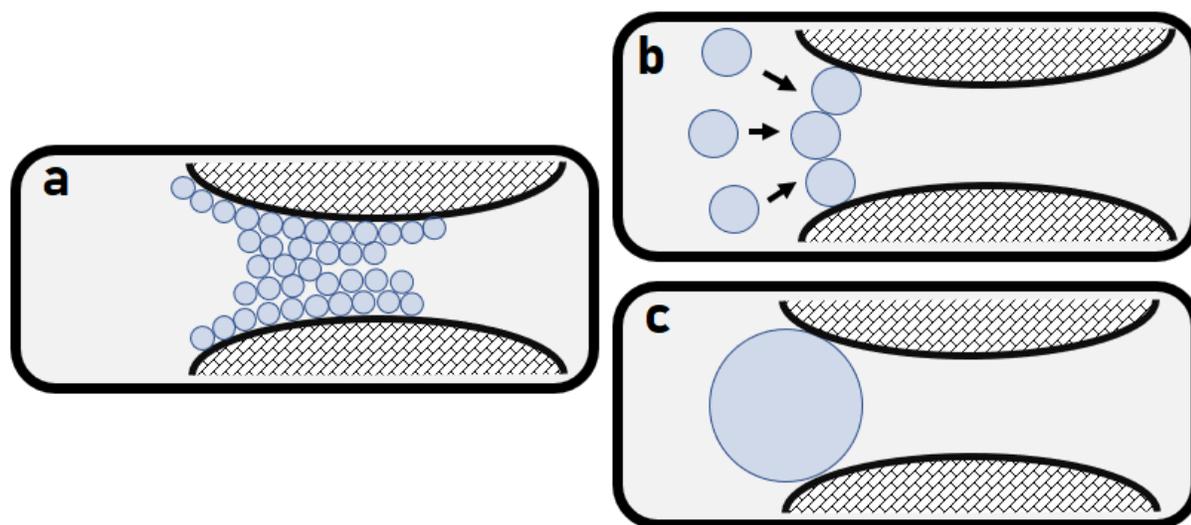


FIGURE 1.17 – Schémas représentatifs des différents mécanismes qui induisent au colmatage des canaux à l'échelle de pore. a) Agrégation, b) pontage, c) tamisage

Ces trois comportements sont retrouvés dans plusieurs autres systèmes qui ont été étudiés de façon très détaillée tels que les sabliers [72] et les silos [73, 74]. Ceux-ci sont des milieux granulaires secs régis par la gravité, et leur mode d'écoulement est défini essentiellement par le rapport entre la taille des particules et la taille de la constriction ainsi que la forme des particules [75].

Les études réalisées autour des écoulements de suspensions à l'échelle du pore ont pu identifier trois principaux mécanismes de colmatage : Agrégation, tamisage et pontage. La figure 1.17 reporte des schémas représentatifs de chaque mécanisme.

1.3.2.1 Tamisage

Le tamisage est un mécanisme qui se produit lorsqu'une particule est assez grande pour entrer dans un pore (figure 1.17-a). Il ne se restreint pas uniquement aux particules isotropes mais également aux particules non rigides et anisotropes. Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser uniquement aux particules rigides isotropes vu qu'elles sont les particules utilisées dans cette thèse, et dans ce cas le tamisage sera considéré comme étant un mécanisme purement géométrique. Il est connu surtout dans les processus de

filtration, que ce soit dans le but sélectionner des particules à la base de leur taille [76, 77] ou de séparer les particules du liquide [49, 78]. Cette dernière technique qui très utilisée dans nombreuses applications industrielles et qui a fait l'objet de plusieurs études qui ont enrichie la littérature [79, 80, 81, 82] surtout en utilisant des mesures macroscopiques et des modèles théoriques .

Mais récemment le tamisage est étudié à l'échelle du pore en utilisant des outils microfluidiques [83, 84]. Sauret et al [84] ont développé une méthode, basée sur ce mécanisme, qui permet de mesurer une faible concentration de grands contaminants dans des suspensions de particules solides de taille micrométrique. La suspension est injectée à travers une série de constriction de section variable (figure 1.23). Le bouchage des constriction permet d'estimer la concentration de contaminants dont la taille est sélectionnée par la géométrie du dispositif microfluidique et de mesurer la croissance du gâteau de filtration.

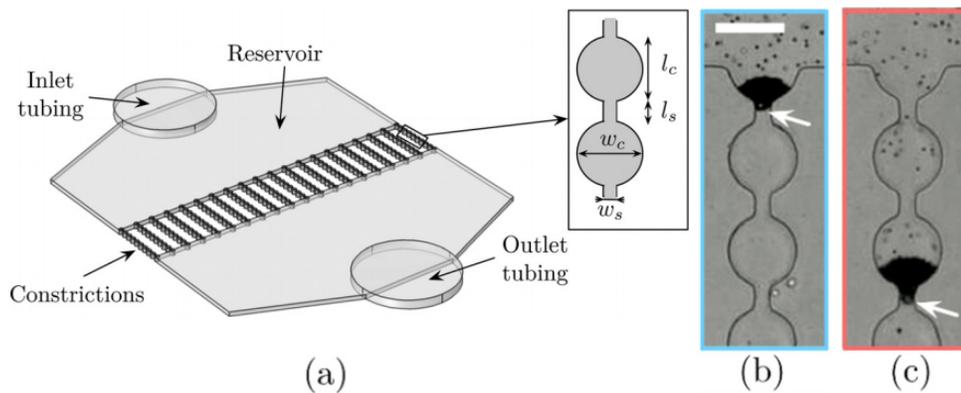


FIGURE 1.18 – a) Schéma d'installation expérimentale : suspension colloïdale injectée à travers des microcanaux parallèles ($w_c = l_c = 50 \mu m$, $w_s = 10 \mu m$ et $l_s = 20 \mu m$). b) bouchon formé lorsqu'un gros contaminant obstrue un microcanal à l'entrée. c) bouchon formé plus loin à l'intérieur d'un microcanal. [84]

Cette technique s'avère assez efficace vu qu'elle permet de caractériser les suspensions commerciales. En effet, la majorité des études sont basées sur des suspensions qui sont supposées être monodisperses, alors que les suspensions commerciales ne sont parfaitement ainsi vu la présence d'un pourcentage faible ($\sim 1\%$) de grosses particules ($D_{grosses} \sim D_{monodisperse} \times 4$ ou 5). Ce pourcentage peut changer énormément dans la dynamique de colmatage, c'est pourquoi cette technique utilisée est intéressante dans la caractérisation de la suspension et la quantification de la quantité de grosses particules à travers la mesure de la distribution des temps de colmatage dans les microcanaux [84, 85]. Nous allons voir plus tard dans la partie des résultats l'importance de cette étape de tamisage dans notre protocole expérimental et son rôle dans la définition du type de mécanisme qui conduit au colmatage et la définition du régime de colmatage.

Dernièrement Gerber et al [86] ont pu bien décrire la dynamique du dépôt de particules non colloïdales par tamisage (exclusion géométrique), moyennant un écoulement de billes

de polystyrène dans un milieu poreux modèle 3D composé de grains de verre 1.19.

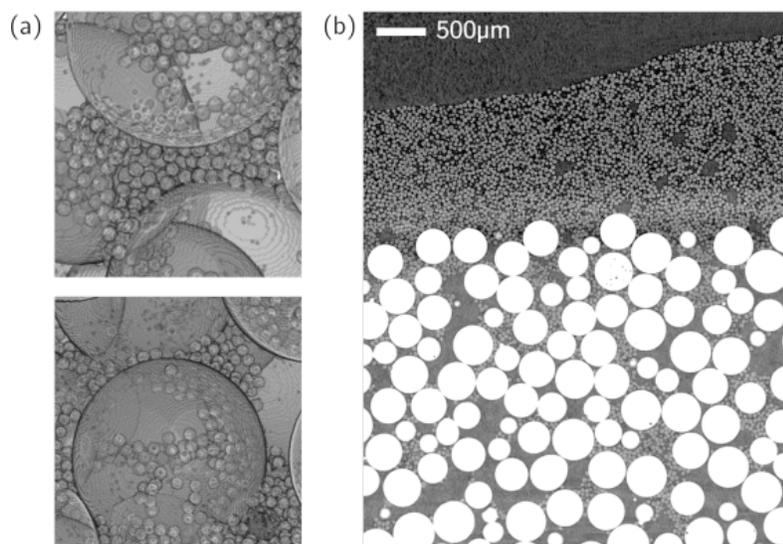


FIGURE 1.19 – a) Vues 3D de particules de polystyrène bloquées entre les grains de verre (milieu poreux). (b) Coupe 2D xy du système : grains en blanc, particules en gris clair.[86]

Ils ont montré que le colmatage se produit essentiellement sous la forme d’une accumulation d’éléments dans des clusters de taille de pores, qui constituent finalement des régions évitées par l’écoulement. Les clusters sont dispersés dans le milieu, et leur concentration décroît avec la distance à l’entrée ; l’agglomération est associée à l’étape finale de cet effet (pour une concentration critique de cluster à l’entrée). Ils ont proposé un modèle probabiliste simple qui prend en compte l’impact du colmatage sur le transport des particules, et qui permet de prédire quantitativement toutes ces tendances jusqu’à une grande concentration de clusters, à partir d’un seul paramètre : la probabilité de colmatage, qui est fonction du rapport de confinement.

1.3.2.2 Pontage

Le pontage est un mécanisme géométrique qui signifie la formation d’une arche ou d’un pont de particules au niveau d’une constriction. Il est très courant dans les écoulements granulaires et il est piloté d’après l’étude de Roussel et al [87] par la probabilité de présence de particules devant les trous, basée sur le rapport taille des particules/trous et la fraction solide de la suspension. Dans cette étude, une suspension de grains de 3mm a été injectée à travers une grille (tamis) de mailles carrées de 5 mm (voir figure 1.20a) et il a été conclu que le nombre moyen de particules impliquées par pont est de $n = 2,34$. La plupart des études se sont focalisées sur l’aspect du rapport de taille particule/pore et il a été démontré que le pontage se produit surtout lorsque $D_{pore}/D_{particules}$ est situé entre 2 et 4 [89, 90] à condition que la fraction volumique de la suspension soit élevée [91, 92] pour que suffisamment de particules puissent arriver au même temps et de bloquer la constriction[93, 88].

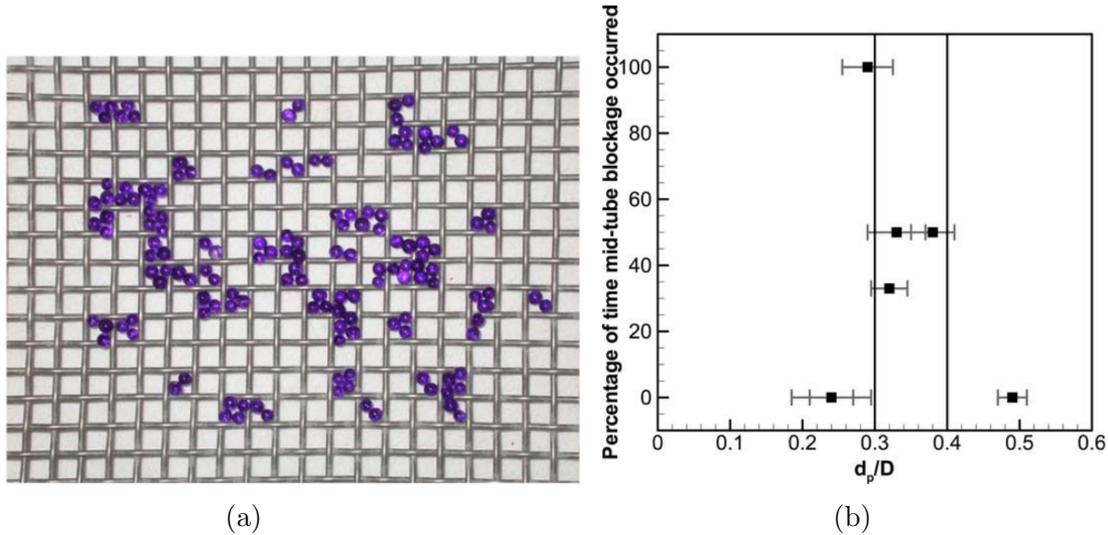


FIGURE 1.20 – a) Ponts formés par des grains de 3 mm sur un tamis carré de 5 mm. Un nombre moyen de particules impliquées par pont $n = 2,34$ [87]. b) Pourcentage de blocages par pontage des microcanaux en fonction du rapport $D_{particules}/D_{pore}$ [88].

D'autres études parlent du pontage même pour un rapport $D_{pore}/D_{particules}$ qui peut aller jusqu'à 10 [85, 90, 94] mais au delà de 4 l'arche devient très fragile et une simple perturbation d'écoulement peut le déstabiliser et le détruire facilement. La figure 1.20b de Sharp et al [88] représente le pourcentage de blocage par pontage des microcanaux microfluidiques circulaires en fonction du rapport $D_{particules}/D_{pore}$ et montre justement que lorsque $D_{pore}/D_{particules} \in [2, 4]$ le pourcentage de pontage dépasse les 30% et peut atteindre 100% pour $D_{pore}/D_{particules} \sim 3.5$.

Dans le même sens, nous avons effectué des expériences préliminaires à l'échelle du pore en utilisant un canal microfluidique de dimension $100\mu m \times 60\mu m$ contenant un col dans la largeur minimale est $30\mu m$. Nous avons injecté une suspension dense de particules monodisperses de $6\mu m$ et nous avons observé le mécanisme de pontage qui se produit dans le col, plus exactement au niveau de la largeur $36\mu m$ (comme le montre la figure la canal prend la forme d'un sablier). Une série d'image de l'expérience est donnée sur la figure 1.21. Le pontage a eu lieu après 24s de l'injection, puis le fluide a continué à s'infiltrer lorsque le canal est bloqué. L'expérience avait montré que l'écoulement est intermittent. Cette intermittence est due au mécanisme construction/destruction de ponts, elle est particulièrement perturbatrice car elle entraîne des variations locales de concentration des particules. Le rapport $D_{pore}/D_{particules}$ dans ce cas est égale à 6 ce qui confirme le fait que le pontage peut avoir lieu au delà d'un rapport de 4.

À part le rapport particule/pore et la concentration de la suspension [90], l'occurrence des évènements du pontage a été liée à la présence d'un obstacle au sommet de la constriction

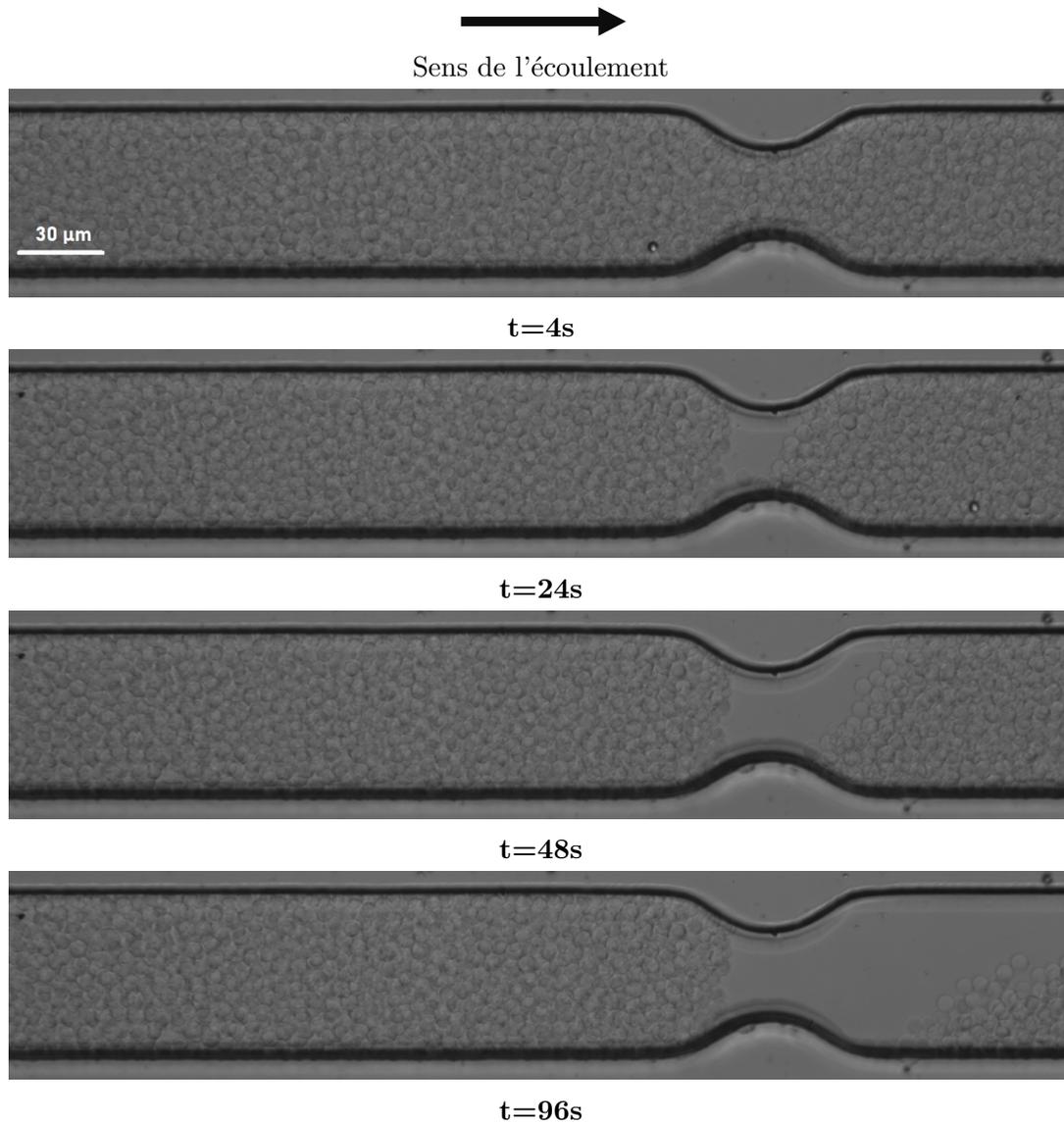


FIGURE 1.21 – Séquence d’images d’un canal contenant un col (forme d’un sablier) lors de l’injection d’une suspension dense de particules ($D_{par} = 6 \mu m$) à $Q = 50 \mu l/min$. Les images sont prises après : 4s, 24s, 48s, 96s de l’injection. La largeur du canal est $60 \mu m$ et son épaisseur est de $100 \mu m$ et la largeur de la section au niveau de laquelle l’arche est construite est de $36 \mu m$.

comme il est montré sur la figure 1.22.

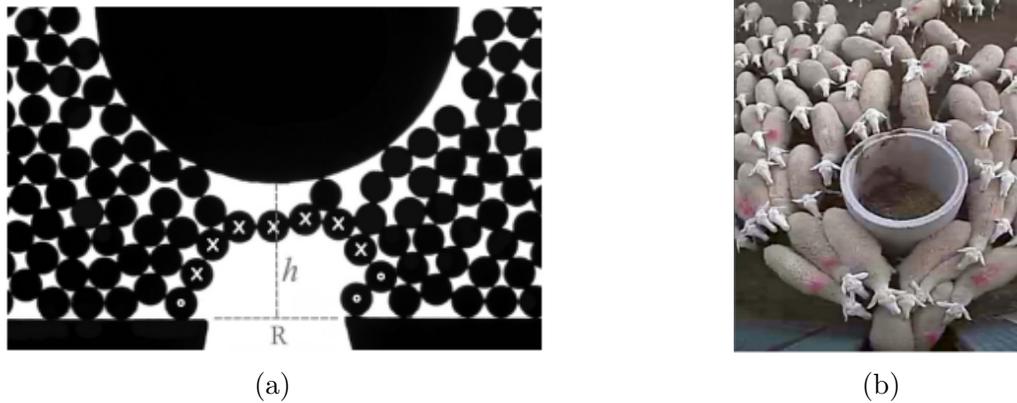


FIGURE 1.22 – a) Photographie d'une arche formée au-dessus de l'exutoire. R est la longueur (taille) de la sortie et h est la distance entre le bas de l'obstacle et la sortie. Les particules formant l'arche sont indiquées par des croix et les particules formant la base de l'arc sont indiquées par des cercles [95]. b) Écoulement de moutons à travers un goulot d'étranglement : photo prise près de la porte lors d'un essai réalisé en plaçant un obstacle devant celle-ci [71].

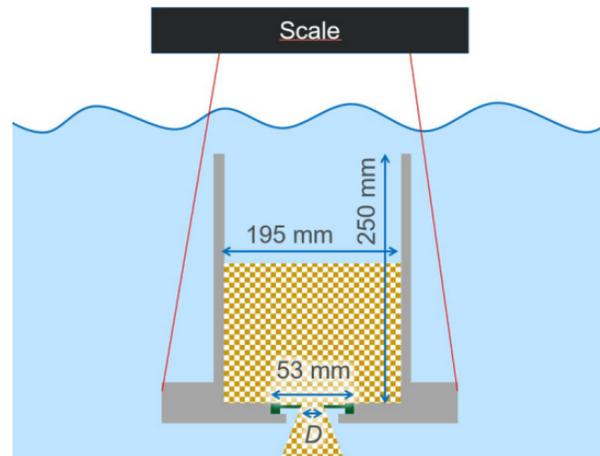


FIGURE 1.23 – Illustration schématique de l'appareil de colmatage, représenté en coupe verticale. La trémie (en gris) est cylindrique et suspendue à une balance numérique (en noir). Un orifice de diamètre réglable, D , s'insère dans une dépression de la plaque de fond. Les parois et la plaque de fond sont en polycarbonate, respectivement de 6 et 13 mm d'épaisseur. Les grains en écoulement sont indiqués par un ombrage brunâtre. Le cas sec est identique, sauf que le fluide (bleu clair) est absent. Notez que le sommet de la trémie est ouvert, de sorte qu'il n'y a pas de reflux d'air ou d'eau dans la trémie lorsque les grains sortent.[96]

Ces obstacles changent les conditions de pressions locales et diminuent ainsi la probabilité de colmatage [71, 95]. Ceci est en accord avec le fait que les perturbations d'écoulement déstabilisent les ponts, telles que la présence de tourbillons en rotation qui empêchent les arches à perdurer [97].

Bien qu'elles ne soient pas faites à l'échelle microfluidique, des études récentes [98] ont tenté de décrire le mécanisme localement et apporter plus de résultats qui devraient aider les efforts en cours pour comprendre de plus en plus le mécanisme de pontage. Koivisto et al ont étudié, moyennant un système entièrement immergé sous l'eau, la nature des évènements d'écoulement pour la décharge de billes. Cette décharge est faite par gravité à travers un trou suffisamment petit pour que la trémie soit susceptible de se boucher. Ils ont comparé la décharge à sec et sous l'eau et ont constaté que les micro-états d'écoulement qui provoquent la formation d'un bouchon stable sont liés à la fois au rapport taille particule/pore et aux conditions de mouillage et que les variables microscopiques cruciales sont les positions des grains. Les moments des grains ne jouent qu'un rôle secondaire dans la déstabilisation des arcs.

1.3.2.3 Agrégation

L'agrégation est un mécanisme de colmatage basé sur les interactions particules/paroi ou particules/particules. Il est différent du tamisage et du pontage qui sont des mécanismes purement géométriques dans le cas des particules rigides. Il se traduit par un dépôt successif de particules colloïdales qui adhèrent à la paroi puis s'accumulent pour former des agrégats. Donc l'élément le plus important permettant de déclencher le mécanisme d'agrégation est l'interaction particule/paroi puis par la suite vient le rôle des interactions particules/particules [99]. Il faut savoir qu'un petit changement dans les propriétés de surface a des conséquences importantes sur la façon dont le colmatage des pores se produit. Par exemple Bacchin et al ont montré [99] que lorsque les parois de PDMS sont hydrophobes les particules forment des arches à l'entrée des microcanaux et le colmatage se produit pour des raisons géométriques (figure 1.24). Alors qu'à conditions hydrophyles les particules sont capturées sur les parois et le colmatage se produit à cause de l'agrégation (figure 1.25).

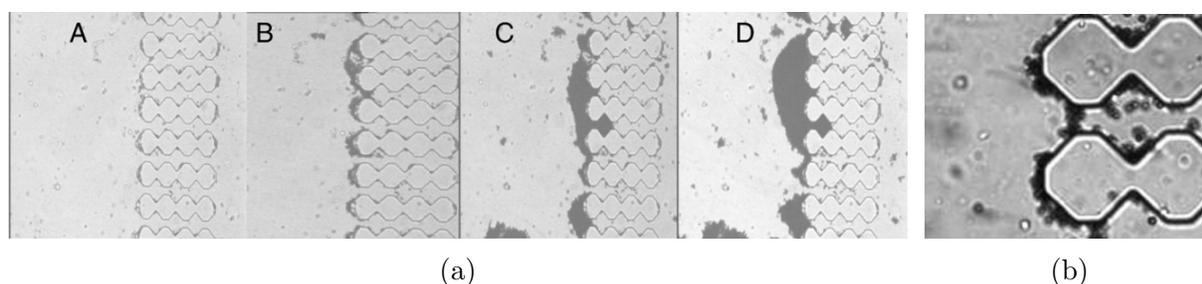


FIGURE 1.24 – a) Observation de la capture des particules après un conditionnement du microséparateur avec de l'eau ultrapure (conditions hydrophobes). L'image A a été prise à $t_0 + 1$ min, l'image B à $t_0 + 20$ min, l'image C à $t_0 + 45$ min et l'image D à $t_0 + 90$ min. b) Observation des premières étapes de la capture des particules dans les conditions hydrophobes (image prise 30s après le début de l'expérience de filtration)[99].

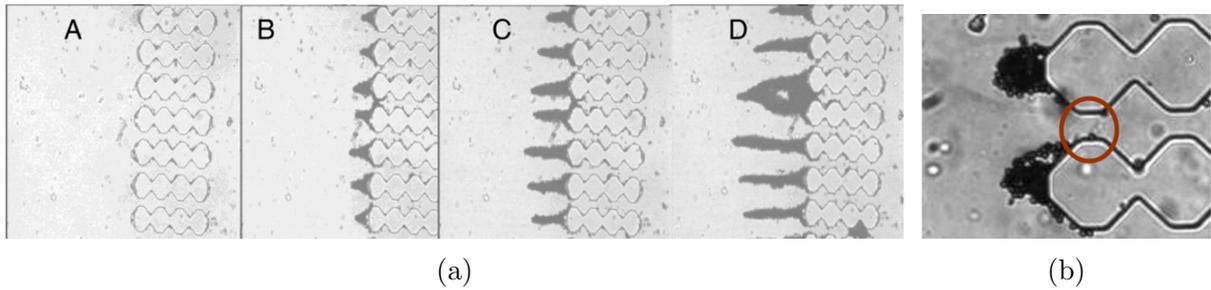


FIGURE 1.25 – a) Observation de la capture des particules après un conditionnement du microséparateur avec une solution de KCl (conditions hydrophiles). L'image A a été prise à $t_0 + 1$ min (à t_0 , la suspension commence à s'écouler dans les microcanaux), l'image B à $t_0 + 20$ min, l'image C à $t_0 + 45$ min et l'image D à $t_0 + 90$ min. b) Observation des premières étapes de la capture des particules dans les conditions hydrophiles (image prise 60s après le début de l'expérience de filtration)[99].

Pour mieux comprendre, des études [100, 101] ont essayé d'expliquer comment à l'échelle du pore le processus de colmatage par agrégation se produit. En effet, la première étape consiste à ce que la paroi capture les premières particules, comme ce qui est montré sur la figure 1.26-a. Puis deux cas de figure se présentent après les premiers dépôts [101] :

- le premier cas où les particules ne peuvent pas se rapprocher les unes des autres à cause d'une barrière électrostatique qui se forme (une forte répulsion interparticulaire). Dans ce cas les particules se contentent de s'accrocher à la paroi et forment une seule couche et pas un agrégat, mais à condition que les vitesses des particules soient inférieures à une vitesse critique. Ici l'agrégation seule ne peut pas causer un colmatage complet du canal sans qu'elle soit combinée aux autres mécanismes géométriques (pontage et tamisage).
- le deuxième cas correspond à un dépôt multicouche. Pour arriver à un agrégat composé de plusieurs couches, il faut d'abord réduire la répulsion interparticulaire par l'ajout d'un électrolyte et travailler dans des conditions de sorte que le débit soit suffisamment élevé pour que les forces hydrodynamiques agissant sur une particule en écoulement à proximité d'une particule déposée puisse surmonter la répulsion interparticulaire nette. À ce moment, les particules peuvent se rapprocher les unes des autres et former des agrégats.

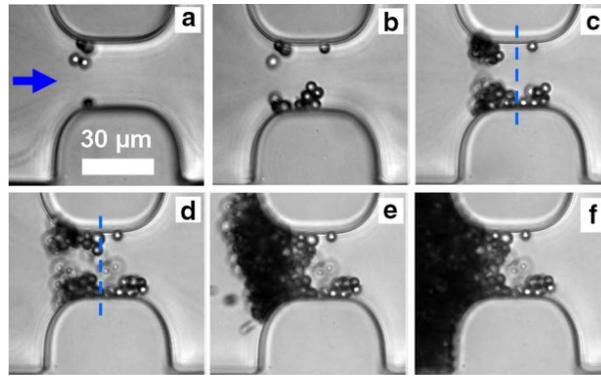


FIGURE 1.26 – Images successives du colmatage d’un pore court par des particules de $4\ \mu\text{m}$. Les images correspondent aux temps suivants : 4, 9, 12, 16, 22,5, 24 min. Chaque minute, 6.8×10^4 particules passent à travers le pore. Les lignes bleues pointillées en c et d correspondent au milieu du pore. a, b Dépôt des premières particules à l’entrée du pore dans les coins. c, d Croissance de deux agrégats sur les côtés opposés du pore, à l’entrée de la moitié du pore. Ces agrégats croissent jusqu’à ce qu’ils fusionnent et bouchent le pore (e, f). Nous avons imposé une pression afin d’obtenir un débit au début de l’expérience égal à $1.6\ \mu\text{l}/\text{min}$. [102]

Par conséquent, la dynamique du processus de colmatage par agrégation de particules résulte de la combinaison des forces hydrodynamiques et des forces de surface, comme il a été rapporté dans d’autres études [103, 104].

1.3.3 Aperçu sur l’effet du débit

Maintenant que nous avons fait le tour des différents mécanismes de colmatage à l’échelle du pore et avant de passer à la problématique de la thèse, nous allons essayer de répondre à une question fondamentale dans cette thèse qui est la suivante : **Quel est l’effet du débit sur le colmatage des milieux poreux ?**

Un certain nombre d’études ont essayé de trouver une corrélation entre le débit et le colmatage des milieux poreux mais elles n’ont pas pu conclure la même chose. Dans les premiers travaux de Wyss *et al*, le colmatage s’est avéré indépendant du débit [83], même chose pour Dersoir *et al* qui ont montré qu’il existe un régime dans lequel le colmatage ne dépend pas de la pression appliquée [102]. Dans l’exemple suivant (figure 1.27), dans le cadre de l’étude de Wyss *et al* sur le colmatage des micro-canaux à l’échelle d’un seul pore en utilisant des dispositifs microfluidiques comme milieux poreux modèles, le rapport des canaux bouchés est représenté en fonction du temps pour deux pressions appliquées ($\Delta p = 2\ \text{psi}$ et $\Delta p = 4\ \text{psi}$).

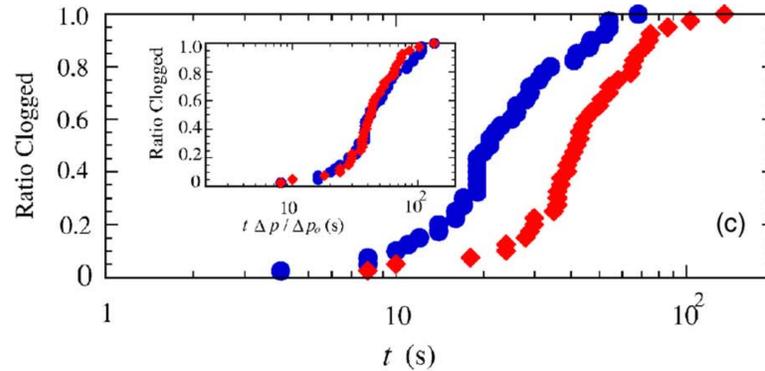


FIGURE 1.27 – Dépendance de la pression appliquée : Le rapport des canaux bouchés en fonction du temps à différentes pressions appliquées. $\Delta p=2$ psi diamants rouges, $\Delta p=4$ psi cercles bleus. Encart : tracé des mêmes données avec le temps normalisé par la différence de pression relative $\Delta p/\Delta p_0$ ($\Delta p_0=2$ psi). [69]

Ce qui est constaté est que lorsque le temps est normalisé par la différence de pression relative, ce qui revient à compter le nombre de particules qui passent à travers les pores, les courbes des deux pressions appliqués se chevauchent. Cela veut dire que la variation de pression n'a aucun effet sur le nombre de canaux bouchés. Ainsi Wyss et al ont montré que pour ce cas de figure le colmatage ne dépend pas de la pression ou du débit d'injection.

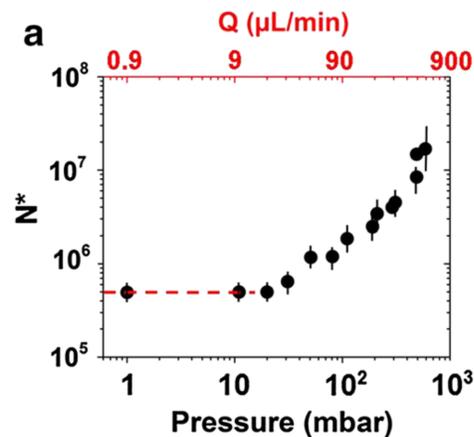


FIGURE 1.28 – Variation de N^* (le nombre total de particules qui passent à travers un pore avant qu'il ne soit bouché) en fonction de la pression appliquée. Écoulement d'une suspension de particules de $3 \mu m$ à travers des pores de taille $21.5 \mu m \times 21.5 \mu m$. [102]

D'autre part, certaines études ont montré que le colmatage dépend du débit, sauf que cette dépendance n'est pas toujours dans le même sens. En effet, dans certains cas il a été montré que l'augmentation du débit favorise le colmatage [62, 102, 105, 106, 107, 108] alors que dans d'autres cas c'est le contraire qui a été prouvé [108, 109]. Cette divergence est principalement due à l'existence de plusieurs mécanismes de colmatage. Nous prenons l'exemple de l'étude établie par Dersoir et al du colmatage d'un filtre microfluidique à

l'échelle d'un seul pore. Sur la figure 1.28 est tracé N^* le nombre total de particules qui passent à travers un pore avant qu'il ne soit bouché en fonction de la pression appliquée et du débit appliqué. N^* reste constant jusqu'à une certaine valeur de pression puis au delà de cette valeur elle augmente de façon linéaire avec la pression. Cela veut dire que l'augmentation du débit ou de pression favorise le passage des particules à travers les pores et donc défavorise le colmatage. Ainsi Dersoir et al ont montré que pour ce cas de figure le colmatage dépend de la pression ou du débit d'injection

La question qui se pose maintenant c'est : **Comment pouvons-nous expliquer le fait que le colmatage dépend dans certains cas du débit et dans d'autres cas non ?**

- Pour le cas où il n'y a pas d'interactions, il s'agit d'un colmatage géométrique dans lequel seules les forces hydrodynamiques et les forces de contact sont mises en jeu. Mais les forces de contact ne sont que la résultante des forces hydrodynamiques, ce qui veut dire dans ce cas qu'il ne s'agit pas d'une compétition entre les deux forces. Cet aspect est illustré sous forme de schéma sur la figure 1.29-a
- Pour le cas où il y a des interactions, la force hydrodynamique et la force d'interaction sont en compétition. Quand la force hydrodynamique est négligeable les particules restent attachées aux parois. Au delà d'un certain débit, les forces hydrodynamiques deviennent de même ordre que les forces d'interactions et dans ce cas le colmatage commence à avoir une dépendance du débit, jusqu'à un certain point où les forces d'interactions deviennent négligeables. (figure 1.29-b)

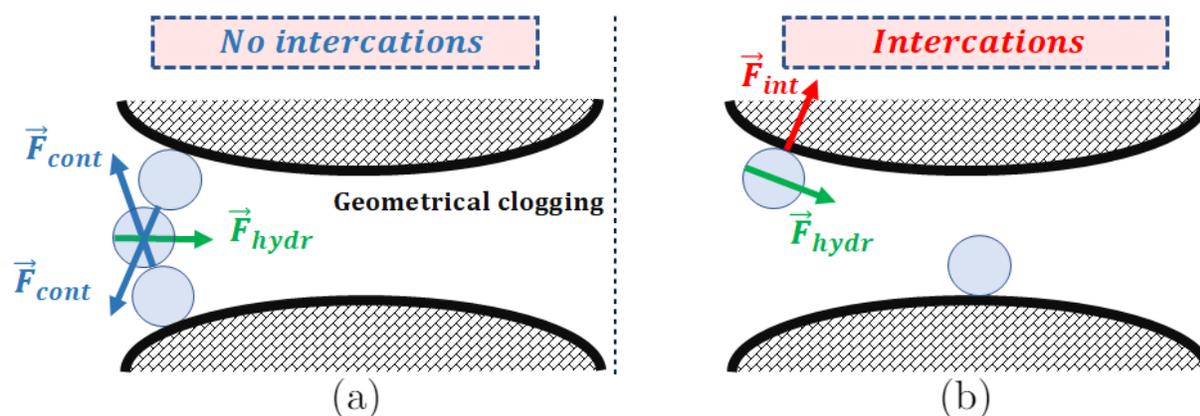


FIGURE 1.29 – Schéma explicatif des forces appliquées sur les particules dans le cas des interactions et sans interactions

Quant à l'effet de la fraction massique, il a été démontré que plus la suspension est concentrée plus la probabilité de colmatage est élevée. Sauret et al [84] ont montré (cf figure 1.30) que Le nombre total de particules qui s'écoulent à travers un microcanal est proportionnel au volume de la suspension et à la fraction volumique de solide. Par

conséquent, l'intervalle moyen de colmatage $\langle t_{clog} \rangle$ prendra la forme suivante :

$$\langle t_{clog} \rangle \propto \frac{1}{\phi \Delta p} \quad (1.22)$$

où ϕ est la fraction solide et Δp est le gradient de pression à travers le dispositif.

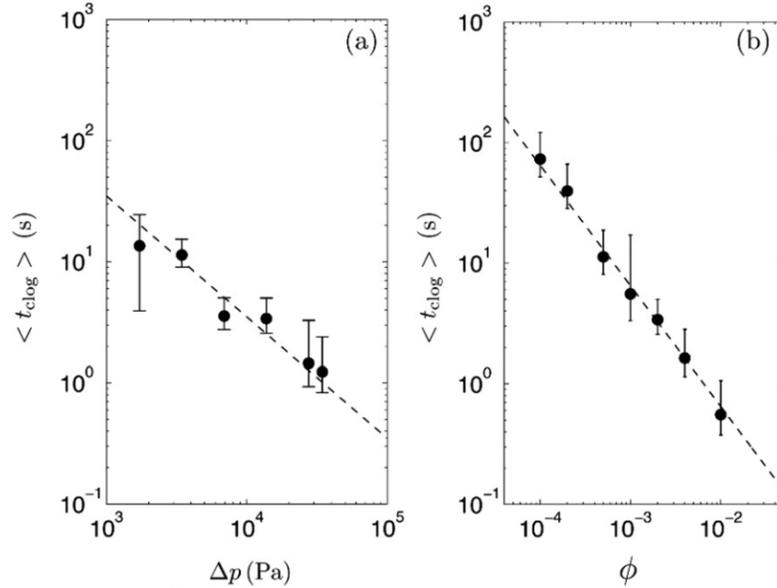


FIGURE 1.30 – a) Évolution du temps moyen de colmatage en fonction de la différence de pression à travers le dispositif pour $\phi = 0.2\%$. La ligne en pointillés a une pente proportionnelle à $1/\Delta p$. b) Évolution du temps moyen de colmatage en fonction de la fraction volumique des particules ϕ pour $\Delta p = 13,8$ kPa où la ligne en pointillés a une pente proportionnelle à $1/\phi$ [84]

1.4 Problématique et cadre de l'étude

Nous avons vu que que l'écoulement de suspensions de particules dans des milieux poreux présente un grand intérêt dans de nombreuses applications industrielles et naturelles, et que celui-ci peut conduire au phénomène de colmatage. Ce phénomène à son tour peut avoir des effets néfastes sur l'efficacité et la durée de vie de plusieurs systèmes. C'est pourquoi les chercheurs ont entamé pendant le siècle dernier des études pour mieux comprendre les processus qui régissent le colmatage des milieux poreux afin de diminuer ou même écarter ses effets indésirables. Les premières études étaient à l'échelle macroscopique. Elles ont donné un coup de pouce dans la compréhension, ont fourni des éléments de base essentiels pour poursuivre le chemin de recherche et ils continuent jusqu'au jour d'aujourd'hui à apporter de nouvelles réponses sur différents aspects. Puis avec les avancées technologiques, il a été possible de d'étudier le phénomène de près grâce à la microfluidique qui s'est avérée un outil efficace pour étudier les écoulements confinés à l'échelle du

pore. Les études réalisées à cette échelle, ont permis de mettre en évidence les principaux mécanismes responsables du colmatage des milieux poreux, à savoir le tamisage (exclusion de taille), le pontage et l'agrégation. Ces mécanismes sont donc compris à l'échelle du pore mais ce qui manque dans l'état actuel de connaissance est le passage à l'échelle du milieu poreux. C'est une problématique de changement d'échelle qui est classique aux milieux poreux mais qui n'est pas très simple sur ce problème. Par conséquent, la première question à laquelle nous allons répondre est :

Comment est-ce que ces mécanismes passent de l'échelle de pores au colmatage du milieu poreux ?



En effet pour ce faire il faut qu'on regarde s'il existe des effets collectifs, à savoir si le colmatage d'un pore est affecté par le colmatage des pores voisins. Et récemment Liu *et al* ont montré que les pores bouchés modifient les conditions d'écoulement et favorisent un nouveau colmatage à proximité [108], plus précisément le colmatage d'une constriction est plus rapide lorsque le nombre de constriction voisines colmatées est plus important. Ils ont également montré à travers ce travail (figure 1.31) que le colmatage dépendant (en rouge : les constriction les plus proches de la constriction étudiée) diminue la perméabilité du milieu poreux plus efficacement que le colmatage indépendant (en bleu : les constriction du deuxième niveau). La question posée est donc une question légitime puisque les pores ne sont pas indépendants les uns des autres ce qui justifie le besoin d'étudier le colmatage à une échelle intermédiaire (du milieu poreux).

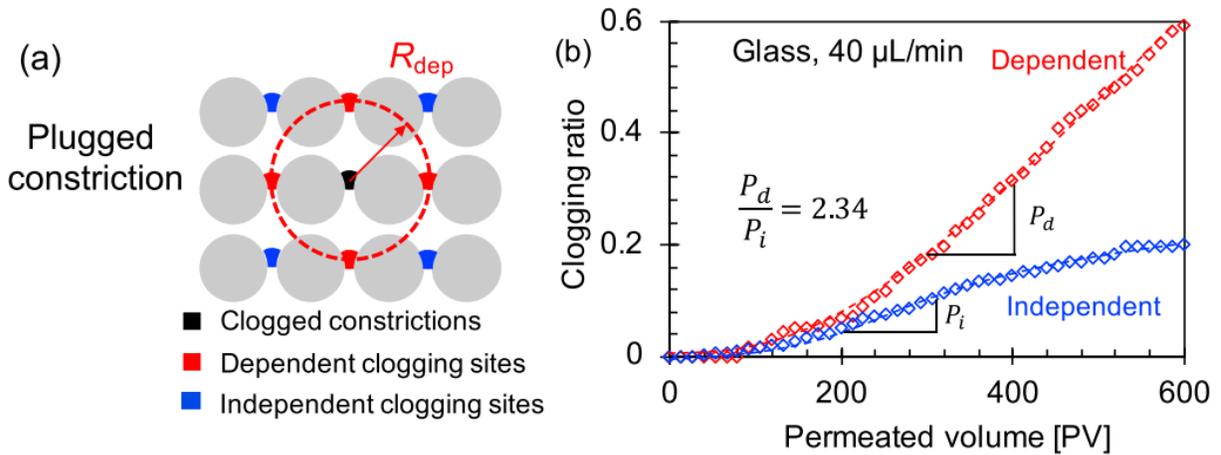


FIGURE 1.31 – Colmatage dépendant versus indépendant. (a) Définition du colmatage dépendant. (b) Rapports cumulés de colmatage dépendant et indépendant pour des particules de verre à un débit $Q = 40 \mu\text{l}/\text{min}$. Le rapport de colmatage est $\sum \Delta N / N_{ava}$ où ΔN est le nombre incrémental de constriction de pores colmatées et N_{ava} est le nombre de constriction de pores ouvertes.

L'autre aspect qui a été peu étudié dans la littérature est l'aspect des suspensions concentrées, par ce que souvent ce qui est injecté c'est des suspensions diluées. Dans ce sens, on se pose la question de savoir ce qu'il en ait des suspensions plus concentrées.

Qu'en est-il des suspensions plus concentrées?



Dans ce sens, Remond a montré que dans le cas du pontage [110], la proportion des particules piégées augmente presque linéairement avec la fraction volumique ϕ même pour des suspensions concentrées ($\phi = 30\%$) comme il est montré sur la figure 1.32. Ce qui veut dire qu'il est intéressant d'étudier cet aspect.

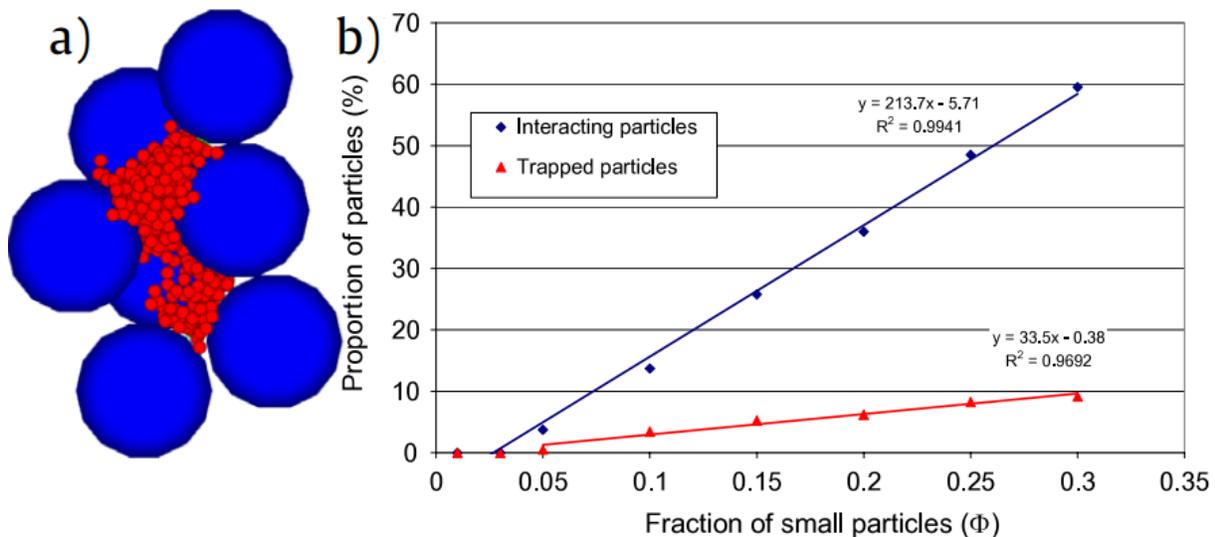


FIGURE 1.32 – (a) Vue de dessus d'un cluster à la fin de la simulation numérique. Les petites particules en rouge sont les particules piégées. (b) Variation de la proportion de particules en interaction et de particules piégées en fonction de ϕ pour un coefficient de friction de 0.3.

En régime dilué c'est l'hydrodynamique qui gouverne l'écoulement. Mais lorsque la fraction volumique ϕ dépasse les 20%, il y a tout un ensemble de phénomènes qui vont intervenir.

Le premier est la migration des particules : à cause des collisions entre particules on observe une migration des particules vers les zones de faible cisaillement. Par exemple sur l'écoulement de Poiseuille les particules vont se retrouver au milieu comme ce qui est montré sur la figure 1.33

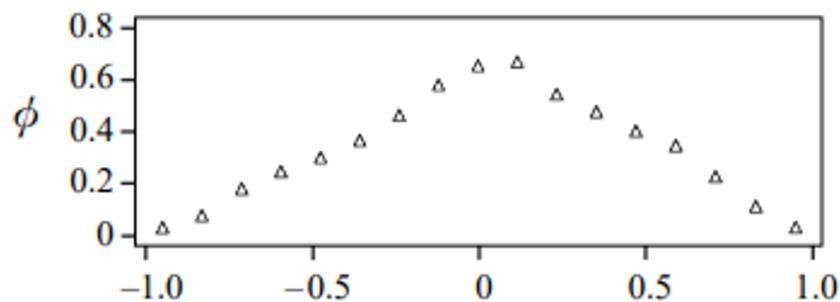


FIGURE 1.33 – Profil de la fraction volumique des particules dans un écoulement de Poiseuille

Le deuxième phénomène est le phénomène des forces normales : c'est la fraction volumique ϕ augmente on mesure des forces normales qui ne sont plus négligeables et qui sont de l'ordre de grandeur des forces tangentielles comme ce qui est montré sur la figure 1.34 :

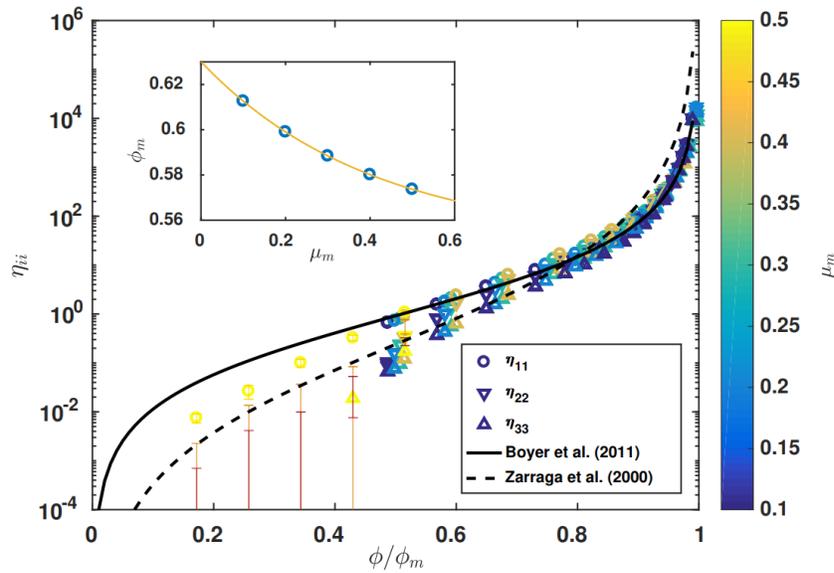


FIGURE 1.34 – Viscosités normales issues d’expériences de cisaillement simple en fonction de ϕ/ϕ_m [111]

Et on retrouve d’autres phénomènes comme le rhéoépaississement et la rhéofluidification traduisant le fait que la viscosité n’est plus constante en fonction du taux de cisaillement à forte fraction volumique.

Cadre de l’étude

Enfin, pour donner un cadre à notre travail nous avons fondé notre étude sur les trois points (objectifs) suivants :

- Colmatage géométrique par pontage sans interactions
- Suspensions concentrées et semi-diluées
- Échelle intermédiaire entre l’échelle du pore et celle du milieu pore

Ceci en utilisant une approche microfluidique qui permet d’avoir des observations directes et de contrôler la géométrie et les conditions d’écoulement.

Chapitre 2

Matériels et méthodes

Sommaire

2.1	Fabrication des milieux poreux modèles	55
2.1.1	Définition du masque du dispositif	55
2.1.1.1	Génération des milieux poreux aléatoires	55
2.1.1.2	Canaux d'alimentation	56
2.1.1.3	Masque complet	57
2.1.2	Création du moule par photolithographie	57
2.1.3	Fabrication des puces microfluidiques en PDMS	59
2.2	Formulation et caractérisation de la suspension	60
2.2.1	Cahier des charges et principe de la mesure	60
2.2.2	Les particules	62
2.2.2.1	Caractéristiques des particules	62
2.2.2.2	Évaluation de la monodispersité des particules : quantification du nombre de grosses particules	63
2.2.2.3	Processus de tamisage	64
2.2.3	Efficacité du processus de tamisage	65
2.2.4	Le fluide	67
2.2.4.1	Choix du fluide	67
2.2.4.2	Méthodologie de dosage	68
2.2.5	Rhéologie de la suspension	70
2.2.6	Tentative de mesures en lumière blanche	71
2.2.7	Mesure en microscopie à fluorescence	72
2.2.7.1	Principe de la microscopie à fluorescence	72
2.2.7.2	Marquage des particules en fluorescence	73
2.2.7.3	Marquage du fluide suspendant en fluorescence	76
2.3	Matériel expérimental et protocole d'injection	78

2.3.1	Dispositif expérimental	78
2.3.2	Expérience à débit imposé	79
2.3.3	Expérience à pression imposée	80
2.3.4	Mesure de débit	81
2.3.5	Mesure de pression	83
2.3.5.1	Capteur de pression	83
2.3.5.2	Estimation des pertes de charges	84
2.4	Validation du dispositif expérimental	85
2.4.1	Caractérisation du gonflement du dispositif en PDMS	85
2.4.2	Calcul de la perméabilité	88
2.4.3	Traitement et analyse d'image	90
2.4.3.1	Protocole	90
2.4.3.2	Extraction des résultats	94
2.4.4	Reproductibilité	95
2.5	Perspectives : vers une cartographie du champ de concen-	
	tration	96
2.6	Conclusion	97

Le but de ce chapitre est de présenter les différents moyens mis-en-oeuvre pour l'élaboration d'un système expérimental et d'un protocole adaptés à l'étude du phénomène de colmatage dans des milieux poreux. Nous aborderons dans la première partie la définition du masque du milieu poreux modèle désordonné, ainsi que les modes opératoires ayant servi à la fabrication du dispositif micro-fluidique. Nous détaillerons ensuite les caractéristiques des fluides et des particules composant la suspension. Puis nous donnerons un aperçu du matériel utilisé pour l'injection de la suspension, la visualisation de l'écoulement au sein du milieu et la mesure de grandeurs physiques (pression, débit). Nous clôturerons ce chapitre sur les différents indicateurs mesurés et sur la méthode adoptée pour les extraire par traitement d'images.

Dans chaque partie, nous évoquerons aussi les différents problèmes rencontrés ainsi que des protocoles essayés n'ayant pas abouti.

2.1 Fabrication des milieux poreux modèles

La puce microfluidique adoptée est à base de PDMS (PolyDiMethylSiloxane) collé sur du verre. Sa fabrication utilise la technique de soft-lithography, très répandue en micro-fluidique depuis la fin du siècle dernier [112, 113]. Elle repose sur la création d'un moule dans lequel est coulé le PDMS. Après réticulation et démoulage, des trous sont percés pour connecter les tubes d'alimentation et le PDMS est collé sur du verre. Le moule a la faculté d'être utilisable plusieurs fois.

Les détails de conception et de fabrications du dispositif seront présentés plus en détails dans les paragraphes qui suivent.

2.1.1 Définition du masque du dispositif

La première étape de conception consiste à définir réaliser le masque du dispositif. Le micromodèle utilisé est composé de trois parties (figure 2.1 : le réseau d'injection en entrée (canaux d'alimentation), la partie poreuse et le réseau d'évacuation en sortie (canaux d'évacuation). La figure (2.1) représente le micromdèle utilisé :

2.1.1.1 Génération des milieux poreux aléatoires

Le milieu poreux dans la partie centrale du micromodèle a été généré à l'aide de Matlab avec une distribution de taille de pores et une forme aléatoires afin de telle sorte qu'il soit représentatif de l'aspect désordonné des milieux poreux réels. Le programme utilisé pour à fin permet de choisir un ensemble de paramètres tels que la porosité, un longueur typique de la distance pore-pilier, la largeur moyenne des pores, la présence ou non de branches mortes et des parties non connectée. Le principe de génération du milieu consiste à tirer des nombres aléatoires sur chaque point de l'espace de Fourier, de les pondérer par une

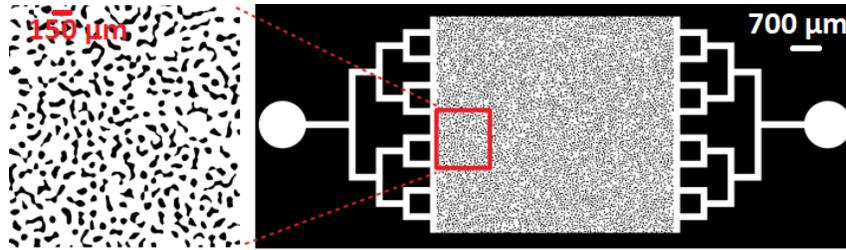


FIGURE 2.1 – Masque du milieu poreux modèle utilisé. En blanc sont représentées les zones de circulations du fluide et des particules. En noir sont représentés les murs et les plots

Gaussienne centrée sur le vecteur d'onde correspondant à la longueur de corrélation pore pilier souhaitée, avant de réaliser la transformée de Fourier inverse et de binariser l'image obtenue. Un exemple de motif obtenu est présenté sur la figure 2.1.

La partie poreuse fait $7,3\text{mm}$ de largeur et 8mm de longueur afin de pouvoir observer l'ensemble du dispositif sous microscope (voir paragraphe 2.4.3.1 pour des détails sur l'acquisition d'images). La porosité a été fixée à 0.76 et la longueur de corrélation à $80\mu\text{m}$ pour avoir environ 100 pores sur chacune des deux dimensions du milieu afin d'être plus proche de la réalité. Le diamètre moyen des pores est de $58\mu\text{m}$ et celui des piliers de $46\mu\text{m}$. La distribution de tailles de pores et des piliers sur masque est donnée par les deux histogrammes sur la figure 2.2.

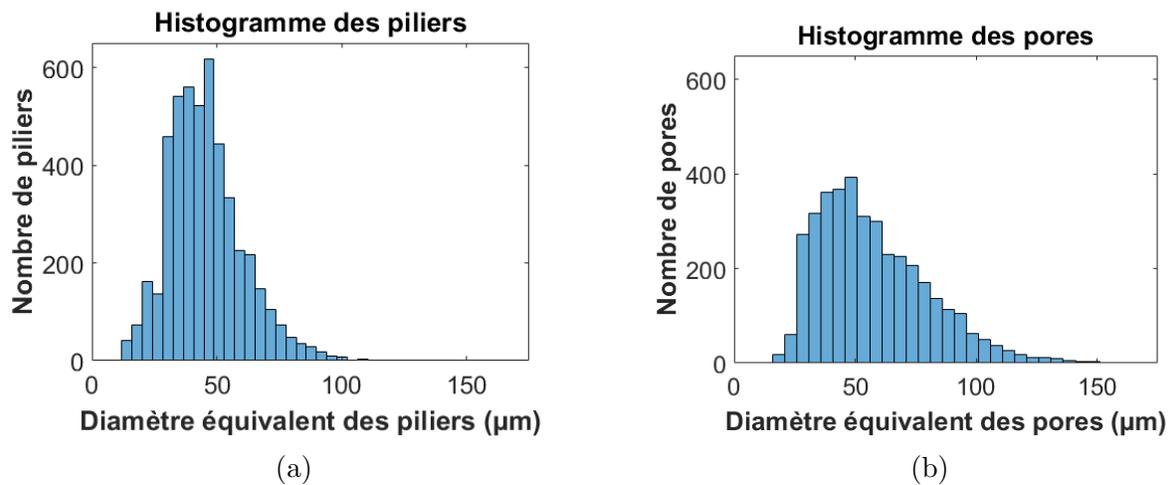


FIGURE 2.2 – a) Histogramme des piliers. b) Histogramme des pores.

2.1.1.2 Canaux d'alimentation

Les zones d'entrée et de sortie sont symétriques. Elles ont une forme de pattes arborescentes en 2^p (figure 2.4a) afin d'homogénéiser l'injection et avoir un front droit à l'entrée de la zone poreuse. Nous pouvons voir l'évolution d'un front d'injection de fluide suspendant dans le milieu poreux sur la figure (2.3).

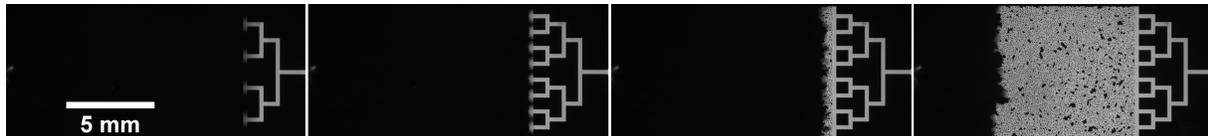


FIGURE 2.3 – Évolution du front d’injection lors de la pénétration du fluide dans le milieu poreux

La largeur des canaux dans les pattes fait $226\mu m$

2.1.1.3 Masque complet

Les dimensions du dispositif conçu permettent de mettre jusqu’à huit milieux poreux à la fois sur un seul wafer de diamètre (4 pouces = 10.16 cm). Ceci nous a permis d’optimiser le temps de fabrication du dispositif microfluidique. Le modèle final imprimé sur un masque est donné sur la figure 2.4b :

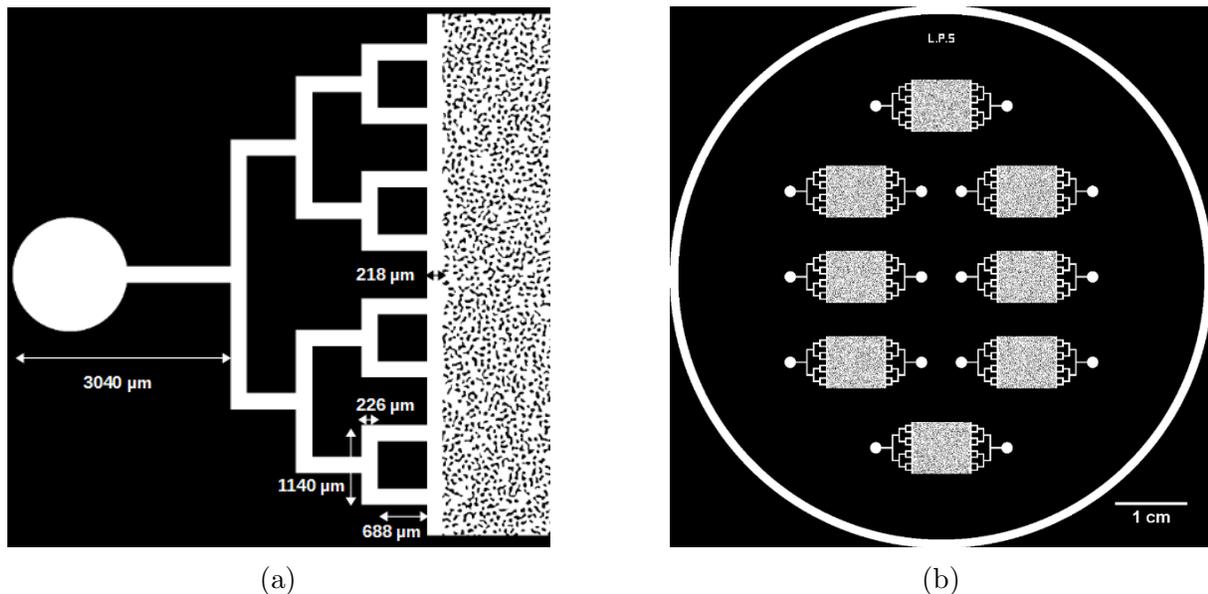


FIGURE 2.4 – a) Réseau d’injection : pattes arborescentes en 2^p . b) Masque entier comprenant huit milieux poreux modèles. En blanc sont représentées les zones de circulations du fluide et des particules. En noir sont représentées les murs et les plots

2.1.2 Création du moule par photolithographie

La création du moule se base sur la photolithographie qui veut dire le transfert d’une image dessinée sur un masque vers un substrat. Le substrat utilisé, dans notre cas est un wafer en silicium de 4 pouces (10,16 cm). Le principe de fabrication de façon générale repose sur les étapes suivantes synthétisées sur la figure 2.5 : préparation du wafer, dépôt d’une couche de résine sur le wafer, insolation puis développement de la résine.

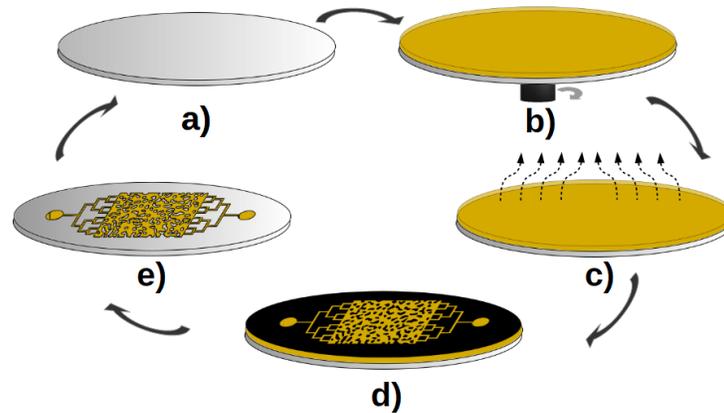


FIGURE 2.5 – Schéma du procédé de fabrication d'un moule par photolithographie : a) préparation du wafer, b) dépôt d'une couche de résine sur le wafer, c) pré-bake de la résine pour évaporer le solvant d) insolation, e) développement et traitement hydrophobe

La première étape dans ce processus consiste à déshydrater les wafers pendant 30 min à 200 C° . Ensuite la deuxième étape est de déposer une épaisseur constante de résine sur le wafer. Pour ce faire, plusieurs options sont possibles. Les deux plus utilisées sont :

1. l'étalement par centrifugation (spincoating) pour quelques types de résines tels que la SU-8.
2. la lamination d'une résine sous forme d'un film sec (DF-1000). L'avantage de cette technique est qu'elle est moins chère et plus courte que la précédente [114].

Notre moule a été fabriqué moyennant cette seconde technique de lamination en utilisant une résine négative, c'est-à-dire une résine pour laquelle les parties insolées sont réticulées. Concrètement pour cette étape, un film sec de $50\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur est laminé entre deux rouleaux avec une vitesse de $0,5\text{ m/min}$, sous une pression de $2,5\text{ bar}$ et une température de 100 C° [115]. L'étape d'après est l'insolation de la résine photosensible via une lampe à rayons ultraviolets de longueur d'onde 365 nm . La lumière passe à travers le masque plastifié pour réticuler les zones de circulations du fluide (partie en blanc dans le masque). Le paramétrage d'insolation dépend de l'épaisseur de la résine. La dose d'exposition qui s'exprime par le produit de l'intensité du rayonnement (énergie par unité de surface) par le temps d'exposition, est égale à 240 mJ/cm^2 pour une épaisseur de $50\text{ }\mu\text{m}$. Ensuite, nous faisons une précuisson du wafer afin d'évaporer le solvant de la résine. Les paramètres (rampe, température et durée de chauffage) du recuit dépendent généralement de l'épaisseur de résine déposée. Dans notre cas le recuit est fait à 100 C° pendant 6 min. L'étape suivante est le développement (pendant 5 min dans notre cas) dans un bain de cyclohexanone pour enlever la résine non insolée lors de l'exposition puis le rinçage avec de l'isopropanol. Un recuit à 120 C° pendant 2 min est ensuite nécessaire pour consolider les motifs développés.

Le moule fabriqué est représenté sur la figure (2.6) :

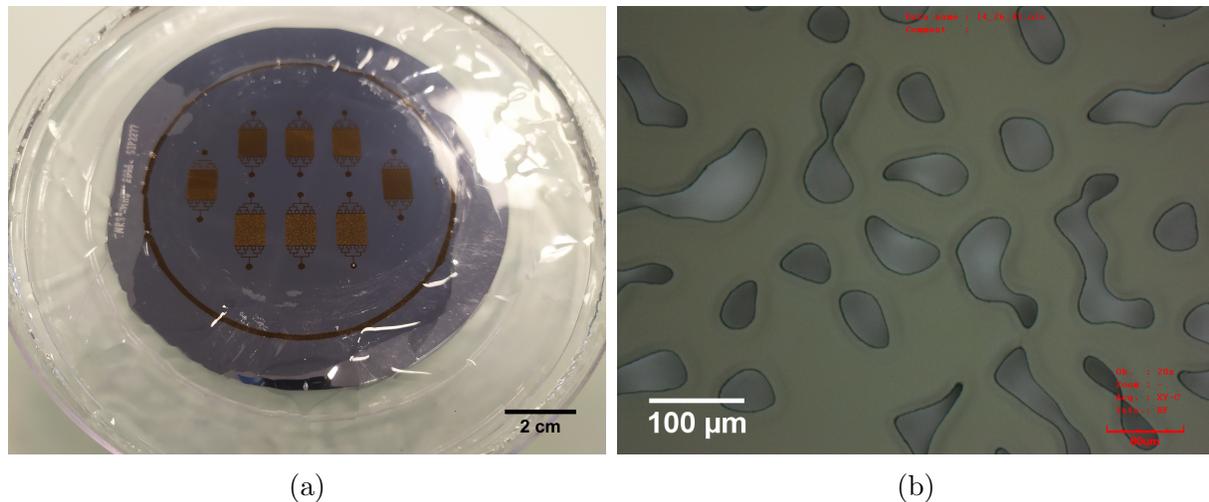


FIGURE 2.6 – Image du moule. a) Moule fabriqué par photolithographie sur un wafer de silicium de 4 pouces de diamètre et $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur. b) Focus sur une partie du moule (surface des trous) utilisant un objectif $\times 20$,

2.1.3 Fabrication des puces microfluidiques en PDMS

Maintenant que le moule est réalisé, la partie suivante consiste à fabriquer la puce en PDMS. Les étapes sur lesquelles repose le principe de fabrication sont synthétisées sur la figure (2.7) :

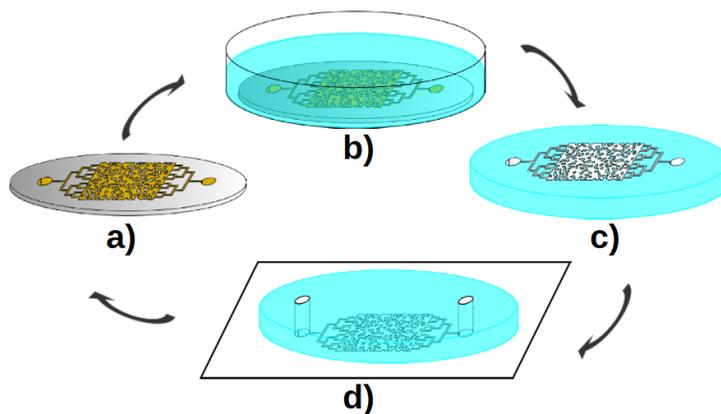


FIGURE 2.7 – Procédé de fabrication de la puce microfluidique à partir d'un moule

Ce processus de fabrication ne dépasse pas généralement 4 heures. La première étape est le moulage du PDMS. Dans cette partie, nous commençons par mélanger le PDMS (Sylgard 184) et son réticulant avec une portion massique de 1/10 (dix pour le PDMS et un pour le réticulent). Ensuite, pour ne pas avoir des bulles pouvant gêner la transparence et la visibilité dans la puce, nous dégazons le mélange moyennant une cloche à vide pendant une heure. Après le dégazage, nous coulons le mélange sur le moule et nous le laissons

réticuler à 65° pendant 2h30. La deuxième étape est le démoulage et le découpage du PDMS. Dans cette partie, nous séparons le PDMS du wafer délicatement pour éviter que quelques plots en PDMS s'arrachent et restent sur le wafer. Ensuite, nous découpons le PDMS pour l'adapter à la taille des lames de verre qui seront utilisées ultérieurement. Puis, en utilisant des poinçons, nous vient faire des trous au niveau de la zone d'injection à l'entrée et celle de l'évacuation du fluide à la sortie. La taille des trous dépend des diamètres extérieurs des tubes utilisés pour faire parvenir la suspension dans le milieu poreux. Une fois le poinçonnage fait, nous passons à la dernière étape qui consiste à fermer les canaux. Pour ce faire, nous déposons l'échantillon en PDMS et la lame de verre dans un plasma à oxygène, afin de créer des radicaux de surfaces qui vont être combinées après la mise en contact des deux matériaux pour former des liaisons covalentes assurant un très bon collage. Nous obtenons ainsi une puce microfluidique prête à l'utilisation (figure 2.8).

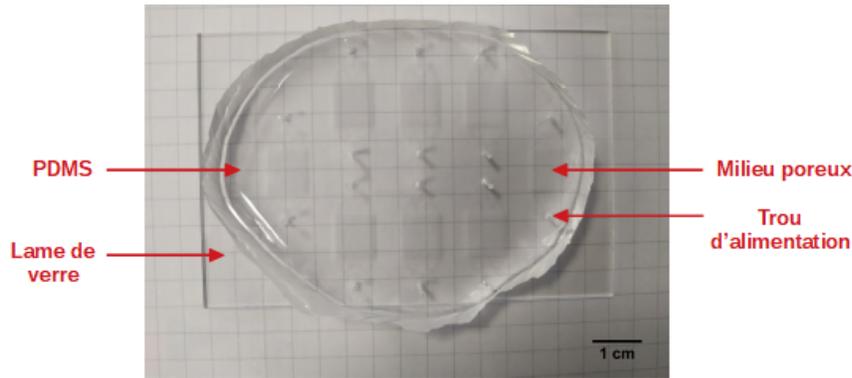


FIGURE 2.8 – Puce microfluidique fabriquée

2.2 Formulation et caractérisation de la suspension

2.2.1 Cahier des charges et principe de la mesure

L'objectif de nos mesures est d'observer la dynamique de colmatage du milieu poreux, c'est-à-dire identifier l'évolution des zones dans lesquelles les particules s'accumulent et celles dans lesquelles la suspension peut couler. Une difficulté expérimentale majeure en travaillant avec des suspensions denses est que les nombreuses interfaces solide liquide diffractent la lumière et rendent les images difficilement exploitables. C'est-à-dire que l'ensemble de la suspension apparaît en noir, quelque soit la fraction volumique de particules comme ce que nous pouvons voir sur la figure 2.9. La première caractéristique de la suspension est donc de permettre l'observation de la dynamique des clusters. Par ailleurs, notre objectif est d'étudier le colmatage par pontage, ce qui implique qu'il ne faut pas qu'il y ait d'interaction particule particule ou particule paroi. Enfin, le fluide suspendant

ne doit pas être faire gonfler le PDMS, de même densité que les particules pour éviter la sédimentation, et de faible viscosité pour que les expériences puissent se faire à faible pression afin de limiter la déformation du PDMS.

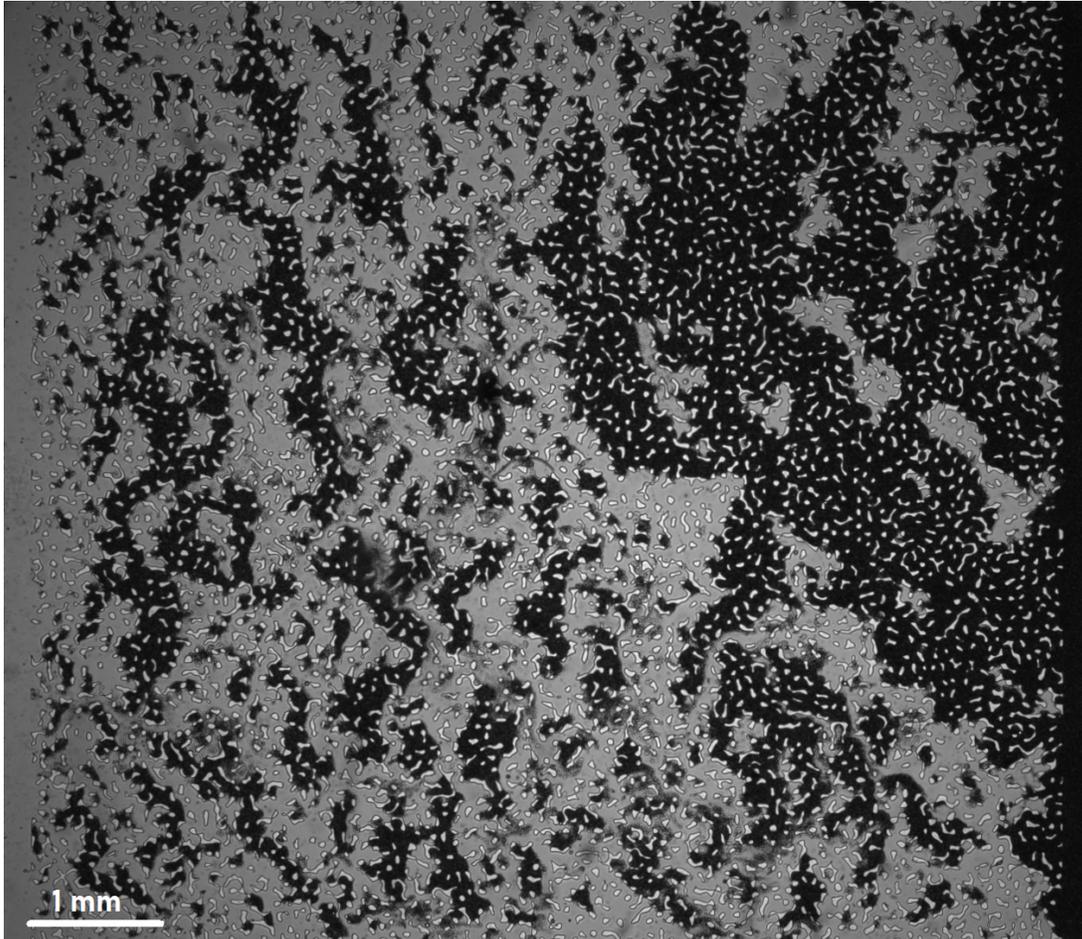


FIGURE 2.9 – Image en lumière blanche d’une suspension en particule de $6 \mu m$ non iso-indice de réfraction en écoulement à travers le milieu. L’image est capturée à la fin de l’expérience après colmatage. En noir, sont représentés les clusters. Le sens de l’écoulement est de la droite vers la gauche.

Afin de répondre à ces différents objectifs, notre stratégie a été de choisir des particules et de formuler un fluide suspendant iso-dense, et iso-indice de réfraction, puis de marquer en fluorescence le fluide suspendant. De cette manière, l’intensité lumineuse dépend inversement proportionnellement de la fraction volumique de particules locale. En effet, la présence de particules implique une moindre quantité de fluorophore, donc de source lumineuse. Autrement dit, plus il y a de particules, et plus l’image est sombre. Une image d’une zone avec des clusters est présentée sur la figure 2.10a en fluorescence et en lumière blanche afin d’illustrer cette méthode. En lumière blanche, aucune particule n’apparaît,

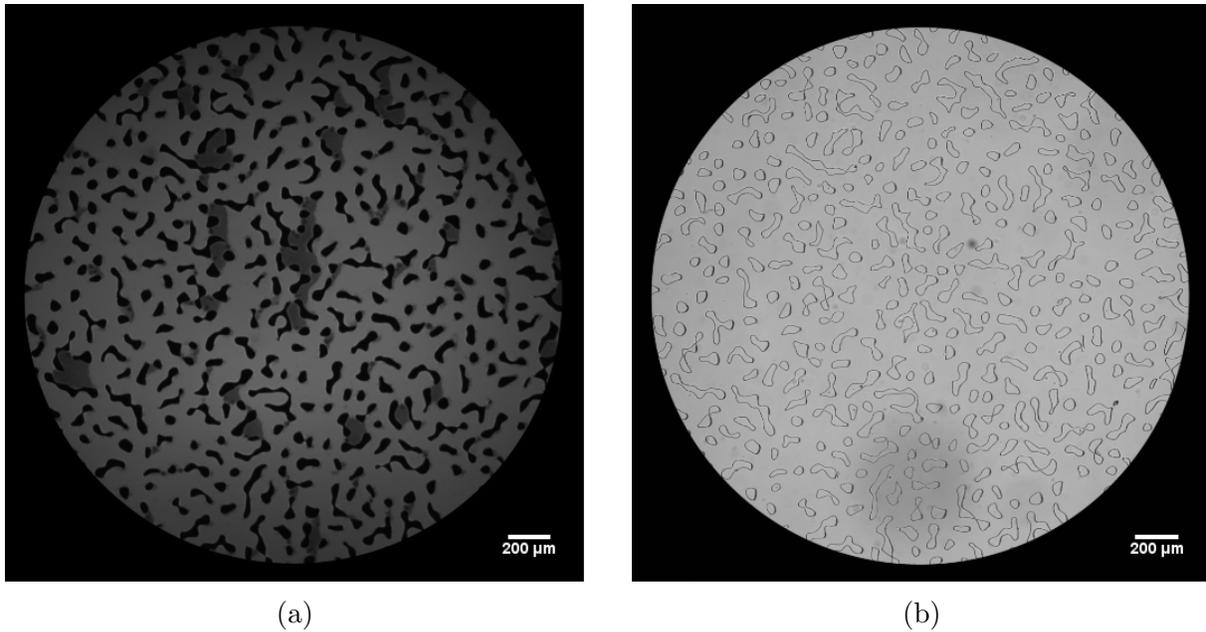


FIGURE 2.10 – Illustration du principe d’observation de la suspension. a) Image fluorescente d’une portion d’un milieu poreux dans lequel est injecté une suspension de particules de $6 \mu\text{m}$ de diamètre. En noir Les plots sont en noir, la suspension en gris clair et les clusters en gris foncé. b) La même image que celle de gauche, en lumière blanche.

ce qui valide l’iso-indice de réfraction entre particule et fluide suspendant. En lumière à fluorescence, des clusters sont visibles en gris foncé. Plus de détails sont donnés dans la suite sur la formulation du fluide suspendant et sur les particules.

2.2.2 Les particules

2.2.2.1 Caractéristiques des particules

Les particules utilisées sont des particules de PMMA (poly méthacrylate deméthyle), un polymère thermoplastique à base du monomère MMA (méthacrylate deméthyle), connu sous le nom **Plexiglas**. Elles sont fabriquées par la société MICROBEADS, portent le nom **SPHEROMERS CA** et destinées à la base à une large gamme de formulations de revêtements architecturaux [116]. Parmi leurs principaux atouts, le fait qu’elles soient transparentes, lisses, inertes dans la plupart des solvants, ne subissent ni gonflement ni retrait, et soient monodisperses avec de faibles coefficients de variation. Pour cette thèse, nous avons utilisé quatre diamètres différents : $6 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$, $15 \mu\text{m}$ et $20 \mu\text{m}$ avec un coefficient de variation de 1.8%. Leurs principales caractéristiques sont données dans le tableau suivant (2.1) :

On rappelle que le coefficient de variation est le rapport entre l’écart-type σ et la

Caractéristiques	Valeurs
Diamètre (μm)	6, 10, 15, 20
Coefficient de variation (%)	1.8
Densité	1.18
Indice de réfraction	1.49

TABLE 2.1 – Caractéristiques des particules de PMMA

moyenne μ des diamètres :

$$C_V = \frac{\sigma}{\mu}$$

2.2.2.2 Évaluation de la monodispersité des particules : quantification du nombre de grosses particules

Malgré leur faible coefficient de variation ($C_V = 1.8\%$), les particules de PMMA telles qu'elles sont fabriquées ne répondent pas complètement à notre besoin en terme de monodispersité. L'expérience a montré que la présence de quelques grosses particules peut changer énormément la dynamique de colmatage dès que leur taille dépasse la taille caractéristique moyenne des pores de notre milieu. Par conséquent, un nombre faible de ces particules de grands diamètres peut induire à un bouchage immédiat de l'entrée du milieu, comme il est montré sur la figure 2.11. Une étude du colmatage pour ce type de suspension avec présence de quelques grosses particules est faite dans le chapitre 5.

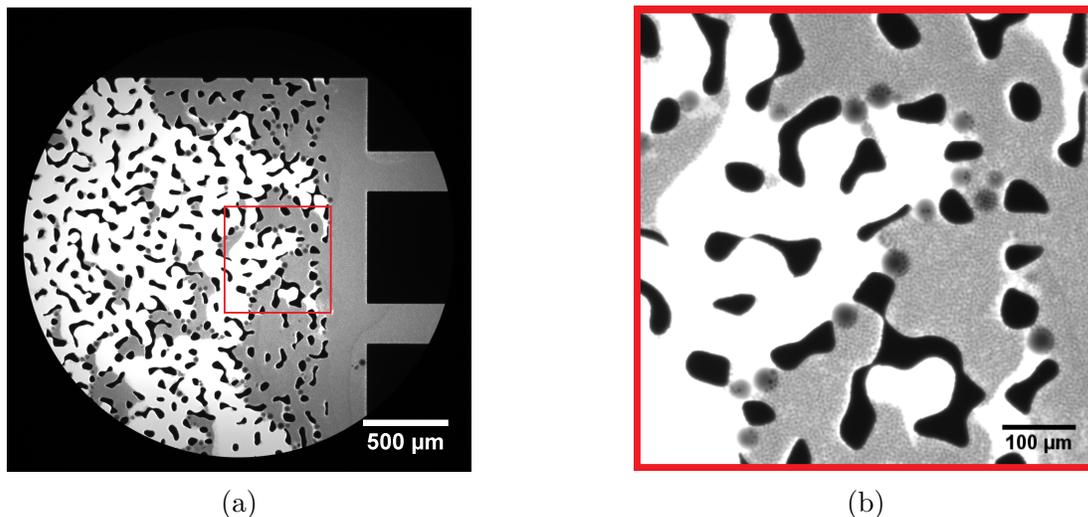


FIGURE 2.11 – Colmatage par filtration de grosses particules. a) Image d'une partie de l'entrée du milieu poreux lors de l'écoulement d'une suspension de particules de $6 \mu m$ de diamètre théorique avant tamisage. b) Focus sur des grosses particules dans le milieu poreux sur le carré en rouge de la figure a)

Pour quantifier les grosses particules (particules ayant une taille proche de la taille ca-

ractéristique moyenne des pores) nous avons mis une quantité de particules dans de l'eau puis nous avons étalé le mélange sur des lames de verre pendant une nuit afin d'avoir une seule couche de particules. Ensuite, nous avons capturé des images microscope des particules. Sur la figure 2.12a nous donnons un exemple d'une image prise avec un objectif de grossissement de $\times 15$. Nous détectons tout d'abord sur chaque image le nombre de grosses particules (contours en jaune sur la figure 2.12a) puis moyennant un traitement d'image sous MatLab basé sur la binarisation des images, nous comptons le nombre de petites particules. Une analyse a été réalisée sur un échantillon comprenant 53087 particules dont 66 sont grosses ce qui représente un pourcentage de **0.124** %. Ce pourcentage peut paraître négligeable mais en pratique, nous verrons dans le chapitre 5 que ces quelques particules ont une influence importante sur la dynamique de colmatage. Il est donc primordial de tamiser les particules avant de les injecter. Dans le paragraphe qui suit nous allons présenter la distribution de taille de particules après tamisage pour prouver l'efficacité du processus adopté pour cette fin.

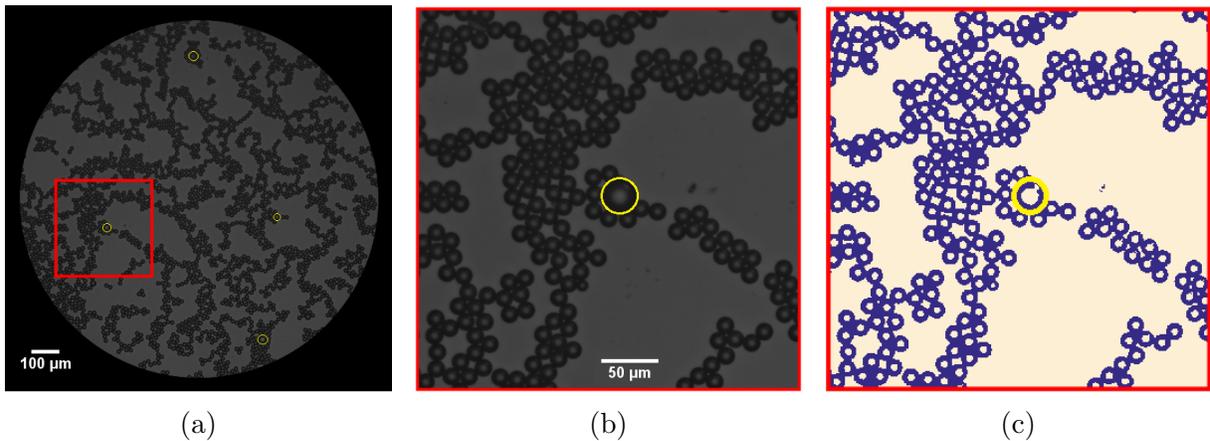


FIGURE 2.12 – a) Image microscope d'un ensemble de particules de PMMA non tamisées de $15 \mu m$ de diamètre sur une lame de verre avec un objectif de grossissement de $\times 15$, en jaune quatre grosses particules détectées. b) Focus sur le carré en rouge de la figure a) à gauche ; c) image résultante du traitement de la figure b) en bleu les contours définissant les particules détectées pour calculer leur nombre.

2.2.2.3 Processus de tamisage

Pour remédier à ce problème nous avons élaboré un processus de tamisage à sec permettant d'écartier les grosses billes. Nous avons utilisé des tamis en nylon (Nytal Sefar), montrés sur la figure 2.13.

Le principe est simple, nous nous sommes servis de deux flacons en plastique, un tamis en nylon adapté à la taille des particules à tamiser (taille de maille 20% plus grande que la taille des particules à retenir) et un agitateur vibreur de type Vortex Genie 2. Au



FIGURE 2.13 – a) Tamis en nylon (Nyltal) d'un diamètre de maille faisant $20 \mu\text{m}$. b) Image microscope d'un tamis en nylon ; focus sur quelques mailles de $16 \mu\text{m}$ de diamètre

début le flacon du dessus est remplie de particules, celui de dessous est vide et entre les deux flacons nous mettons le tamis. Ensuite nous fixons le tout sur l'agitateur pour le faire agiter pendant une heure (figure 2.14).



FIGURE 2.14 – Agitateur Vortex utilisé dans le processus de tamisage

2.2.3 Efficacité du processus de tamisage

Après tamisage, la distribution de taille des particules a été à nouveau mesurée afin d'évaluer ce processus de tamisage. Sur 7785 particules, nous n'avons détecté aucune particule de plus de $20 \mu\text{m}$ de diamètre.

Un exemple est présenté sur la figure 2.15 : à gauche (figure 2.15a) nous montrons l'exemple d'une image microscope d'une suspension de particules de diamètre $15 \mu\text{m}$ après

tamissage, puis à droite (figure 2.15b) nous montrons le résultat du traitement appliqué qui nous a permis de détecter, entourer en rouge les particules et mesurer leurs diamètres.

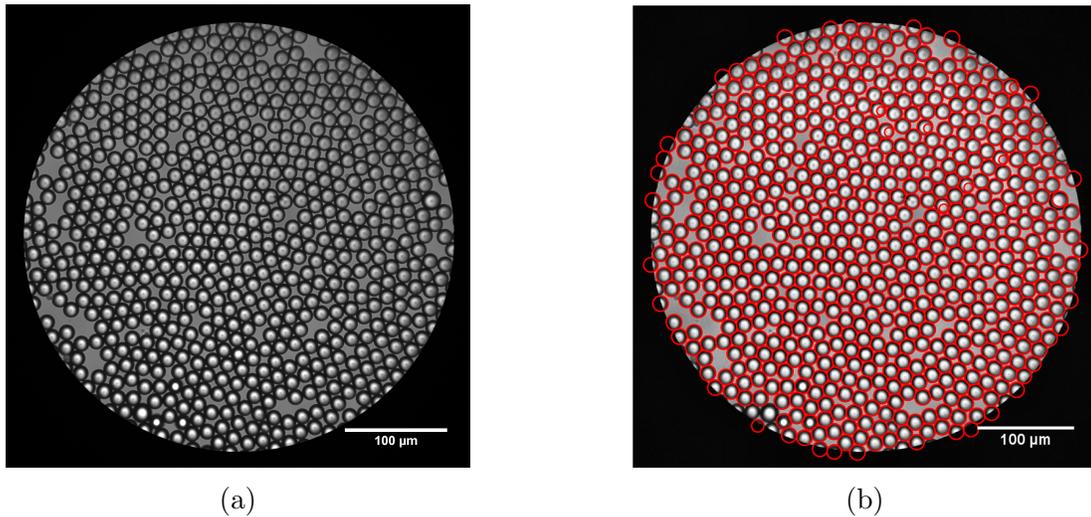


FIGURE 2.15 – a) Image microscope d'un ensemble de particules de PMMA tamisées de $15 \mu m$ de diamètre sur une lame de verre avec un objectif de grossissement de $\times 30$, b) Résultat du traitement effectué pour détecter les diamètres des particules sur la figure a) à gauche ; en rouge les contours définissant les diamètres pour effectuer la distribution de taille.

La distribution de tailles de particules après tamissage est donnée sur la figure 2.16 :

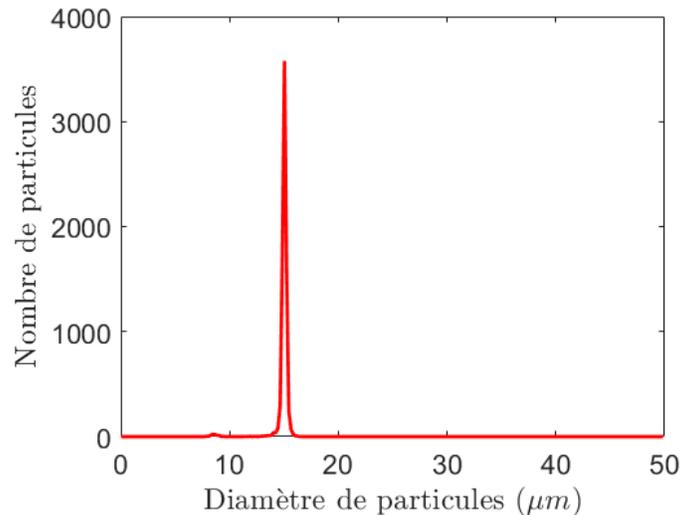


FIGURE 2.16 – Distribution de taille des particules de PMMA de $15 \mu m$ de diamètre, pour un échantillon tamisé

La moyenne des tailles des particules est $14.99 \mu m$ leur écart-type est de 0.7487 . La première chose à remarquer sur la courbe de distribution est la qualité de l'aspect

monodisperse dans ces particules de PMMA traduit par un écart-type faible et une moyenne qui est égale au diamètre annoncé. Nous verrons dans le chapitre 5 l'importance de la présence de quelques rares grosses particules sur la dynamique de colmatage du milieu.

2.2.4 Le fluide

2.2.4.1 Choix du fluide

Le but est d'avoir un fluide suspendant qui réponde aux critères suivants :

1. le même indice de réfraction que le PMMA pour éviter la réfraction due au changement d'indice optique et limiter les interactions de Van der Waals entre particules,
2. la même densité que le PMMA pour éviter la sédimentation,
3. le moins visqueux possible pour éviter le gonflement,
4. non volatil pour réaliser les expériences sur le temps long,
5. non toxique pour faciliter la réalisation des expériences,
6. fluide newtonien pour ne pas ajouter des effets de migrations de particules liés à une rhéofluidification ou des forces normales,
7. Non gonflant pour le PDMS.

Dans un premier temps, nous avons utilisé un mélange de trois liquides newtoniens : Triton X100, 1,6-Dibromohexane, Ucon oil 75-H450, de fraction massique respectivement de 50%, 28% et 22% comme proposé dans Wiederseiner et al. [117]. Cependant sa viscosité de 120 mPa.s à 25 C° s'avère assez élevée et par conséquent favorise la déformation du PDMS. Nous avons cherché une alternative dans la littérature qui pourrait nous servir mais la donnée de viscosité n'est pas toujours disponible ce qui nous a amené à chercher nous même un mélange qui pourrait répondre à notre besoin. Finalement, nous avons réussi à avoir un mélange de viscosité 20 mPa.s à 25 C° c'est-à-dire $10 \times$ fois plus faible que le premier. On résume sur le tableau suivant 2.2 les fluides utilisés ainsi que leurs proportions, puis dans le paragraphe qui suit nous allons présenter la méthode adoptée pour obtenir ce mélange.

Fluides	Concentration massique (%)
2-pyridinemethanol	62
Eau	27
NaI	11

TABLE 2.2 – Concentration massique de chacun des fluides à 25 C°

2.2.4.2 Méthodologie de dosage

Pour rappel, les particules de PMMA ont une densité de 1.18, un indice de réfraction de 1,49. Le 2-pyridinemethanol était le point de départ vu qu'il s'agit d'un fluide ayant un indice de réfraction proche de celui des PMMA, une viscosité faible et une masse volumique inférieure à celle du PMMA. Ensuite, nous avons essayé un jeu de combinaisons de fluides qui peuvent être mélangés avec le 2-pyridinemethanol et répondre à nos critères et finalement nous avons choisi l'eau pour sa faible viscosité, et l'iodure de sodium pour sa forte densité. Les données de viscosité dynamique et de masse volumique de chacun des fluides choisis sont données dans le tableau suivant :

Fluides	Masse volumique (g/cm^3)	Indice de réfraction
2-pyridinemethanol	$1.131 \leq 1.18$	$1.543 \geq 1.49$
Eau	$0.997 \leq 1.18$	$1.33 \leq 1.49$
NaI	$3.670 \geq 1.18$	$1.774 \geq 1.49$

TABLE 2.3 – Indice de réfraction et masse volumique de chacun des fluides à 25 C°

Pour parvenir à notre but de matching nous sommes passés par une étape intermédiaire dont l'idée est d'avoir deux mélanges :

1. un mélange 2-pyridinemethanol/eau, ayant un indice optique n_1 et une masse volumique ρ_1 tel que :

$$\begin{cases} n_1 = n_{PMMA} = 1.49 \\ \rho_1 \leq \rho_{PMMA} = 1.18 \text{ g/cm}^3 \end{cases}$$

2. un mélange NaI/eau, ayant un indice optique n_2 et une masse volumique ρ_2 tel que :

$$\begin{cases} n_2 = n_{PMMA} = 1.49 \\ \rho_2 \geq \rho_{PMMA} = 1.18 \text{ g/cm}^3 \end{cases}$$

Nous sommes partis du principe que les deux mélanges sont non-miscibles pour se rapprocher au mieux de la concentration massique théoriquement, en adoptant le raisonnement suivant :

$$\rho_{total} = \frac{m_{total}}{V_{total}} = \frac{m_1 + m_2}{V_1 + V_2}$$

$$\frac{1}{\rho_{total}} = \frac{V_1 + V_2}{m_1 + m_2} = \frac{V_1}{m_1 + m_2} + \frac{V_2}{m_1 + m_2} = \frac{1}{\rho_1} \cdot \frac{m_1}{m_1 + m_2} + \frac{1}{\rho_2} \cdot \frac{m_2}{m_1 + m_2}$$

Nous notons :

$$\alpha_1 = \frac{m_1}{m_1 + m_2} \quad \text{et} \quad \alpha_2 = \frac{m_2}{m_1 + m_2}$$

Le système d'équations se réduit à :

$$\begin{cases} \frac{1}{\rho_{total}} = \frac{1}{\rho_1} \cdot \alpha_1 + \frac{1}{\rho_2} \cdot \alpha_2 \\ 1 = \alpha_1 + \alpha_2 \end{cases} \quad (2.1)$$

D'une part, en jouant sur les proportions de l'eau et du 2-pyridineméthanol pour avoir un indice optique égale à 1.49, nous obtenons une concentration massique de 75.92% en 2-pyridineméthanol et 24.08% en eau. La masse volumique du mélange est $\rho_1 = 1.096 \text{ g/cm}^3$.

D'autre part nous trouvons dans le papier de Bai et al [118] qu'à $25C^\circ$, le mélange composé de 62% de NaI et 38 % de l'eau a un indice de réfraction égale à celui du PMMA et une masse volumique égale à $\rho_2 = 1.759 \text{ g/cm}^3$.

Donc en résumé :

$$\rho_1 = 1.096 \text{ g/cm}^3, \quad \rho_2 = 1.759 \text{ g/cm}^3 \quad \text{et} \quad \rho_{total} = 1.18 \text{ g/cm}^3$$

Et la résolution du système d'équations 2.1 donne :

$$\alpha_1 = 81.11\% \quad \text{et} \quad \alpha_2 = 18.89\%$$

Ce qui donne des concentrations massiques de :

$$C_{2\text{-pyridineméthanol}} \approx 62\%, \quad C_{Eau} \approx 27\% \quad \text{et} \quad C_{NaI} \approx 11\%$$

Les mesures expérimentales de masse volumique et de viscosité effectuées sur le mélange en fonction de trois températures sont présentées sur le tableau suivant (2.4) :

Température (C°)	Masse volumique (g/cm^3)	Viscosité dynamique (mPa.s)	Viscosité cinématique (mm^2/s)
15	1.19	19.79	16.38
20	1.19	15.34	12.74
25	1.19	12.14	10.11

TABLE 2.4 – Viscosité et masse volumique du mélange en fonction de la température

Ce mélange nous a permis d'avoir une viscosité 10 fois plus faible que celle du premier mélange (Triton X100, 1.6-Dibromohexane, Ucon oil 75-H450) , et donc de réduire l'influence du fluide suspendant sur la déformation du milieu poreux.

2.2.5 Rhéologie de la suspension

Après avoir trouvé le fluide répondant à nos critères posés initialement, nous passons à l'une des propriétés les plus importantes d'une suspension de particules qui est la viscosité. Tout d'abord il faut rappeler que la rhéologie d'une suspension dépend fortement de sa fraction solide. Lorsque celle-ci est faible, la suspension se comporte comme un fluide newtonien dont la viscosité effective $\mu_{eff}(\phi)$ augmente avec la fraction volumique solide ϕ . Plusieurs modèles de viscosité sont proposés pour décrire une suspension à faible fraction volumique de particule. Une parmi les plus courantes est celle de Zarraga [34] :

$$\mu_{eff}(\phi) \approx \mu_0 \frac{\exp(-2.34\phi)}{(1 - \phi/\phi_m)^3} \quad (2.2)$$

où :

- $\mu_{eff}(\phi)$: la viscosité effective
- μ_0 : la viscosité de la phase liquide
- ϕ : la fraction volumique solide
- ϕ_m : 0,58

ϕ_m est la fraction volumique solide au-delà de laquelle l'écoulement n'est plus possible [119, 120].

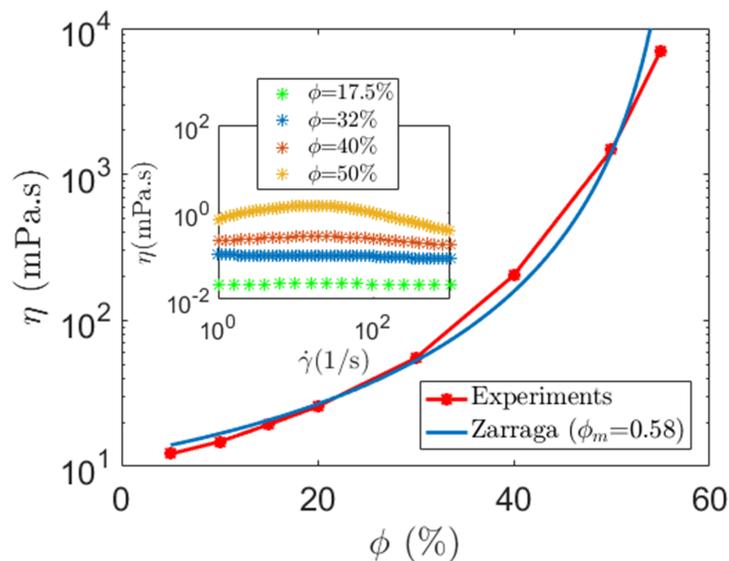


FIGURE 2.17 – Viscosité de la suspension en fonction de la concentration des particules à 25 °C. La courbe rouge représente les mesures expérimentales de viscosité pour un taux de cisaillement de 30 s⁻¹. La courbe bleue représente la viscosité d'une suspension se comportant comme un fluide, comme il a été décrit par Zarraga et al [34] dans l'équation 2.2.

Pour répondre à la question de rhéologie de notre suspension, nous avons effectué des mesures de viscosité à différentes fractions massiques. Nous représentons dans l'insert

de la figure 2.17 la viscosité dynamique en fonction du taux de cisaillement pour trois concentrations 17.5 %, 32 % et 40 %. Nous constatons que la suspension choisie se comporte comme un fluide newtonien. Nous représentons également sur la même figure 2.17 la viscosité en fonction de la concentration massique des particules. La courbe en rouge correspond aux mesures expérimentales effectuées alors que la courbe bleue est le tracé du modèle de Zarraga donné par l'expression 2.2. Nous avons essayé d'autres modèles [46] mais celui de Zarraga semble le plus proche de nos valeurs expérimentales.

2.2.6 Tentative de mesures en lumière blanche

Nous avons tenté de travailler en lumière blanche au début de thèse, cependant nous avons eu des doutes sur la possibilité d'avoir une calibration absolue de la concentration en fonction de l'intensité lumineuse. La tentative de calibration a été faite pour une suspension en écoulement dans un canal droit, comme nous pouvons le voir sur la figure 2.18, mais nous avons remarqué que pour une même fraction massique l'intensité lumineuse dépend de la vitesse de la suspension.

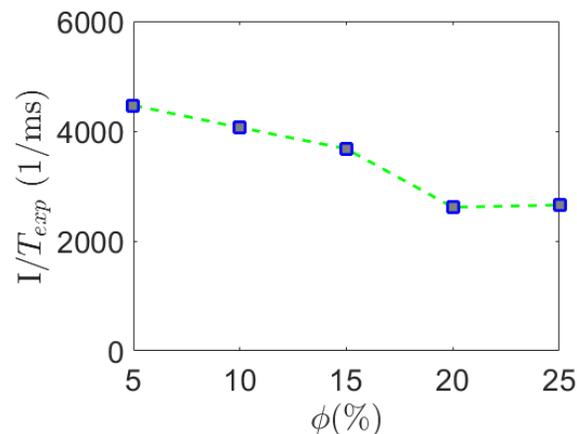


FIGURE 2.18 – Calibration : Rapport entre l'intensité lumineuse et le temps d'exposition en fonction de la concentration massique des particules, pour un ensemble d'images capturées en lumière en blanche pour des suspensions de particules injectées dans un canal droit.

Par exemple, nous pouvons clairement voir sur la figure 2.19e la différence d'intensité entre les particules sur le bord et au milieu du canal. Ceci nous a amené à élaborer un protocole de mesure en fluorescence, et delà vient l'idée de marquer en fluorescence. Finalement, nous n'avons pas procédé à une cartographie pour la bonne raison qu'il y avait surtout deux concentrations dans le milieu. Dans la partie qui coule nous restons à peu près de l'ordre de grandeur de la concentration injectée et puis des clusters où la concentration est beaucoup plus grande. Dès lors que nous avons vu ceci nous nous sommes dit que le plus important ce n'est pas de décrire les petites variations de concentrations

qu'il y a dans la phase qui coule mais plutôt de s'intéresser aux clusters. D'où le choix de la binarisation comme nous avons bien expliqué précédemment et comme nous allons revoir plus en détail plus loin dans le paragraphe 2.4.3. Pour faire une binarisation nous n'avons plus besoin de calibrer et donc nous aurions pu travailler en lumière blanche cependant les mesures en fluorescence nous octroient plus de propreté, une meilleure visibilité et plus de facilité pour traiter les images.

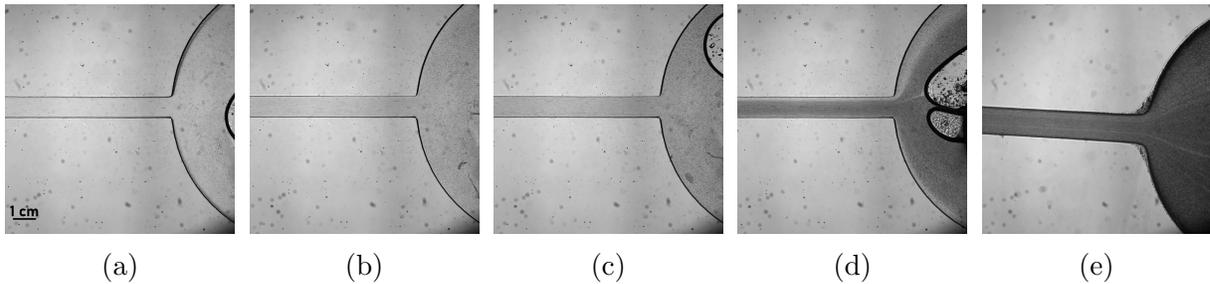


FIGURE 2.19 – Images de suspensions de particules de $6 \mu m$ dans l'eau injectées dans un canal droit pour la calibration en lumière blanche. a) $\phi = 5\%$, b) $\phi = 10\%$, c) $\phi = 15\%$, d) $\phi = 20\%$, e) $\phi = 25\%$.

2.2.7 Mesure en microscopie à fluorescence

2.2.7.1 Principe de la microscopie à fluorescence

Dans ce paragraphe, nous rappellerons brièvement le principe de la microscopie à fluorescence avant d'enchaîner avec les processus de marquage des particules et du fluide suspendant dans les paragraphes qui suivent.

Pour commencer, un corps est dit fluorescent quand il est doté de la propriété d'émettre une lumière après avoir été excité avec une lumière d'énergie supérieur. Certains objets ont cette faculté naturellement comme la chlorophylle qui émet de la lumière rouge lorsqu'elle est excitée par des rayons ultra-violets, et dans ce cas nous parlons de l'autofluorescence ou la fluorescence primaire. D'autres ne l'ont pas mais ils peuvent l'acquérir moyennant un marquage avec des fluorophores, et dans ce cas nous parlons de fluorescence secondaire.

La microscopie en fluorescence est basée sur la formation d'une image grâce à la détection de la lumière émise par l'objet fluorescent à visualiser. Pour se restreindre à la lumière émise par l'objet fluorescent, nous utilisons, un filtre de fluorescence en cube. Il comporte essentiellement trois éléments : un filtre d'excitation, un miroir dichroïque et un filtre d'émission.

- **filtre d'excitation** : est un filtre généralement passe-bande, placé entre la source de lumière et l'échantillon à exciter. Il permet de laisser passer le maximum d'énergie vers la bande d'absorption tout en éliminant les autres longueurs d'onde.

- **miroir dichroïque** : il remplit deux fonctions. La première est de réfléchir les faisceaux provenant du filtre d'excitation vers l'échantillon et la deuxième est de laisser passer la fluorescence de l'échantillon vers le détecteur.
- **filtre d'émission** : est un filtre situé entre le miroir et le détecteur. Il permet de sélectionner de façon plus précise les longueurs d'ondes que nous souhaitons faire parvenir au détecteur.

Nous rappelons que la longueur d'onde d'émission est toujours supérieure à la longueur d'onde d'excitation, et que plus la différence entre les deux est importante, plus il est simple d'observer la fluorescence.

La figure 2.20 illustre le chemin des faisceaux lumineux allant de la source jusqu'au détecteur passant par les constituants du cube.

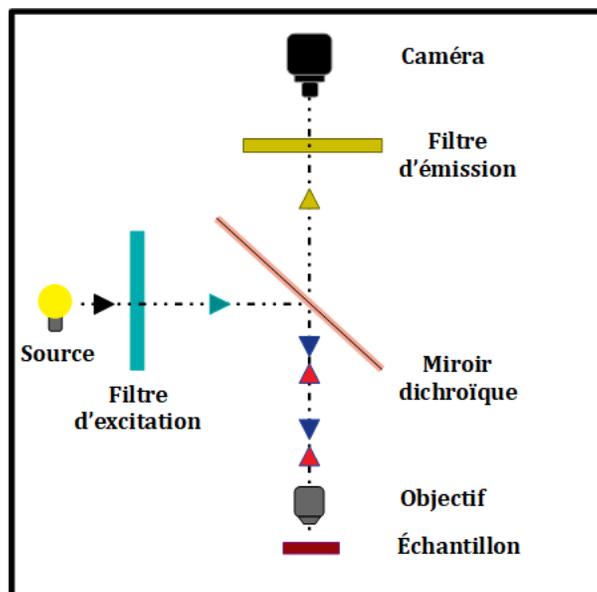


FIGURE 2.20 – Système optique d'un microscope à fluorescence : la lumière provenant de la source traverse d'abord le filtre d'excitation qui ne laisse passer que les longueurs d'ondes de la bande d'absorption. Ensuite, le faisceau est réfléchi grâce au miroir dichroïque vers l'échantillon à exciter qui émet de la fluorescence. Cette dernière traverse le miroir vers le filtre d'émission qui sélectionne les longueurs d'ondes cibles vers le détecteur.

Dans les paragraphes qui suivent nous allons présenter les différentes variantes de marquage que nous avons essayé, leurs limites et les raisons pour lesquelles nous avons choisi d'adopter un marquage et pas l'autre.

2.2.7.2 Marquage des particules en fluorescence

L'usage des particules fluorescentes industrielles est très courant dans plusieurs domaines scientifiques, mais leur coût est très élevé, par exemple 5 g de Microsphères colorées et sèches (DVB) en polystyrène coûte environ 1000 euros. De plus, dans notre cas

nous travaillons sur des suspensions denses et dans des milieux poreux, c'est-à-dire qu'il est difficile de réutiliser les particules après avoir traversé le milieu poreux vu que leur concentration change à la sortie. Nous avons donc tenté marquer des particules de PMMA au laboratoire. Le protocole de marquage est celui de Carpentier et al [121]. Il consiste en une fonctionnalisation de la surface des particules de PMMA avec des groupes amino primaires. Les étapes du protocole sont les suivants :

1. tremper une quantité de particules dans un mélange de 50% d'eau et 50% d'isopropanol en volume (**1/1 (v/v)**) puis soniquer l'ensemble pendant **10 min**.
2. récupérer les particules par filtration sous vide via un entonnoir de Büchner et un filtre sans cendre, puis les laisser sécher pendant quelques minutes.
3. introduire pendant **20 min** les particules récupérées dans un mélange de 67% de DMSO et 33% d'éthylènediamine (1,2-diaminoéthane) (**2/1 (v/v)**) pour introduire les groupes amino.
4. laver les particules après récupération au DMSO (par filtration sous vide),
5. laver les particules à l'isopropanol,
6. laver les particules à l'eau,
7. introduire les particules dans une solution de Rhodamine-B (**100/2 (m/m)**) et rajouter quelques gouttes d'un tensioactif (surfactant) non ionique comme le span 85 puis faire agiter la solution pendant **3 heures** sur un agitateur magnétique.
8. après les avoir récupérées, laver les particules à l'eau plusieurs fois jusqu'à ce que l'eau infiltrée soit complètement claire.

Comme il est mentionné dans l'étape 7, nous avons utilisé la rhodamine-B comme fluorochrome. Elle absorbe les radiations vertes ($\lambda_{Excitation}^{max} = 541\text{nm}$) et restitue une fluorescence rouge ($\lambda_{Emission}^{max} = 572\text{nm}$). Ses spectres d'adsorption et de fluorescence sont donnés sur la figure suivante :

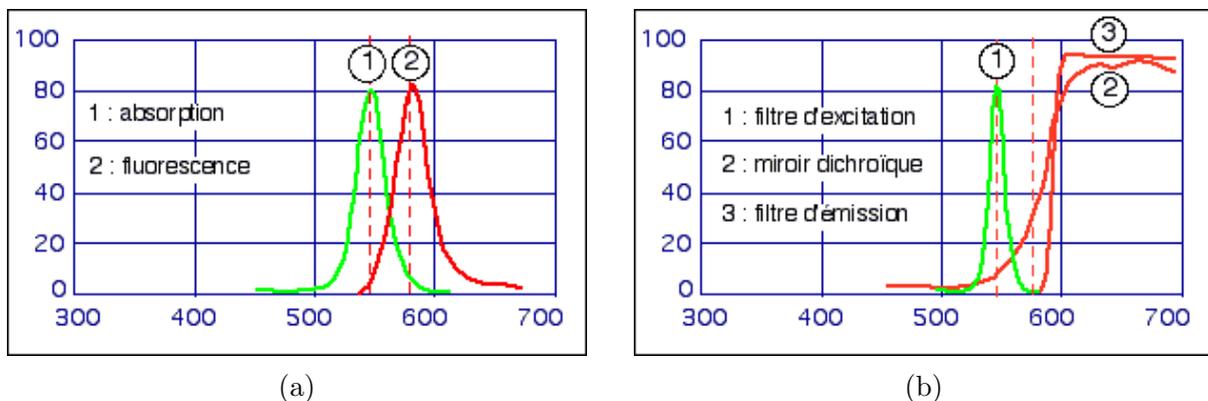


FIGURE 2.21 – a) Spectre d'absorption (de la lumière incidente) de la rhodamine-B. b) Spectre d'émission de fluorescence [122]

Le cube porte-filtres ayant servi pour la fluorescence est U-FGNA utilisé pour des excitations vertes. Ci-dessous sur la figure 2.22 nous montrons la transmission en fonction des longueurs d'ondes pour le spectre d'excitation (en bleu), d'émission (en rouge) et du miroir dichroïque (en vert) qui correspondent à ce cube :

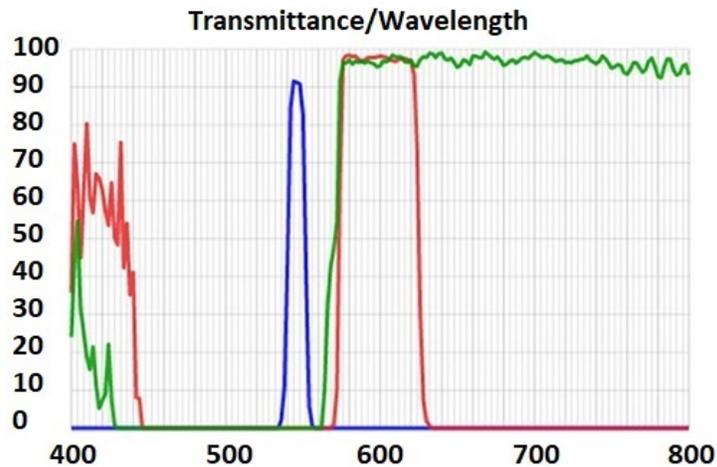


FIGURE 2.22 – Transmission en fonction des longueurs d'ondes pour le spectre d'excitation (en bleu), d'émission (en rouge) et du miroir dichroïque (en vert) qui correspondent au cube porte-filtres U-FGNA [123]

Maintenant que nous avons présenté le protocole de marquage des particules ainsi que les propriétés du fluorochrome utilisé, nous passons aux résultats du marquage.

Des premiers essais de calibrations de la concentration avec ce marquage dans un canal droit ont été encourageants comme il est illustré sur la figure 2.23, sur laquelle nous remarquons bien que la courbe de l'intensité lumineuse normalisée par le temps d'exposition tracée en fonction de la concentration est monotone :

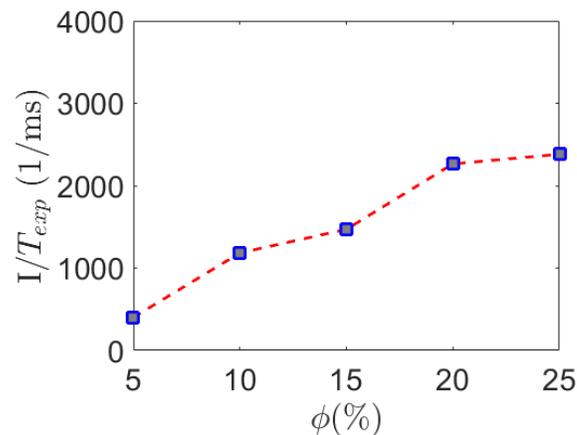


FIGURE 2.23 – Calibration : Rapport entre l'intensité lumineuse et le temps d'exposition en fonction de la concentration massique des particules, pour un ensemble d'images capturées en fluorescence pour des suspensions de particules injectées dans un canal droit.

Cependant, Nous nous sommes rendus compte de certaines limitations dans ce protocole. Par exemple, sur la figure 2.24, nous donnons quelques exemples d'images obtenues à l'issue du protocole utilisé. Il s'agit de particules de PMMA de $15 \mu m$, marquées en fluorescence, immergées dans une petite quantité d'eau et déposées sur des lames de verre. Sur la figure 2.24a nous pouvons voir sur une partie de la capture une seule couche de particules et des agrégats éparpillés. Dans chaque agrégat, nous constatons que l'eau est également marquée car sinon elle aurait été noire. Nous pouvons faire la même remarque sur la figure 2.24c. Un premier point important à souligner à partir de ces deux images est donc le fait que les particules n'ont pas été suffisamment lavées, c'est-à-dire qu'il y a toujours de la rhodamine qui n'a pas pu adhérer chimiquement aux particules qui diffuse dans l'eau.

D'autre part sur l'ensemble des images présentées, nous pouvons constater que l'intensité lumineuse peut varier d'un agrégat à un autre et même dans un seul agrégat nous remarquons que les contours des particules qui sont en contact avec l'air sont plus lumineux que ceux en contact avec l'eau et les particules. Ce défaut pourrait être corrigé en traitant des plus petites quantité de particules en même temps. En effet, lors du traitement de grande quantité, des petits clusters restent coincés à l'intérieur d'un agrégat et donc ne subissent pas le protocole de la même façon. Ceci veut dire qu'à la fin du traitement, certaines particules ne sont pas marquées, et d'autres sont marquées mais émettent une intensité lumineuse plus faible que le reste des particules bien marquées. L'existence de cette hétérogénéité d'intensité lumineuse pour une même fraction volumique de particules pourrait induire des erreurs dans l'analyse des expériences. Une alternative serait de marquer les particules, par petite quantité pour garantir une homogénéité de traitement. Néanmoins, travaillant sur des suspensions denses, nous aurons besoin de grosses quantités de particules à chaque fois. Cette solution rend le protocole très fastidieux et chronophage, surtout sur la partie du lavage qui nécessitent plusieurs heures.

Ainsi, pour ces différentes limitations nous avons finalement choisi d'abandonner cette stratégie pour passer à un marquage du fluide suspendant.

2.2.7.3 Marquage du fluide suspendant en fluorescence

Le marquage qui a été adopté finalement dans toute la thèse est celui que nous allons présenter dans ce paragraphe. Son principe consiste à mettre une quantité du fluorophore (la rhodamine-B) dans le fluide suspendant au lieu du marquage des particules. La quantité du fluorophore à mettre est autour de quelques pourcents (de l'ordre de 1% ou 2%). Puis, nous faisons agiter le tout pendant une demi-heure pour homogénéiser le mélange et désagréger les éventuels agrégats de rhodamine-B en poudre. Une fois terminé, nous rajoutons les particules de PMMA à la solution suivant les concentrations voulues. L'état final d'un milieu poreux après avoir été colmaté lors de l'injection d'une suspension de particules de $20 \mu m$ de diamètre pour une concentration massique $\phi = 10 \%$ et un débit

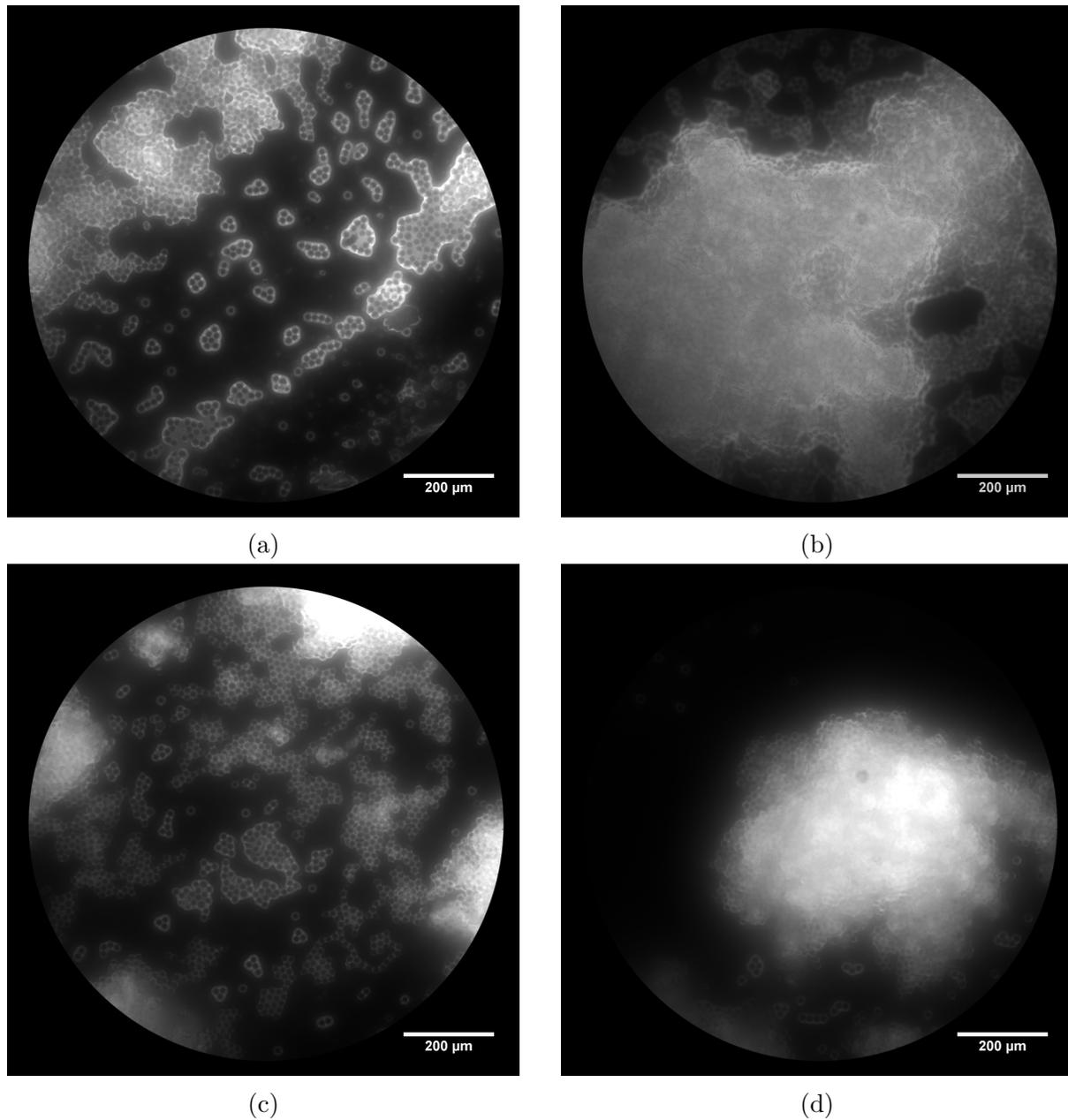


FIGURE 2.24 – images microscope des particules de PMMA de $15 \mu m$ marquées en fluorescence avec de la rhodamine-B moyennant le protocole de marquage de Carpentier et al [121]. a), b), c) et d) sont capturées de différents endroits de l'échantillon et avec différents focus

$Q = 10 \mu l/min$ est représenté sur la figure 2.25. L'image est en couleur, prise par un microscope numérique de haute résolution de la société Keyence (**VHX-7000**). Le rose foncé correspond aux clusters et le rose clair correspond à la suspension.

Sur la figure suivante 2.10 nous présentons un exemple comparant une image prise en lumière blanche et en fluorescence, d'une portion d'un milieu poreux dans lequel nous

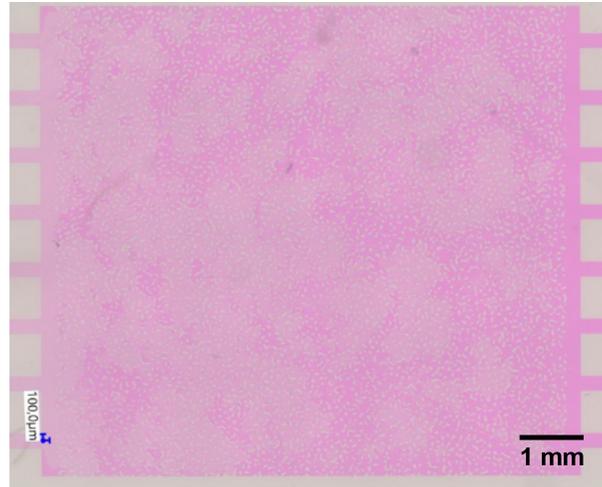


FIGURE 2.25 – Image réelle d’une suspension de particules de $20 \mu\text{m}$ de diamètre ($\phi = 10\%$ et $Q = 10 \mu\text{l}/\text{min}$) injectée dans un milieu poreux après avoir été colmaté, prise par un microscope numérique de haute résolution (**VHX-7000** de la société Keyence). Le rose foncé correspond aux clusters et le rose clair correspond à la suspension

avons injecté une suspension de particules. Sur la figure 2.10a en lumière fluorescente, nous pouvons distinguer trois couleurs : en noir (à l’intérieur du cercle) sont présentées les plots, en gris clair est présentée la suspension et en gris foncé sont présentés les clusters (concentration maximale). Cette image est représentative de l’ensemble des images qui seront traitées par la suite pour l’analyse du phénomène. La même image en lumière blanche est sur la figure 2.10b. Celle-ci ne permet pas de discerner les clusters de la suspension vu que le fluide et les particules sont matchés en indice. Cette image sert également à valider le protocole de matching en indice optique que présenté section 2.2.4.1.

2.3 Matériel expérimental et protocole d’injection

2.3.1 Dispositif expérimental

Pour nos expériences, nous avons utilisé un microscope (OLYMPUS CKX53) sur lequel est branchée une caméra (ORCA-Flash4.0 V3 Digital CMOS camera C13440-20CU), avec un objectif apochromatique (plan) de grossissement de $\times 1.25$) et un adaptateur optique (monture C- 0.5X U-TV0.5XC-3-8) de 0.5x de grossissement. Nous nous sommes servis également d’un pousse-seringue Cetoni Nemesys, un contrôleur de pression Fluigent MFCSTTM-EZ autonome fournissant des pressions dans la gamme 0 mbar à 1000 mbar, un débitmètre thermique bidirectionnel **Fluigent FLU-L-D** capable de mesurer des débits allant jusqu’à $1 \text{ ml}/\text{min}$ étalonnés avec de l’eau (ou bien jusqu’à $10 \text{ ml}/\text{min}$ en isopropanol) et un capteur de pression différentiel à membrane, de HONEYWELL (**ASDX-RR-X-015PDAA5**) mesurant des valeurs dans une gamme de pression allant de 0 à 15 psi,

soit de 0 à 1 bar.

Dans cette thèse, nous avons injecté la suspension dans le milieu poreux de deux façons : une injection à débit imposé et à pression imposée. Dans les deux paragraphes suivants nous allons détailler le protocole et le montage expérimental pour chaque cas.

2.3.2 Expérience à débit imposé

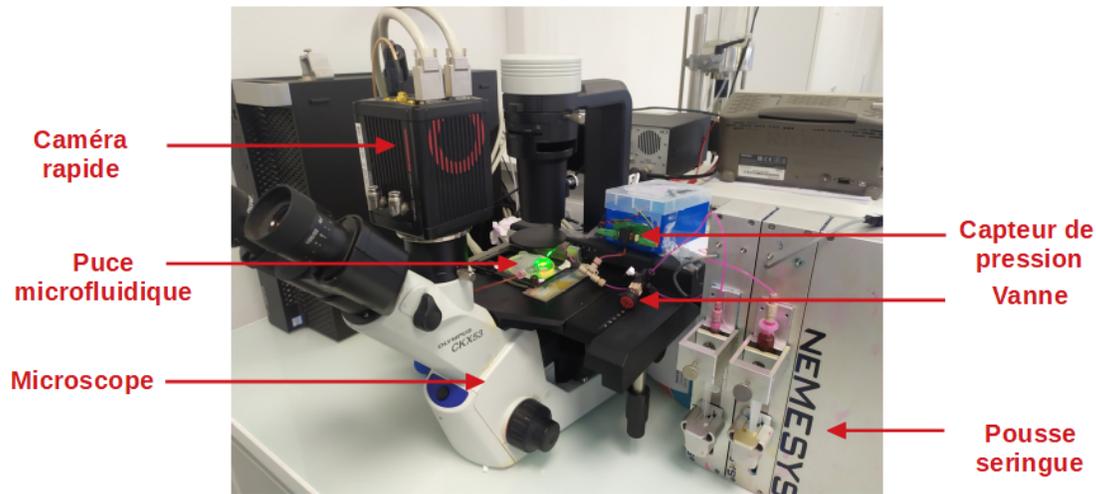


FIGURE 2.26 – Photo du montage expérimental de l'injection à débit imposé. L'écoulement à travers le milieu poreux est observé sous microscope à fluorescence (OLYMPUS CKX53) et enregistré par une caméra rapide (Hamamatsu ORCA-Flash4.0 V3). L'injection de la suspension est assurée par un pousse-seringue Cetoni Nemesys

Dans la première partie de la thèse, nous avons adopté une injection à débit imposé de la suspension dans le milieu poreux. La photo du montage expérimental est représenté sur la figure 2.28 et le schéma de l'expérience pour cette forme d'injection est sur la figure 2.29. Le protocole consiste dans un premier temps, à injecter via la seringue (2) le fluide suspendant marqué en fluorophore. Cette étape est essentielle vu qu'elle permet de remplir le milieu et éviter la présence de bulles d'air coincées près des murs. Pour ce faire, une pression est appliquée en entrée et en sortie du milieu jusqu'à dissolution de toutes les bulles. D'autre part, cet état nous permet d'avoir une image de référence du milieu poreux sans présence de particules.

La deuxième étape consiste à ouvrir la vanne 2 voies (3), et à injecter la suspension via la seringue (2) montée sur un pousse-seringue permettant de définir le débit d'injection souhaité. Entre la vanne et l'entrée des pattes est installé un capteur de pression (4) permettant de mesurer la pression entre l'entrée et la sortie du milieu poreux. Un bac d'évacuation ouvert à pression atmosphérique (5) se trouve à la sortie du milieu pour récupérer la suspension.

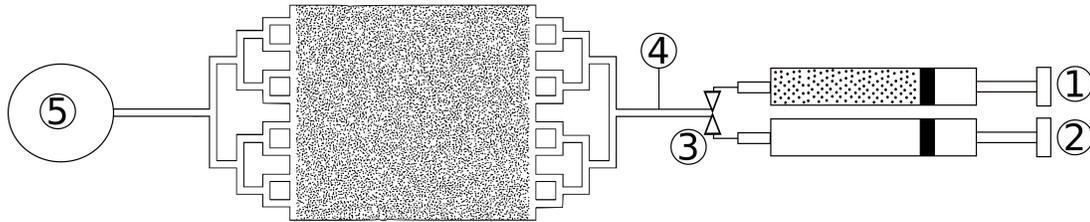


FIGURE 2.27 – Schéma d'injection - (1) : seringue de la suspension, (2) : seringue du fluide suspensé, (3) : vanne 2 voies, (4) : capteur de pression, (5) : bac d'évacuation.

2.3.3 Expérience à pression imposée

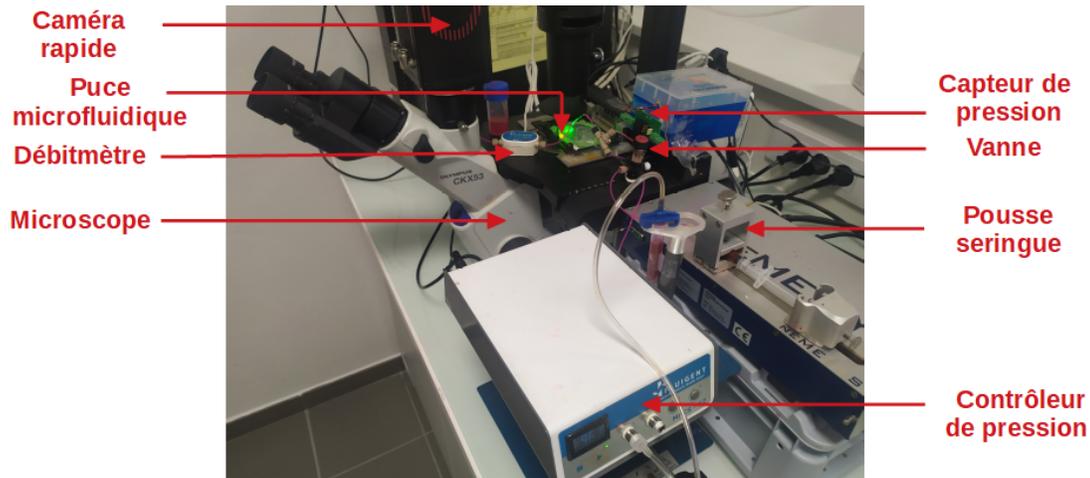


FIGURE 2.28 – Photo du montage expérimental de l'injection à pression imposée. L'écoulement à travers le milieu poreux est observé sous microscope à fluorescence (OLYMPUS CKX53) et enregistré par une caméra rapide (Hamamatsu ORCA-Flash4.0 V3). L'injection de la suspension est assurée par un contrôleur de pression Fluigent MFCSTM-EZ

Dans une seconde partie de la thèse, nous avons procédé à une injection à pression imposée. Le protocole d'injection est le même qu'à débit imposé sauf que cette fois-ci, nous imposons la pression à l'aide d'un contrôleur de pression Fluigent MFCSTM-EZ autonome fournissant des pressions dans la gamme 0 mbar à 1000 mbar. Le montage expérimental est similaire à celui pour les expériences à débit imposé sauf que le capteur de pression à l'entrée du milieu vérifie la pression fournie par le contrôleur, et qu'un débitmètre Fluigent FLU-L-D était positionné à la sortie pour mesurer le débit.

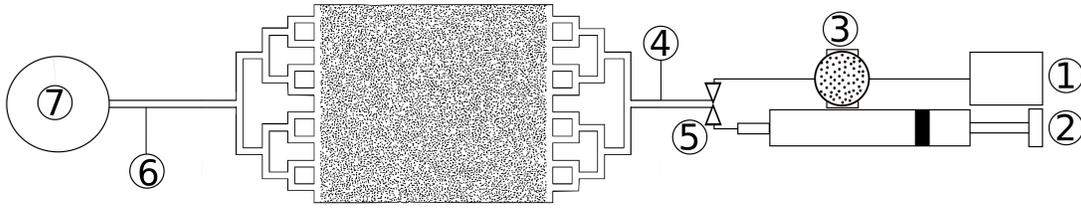


FIGURE 2.29 – Schéma d'injection - (1) : contrôleur de pression, (2) : seringue du fluide suspendant, (3) : seringue de dosage (sans piston) contenant la suspension, (4) : vanne 2 voies, (5) : capteur de pression, (6) : débitmètre, (7) : bac d'évacuation.

2.3.4 Mesure de débit

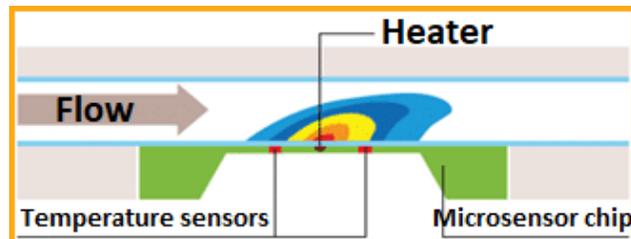
Le capteur de débit utilisé est le débitmètre thermique bidirectionnel **Fluigent FLU-L-D**. Il est réservé pour des systèmes microfluidiques, et ses principales caractéristiques sont les suivantes :

- **diamètre intérieur** : 1 mm
- **pression maximale** : 15 bar
- **gamme** : [-1 ml/min , 1 ml/min] pour l'eau et [-10 ml/min , 10 ml/min] pour l'isopropanol
- **précision** : 5% de la valeur mesurée au dessus de 0.04 ml/min et 1.5 $\mu\text{l}/\text{min}$ en dessous de 0.04 ml/min
- **répétabilité** : 0.5% de la valeur mesurée au dessus de 0.04 ml/min et 0.2 $\mu\text{l}/\text{min}$ en dessous de 0.04 ml/min

Ce débitmètre est basé sur le réchauffement du fluide le traversant. En effet, un micro-réchauffeur fournit une quantité minimale de chaleur au fluide (environ 1°C) et deux capteurs de température, situés des deux côtés de l'appareil de chauffage, détectent toute variation de température. Le débit est alors calculé en fonction du transfert de chaleur, qui est directement liée au débit [124]. Le principe de fonctionnement est illustré sur la figure 2.30b.



(a)



(b)

FIGURE 2.30 – a) Photo d'un débitmètre Fluigent FLU-L-D . b) Principe du fonctionnement du débitmètre Fluigent FLU-L-D [124]

Cette méthode de mesure du débit est l'une des plus simples et des moins intrusives.

Elle est assez facile à intégrer dans des dispositifs MEMS, car de très petits radiateurs et capteurs existent déjà. Néanmoins, il faut connaître la densité du fluide et sa capacité thermique spécifique. Ces valeurs doivent être constantes pour le bon fonctionnement du capteur [125]. Dans notre cas, l'évolution temporelle de la fraction volumique des particules en sortie du milieu peut affecter la mesure. Pour avoir une réponse sur l'incertitude liée à la suspension, nous avons fait une calibration du débitmètre en utilisant le fluide suspendant puis une suspension de 20% de concentration. La figure 2.31a montre les points expérimentaux et les courbes d'ajustements de la calibration effectuée en utilisant le fluide suspendant et la suspension. Nous remarquons qu'il y a effectivement une faible variation de pente de la courbe d'ajustement, ce qui fait que le changement de viscosité du fluide a un effet sur la mesure, sachant que la masse volumique reste constante puisque la suspension est iso-dense. Cependant, nous ne pouvons pas aller au-delà d'estimer la marge d'erreur sans pouvoir la corriger vu que nous ne sommes pas capables de mesurer la concentration à la sortie du milieu poreux. L'erreur relative entre les deux courbes d'ajustements est tracée sur la figure 2.31b. Nous remarquons que l'erreur ne dépasse pas 6% dans la marge des débits ($\geq 25 \mu\text{l}/\text{min}$) utilisée dans les expériences à pression imposée. Dans la suite, pour mesurer le débit à la sortie du milieu poreux, nous prenons la calibration faite pour le fluide suspendant et nous considérons que c'est valable pour n'importe quelle concentration en particules.

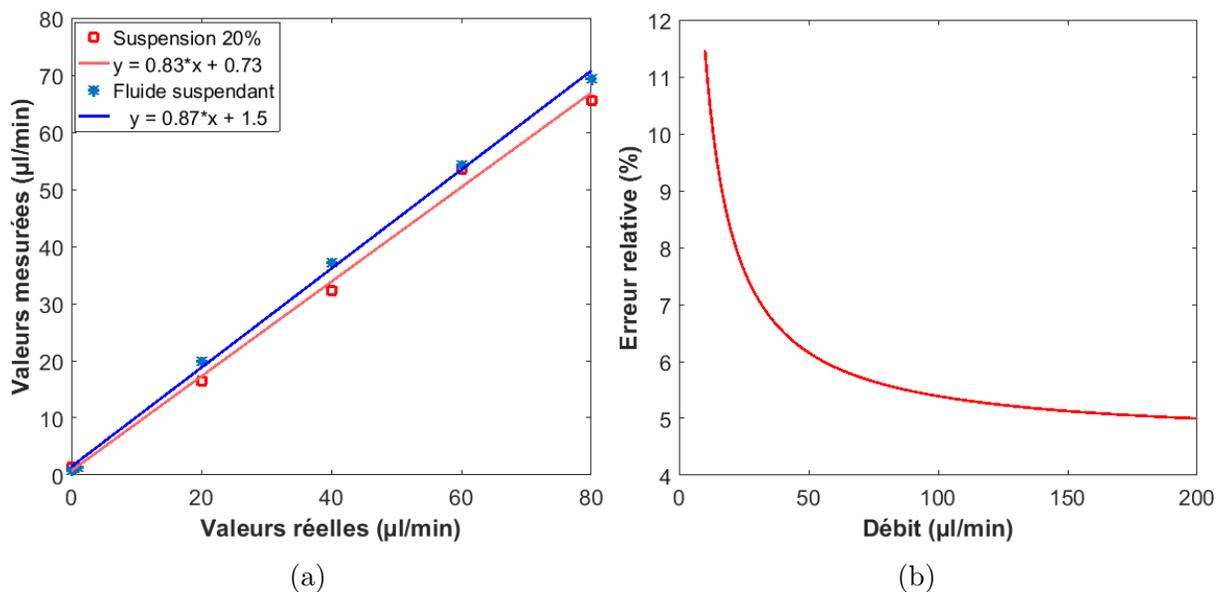


FIGURE 2.31 – a) Courbe de calibration du capteur de débit, en utilisant le fluide suspendant (en bleu) et la suspension à 20 % (en rouge). b) Courbe de l'écart relatif entre les deux courbes d'ajustement (suspension et fluide suspendant 2.31a) en fonction du débit.

2.3.5 Mesure de pression

2.3.5.1 Capteur de pression

Le capteur de pression utilisé est un capteur différentiel à membrane, de HONEYWELL (**ASDX-RR-X-015PDAA5**). Il donne la différence de pression ($P - P_{atm}$) comme illustré sur la figure 2.32a. Nous l'avons utilisé pour mesurer la différence de pression entre l'entrée et la sortie du milieu poreux. Considérant que les pertes de charge sont négligeables dans les canaux d'alimentation (voir paragraphe suivant), nous considérons que la mesure de pression différentielle entre l'entrée et la pression atmosphérique correspond à la différence de pression dans le milieu poreux. Ce capteur (ASDX RR X 015PDAA5) travaille dans une gamme de pression allant de 0 à 15 psi, soit de 0 à 1 bar, avec un pourcentage d'erreur de 2% et un temps de réponse de l'ordre de 2 secondes. Il est connecté à un circuit imprimé et une carte arduino pour l'alimenter et récupérer un signal en sortie.

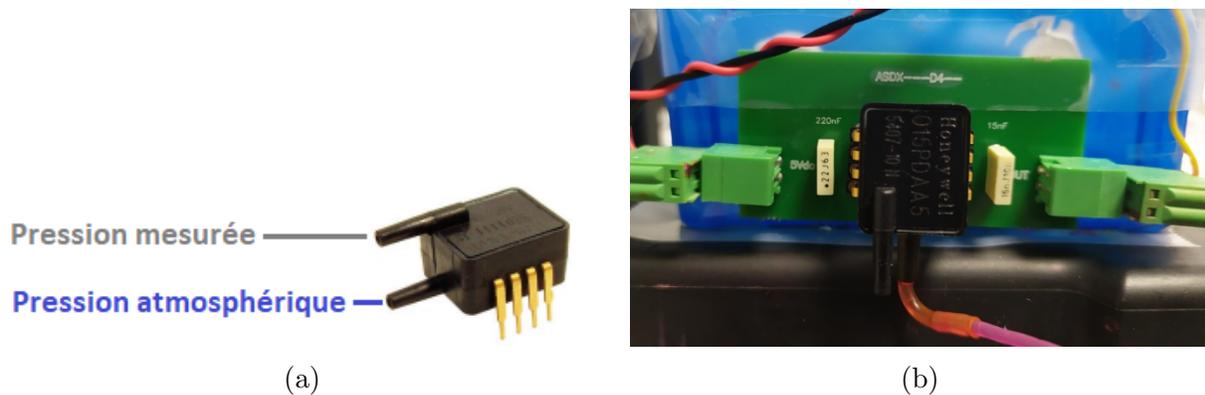


FIGURE 2.32 – Photo du capteur de pression HONEYWELL

Pour nous servir du capteur il a été nécessaire de le calibrer. Dans ce but, nous avons utilisé notre contrôleur de pression Fluigent MFCSTTM-EZ. Les résultats de la calibration sont affichés sur la figure 2.33 qui représente la courbe d'ajustement des valeurs de pression imposées par le contrôleur en fonction des valeurs fournies par le capteur.

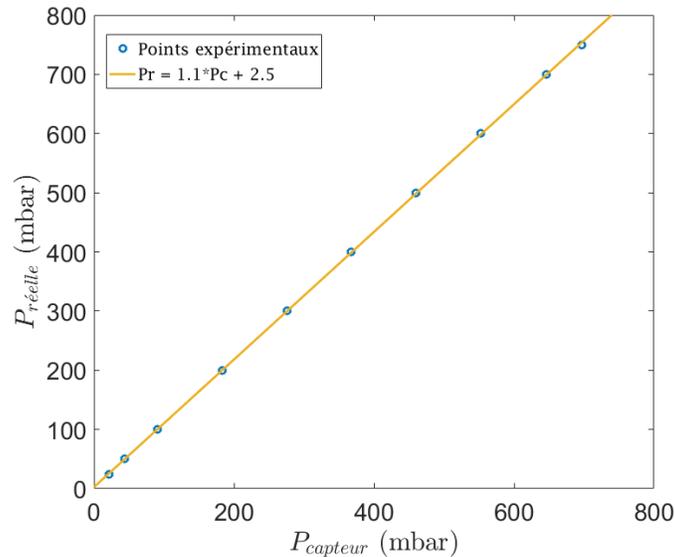


FIGURE 2.33 – Courbe de calibration du capteur de pression

2.3.5.2 Estimation des pertes de charges

Pour s'assurer que la pression mesurée à l'entrée du milieu poreux puisse bien être assimilée à la différence de pression entre l'entrée et la sortie du milieu poreux, des mesures de pression fournies par le capteur, il est nécessaire d'estimer les pertes de charges en amont et en aval du milieu poreux ; dans les canaux d'alimentation (schéma en rouge de la figure 2.34) et dans les tubes (schéma en bleu de la figure 2.34). La longueur du tube en amont fait à peu près 45 cm et comprend des pertes de charges régulières et singulières. L'estimation est réalisée avec les données de concentration qui sont utilisées durant les expériences, à savoir une fraction massique de particules ϕ entre 0 % et 30 % et des débits allant jusqu'à 40 $\mu\text{l}/\text{min}$.

La figure 2.35a, représente les courbes de pertes de charges dans les tubes en fonction du débit pour les différentes concentrations utilisées dans nos expériences, et la figure 2.35a représente celles dans les pattes. Nous nous apercevons que les pertes de charges dans les pattes ne dépassent pas 1 mbar, donc sont quasiment négligeables quelque soit la fraction massique en particules. Dans les tubes, elles ne dépassent pas 3 mbar sauf pour la concentration de 30 % qui est très peu utilisable dans nos expériences. Donc au final, nous pouvons conclure sur le fait que les pertes de charges peuvent être considérées comme négligeables en amont du milieu poreux et par conséquent que la pression à l'entre de notre milieu correspond bien à la pression mesurée par le capteur, d'autant plus que la distance entre les deux (capteur et entrée du milieu) est de 15 cm soit un tiers de la distance totale du tube prise en compte dans notre estimation des pertes de charges.

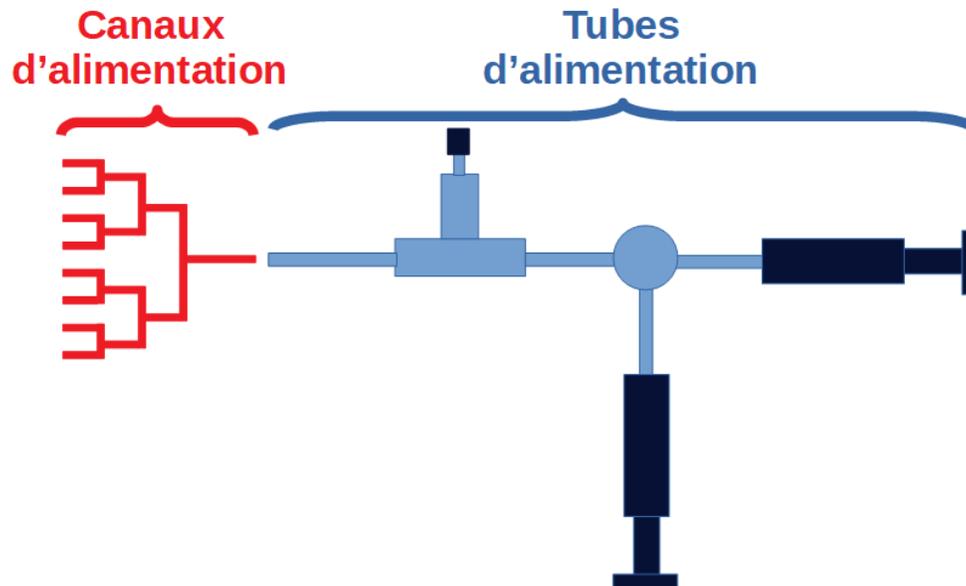


FIGURE 2.34 – Schéma des différentes singularités et longueurs droites dans les canaux et les tubes d'alimentation en amont du milieu poreux.

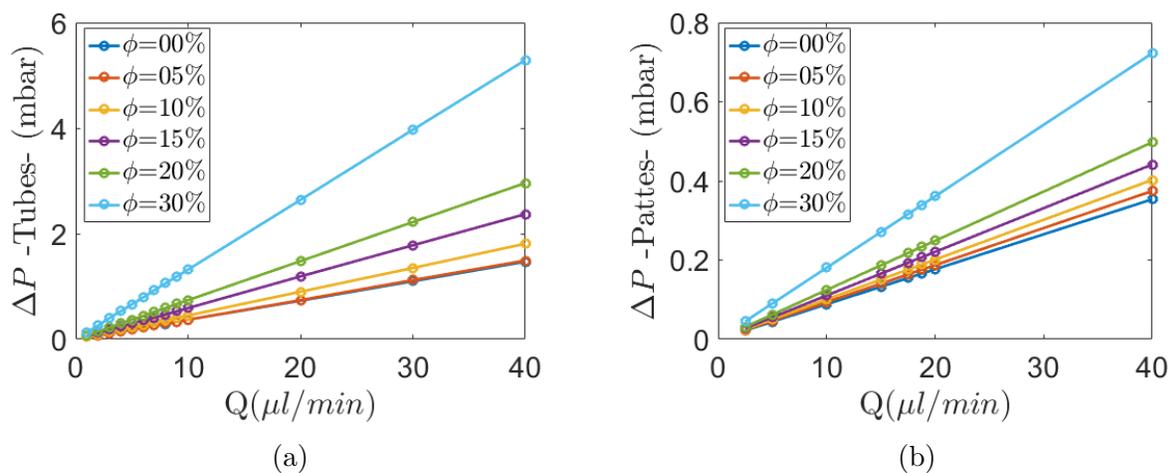


FIGURE 2.35 – a) Pertes de charges (mbar) dans les tubes, en fonction du débit pour les concentrations utilisées . b) Pertes de charges (mbar) dans les pattes, en fonction du débit pour les concentrations utilisées .

2.4 Validation du dispositif expérimental

2.4.1 Caractérisation du gonflement du dispositif en PDMS

Dans cette partie le but est d'examiner l'effet de la pression sur la déformation du PDMS suite à l'injection du fluide dans le milieu poreux. Pour ce faire, nous injectons le fluide suspendant marqué en fluorophore et nous changeons de débit au fur et à mesure.

Le passage à un autre débit plus grand se fait une fois que le palier de pression est atteint.

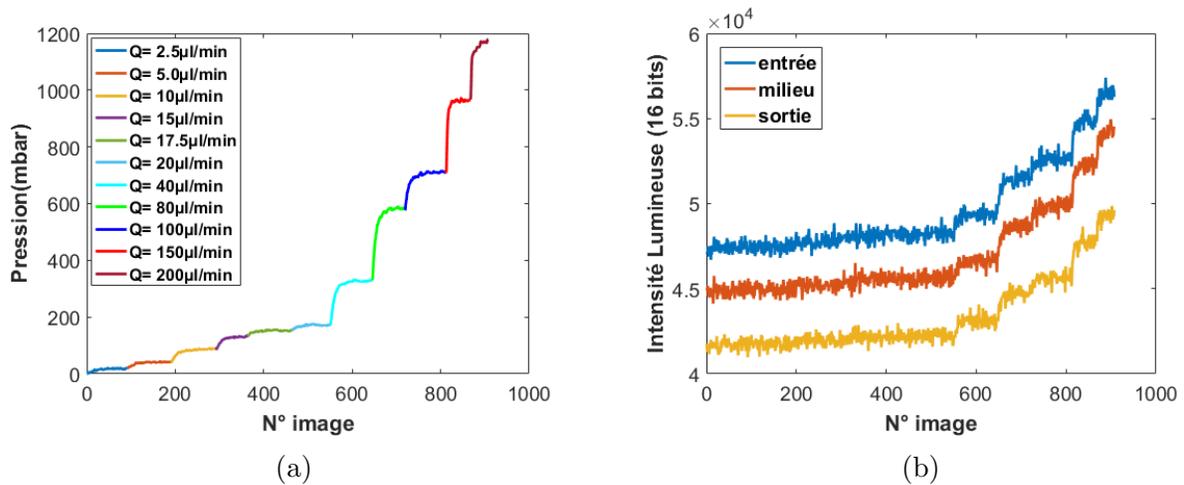


FIGURE 2.36 – a) Différence de pression entre l’entrée et la sortie du milieu poreux en fonction de nombre d’images pour différents débits. b) Intensité lumineuse (16 bits) à l’entrée, au milieu et à la sortie du milieu poreux en fonction du nombre d’images.

La figure 2.36a illustre clairement la manipulation réalisée. La courbe multi-couleurs est la courbe de différence de pression entrée-sortie en fonction du nombre d’images. Chaque couleur correspond à un certain débit allant de $2.5 \mu\text{l}/\text{min}$ jusqu’à $200 \mu\text{l}/\text{min}$. À gauche sur la figure 2.36b nous représentons les courbes d’intensité lumineuse prenant des valeurs en niveau de gris comprises entre 0 et 65535 (16 bits).

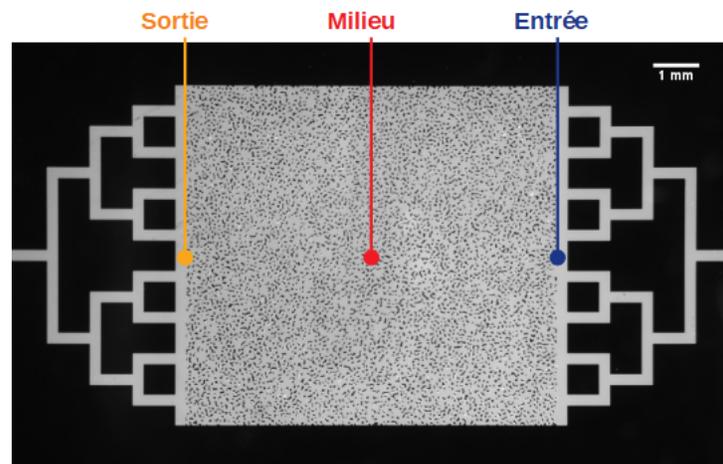


FIGURE 2.37 – Les positions de mesure d’intensité lumineuse lors de l’injection du fluide suspendant pour évaluer la déformation du milieu poreux

Les mesures d’intensité lumineuses sont faites sur trois parties du milieu poreux ; sur la piscine d’entrée, au milieu et sur la piscine de sortie comme il est montré sur la figure 2.37.

Nous observons que l'intensité lumineuse est d'autant plus importante près de l'entrée. Ce gradient d'intensité lumineuse traduit le fait que la pression à la sortie du milieu correspond à la pression atmosphérique alors qu'à l'entrée il s'agit de la pression imposée.

Si le PDMS ne se déformait pas et si le milieu poreux gardait le même profondeur, l'intensité lumineuse devrait rester constante quelque soit le débit. Ce n'est pas le cas d'après les résultats de la figure 2.36b, qui montrent que l'intensité lumineuse augmente avec le débit. Pour quantifier cette déformabilité, nous traçons dans un premier temps l'intensité lumineuse en fonction de la pression. Sur la figure 2.38a nous représentons la moyenne de l'intensité lumineuse sur chaque palier en fonction de la différence de pression au niveau des trois zones définies précédemment (entrée, milieu et sortie). Pour regarder le comportement du PDMS en terme de déformabilité dans les différentes zones, et en partant du principe que l'intensité lumineuse est proportionnelle à la déformation des canaux, nous définissons la variable **Gonflement** par :

$$\text{Gonflement}(\%) = \frac{\text{Intensité} - \text{Intensité}_{\text{initiale}}}{\text{Intensité}_{\text{initiale}}} \times 100 \quad (2.3)$$

où : $\text{Intensité}_{\text{initiale}}$ est l'intensité lumineuse du premier débit $2.5 \mu\text{l}/\text{min}$.

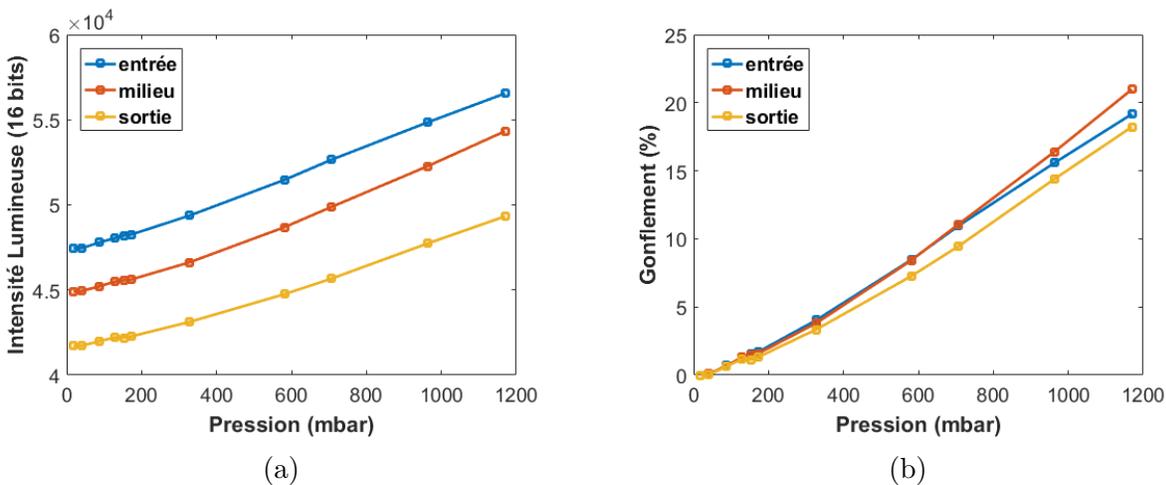


FIGURE 2.38 – Caractérisation de la déformation de dispositif en PDMS par la pression. a) Intensité lumineuse (16 bits) à l'entrée, au milieu et à la sortie du milieu poreux en fonction de la pression. b) Gonflement du milieu poreux en fonction de la pression, à l'entrée, au milieu et à la sortie du milieu poreux.

Cette variable représente la variation de la profondeur du milieu poreux. Son évolution avec la pression est tracée sur la figure 2.38b. Nous constatons qu'en dessous de 400 mbar les trois courbes sont quasiment les mêmes et que l'augmentation de profondeur ne dépasse pas 5 %. Alors qu'au delà de 400 mbar, cette augmentation de profondeur à la sortie devient un peu plus faible qu'au milieu, et qu'à l'entrée, ce qui est tout à fait normal vu le gradient de pression dans le milieu. Aux environs de 1200 mbar, l'augmentation de

A ($\mu m \times mm$)	L (mm)	ρ (m^3/kg)	g (m/s^2)	μ ($mPa.s$)
46 × 7.3	8	1180	9.81	12.14

TABLE 2.5 – Données expérimentales du dispositif poreux et du fluide suspendant

profondeur est autour de 20 %, ce qui est énorme. Pour cette raison, nous avons formulé le fluide pour avoir une faible viscosité (voir la paragraphe 2.2.4.1) qui nous permet de travailler à faible pression, dans la gamme [0, 200] mbar, c'est-à-dire avec une variation de la profondeur du milieu poreux ne dépassant pas 2

2.4.2 Calcul de la perméabilité

Maintenant que nous avons caractérisé le gonflement de notre dispositif, nous passons au calcul de la perméabilité intrinsèque de notre milieu poreux. Nous rappelons la loi de Darcy caractérisant l'écoulement d'un fluide à travers un milieu poreux :

$$Q = \frac{k A}{\mu L} \Delta P \quad (2.4)$$

avec :

- Q : Débit volumique filtrant (m^3/s)
- k : Perméabilité intrinsèque du milieu poreux (m^2)
- A : Surface de la section étudiée (m^2)
- L : Longueur de l'échantillon (m)
- ΔP : Différence de pression (Pa)
- μ : Viscosité dynamique du fluide ($Pa \cdot s$)

Donc la perméabilité s'exprime en fonction des paramètres de l'expérience sous cette forme :

$$k = \frac{Q \cdot L \cdot \mu}{A \cdot \Delta P} \quad (2.5)$$

Sur le tableau 2.5 sont affichées les principales données nécessaires au calcul.

Les débits et les pressions utilisés sont ceux de l'expérience de caractérisation du gonflement montrée sur la figure 2.36a. Sur la figure 2.39a, nous traçons la perméabilité du milieu en fonction de la pression. Nous nous apercevons qu'en dessous de 250 mbar (les points en bleu), celle-ci reste constante et prend une valeur de $5.57 \times 10^{-10} m^2$ environ. Au delà de 250 mbar (les points en rouge), nous constatons que la perméabilité croît de façon linéaire avec la pression.

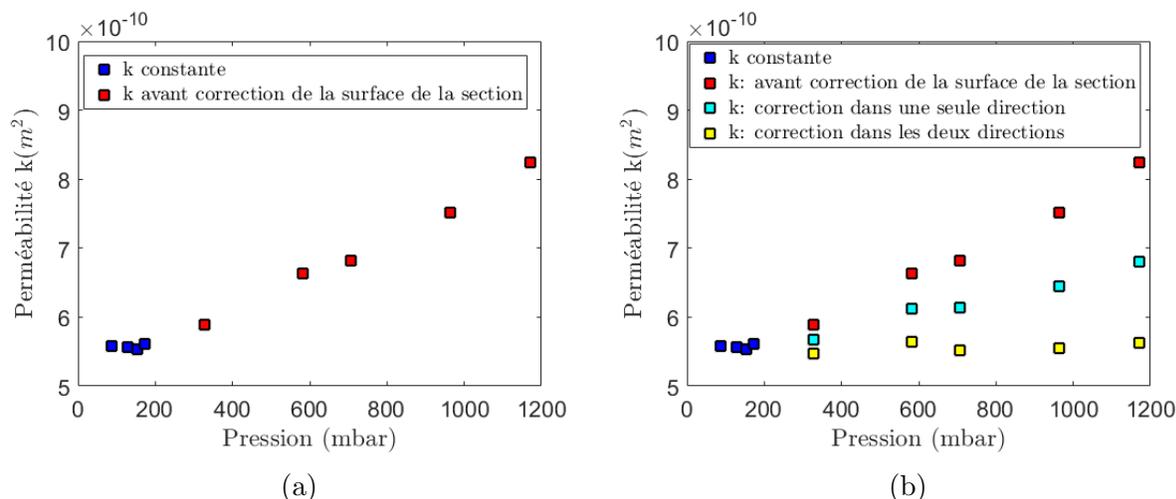


FIGURE 2.39 – a) Perméabilité du milieu poreux en fonction de la pression en considérant une section constante. b) Perméabilité du milieu poreux en fonction de la pression avant et après correction de la surface de la section.

Cette croissance est attendue vu que le dispositif subit une déformation. Mais pour être sûr du fait que l'origine de cette variation de perméabilité est bien la déformation du PDMS, nous avons essayé de prendre en compte la mesure de gonflement estimée précédemment (cf figure 2.38b). Au début, nous avons juste pris en compte le gonflement en terme d'épaisseur, c'est-à-dire dans une seule direction, et dans ce cas la surface de la section s'écrit en fonction du gonflement sous cette forme :

$$A = \text{Profondeur} \times \left(1 + \frac{\text{Gonflement}(\%)}{100} \right) \times \text{Largeur}$$

Cette première correction n'était pas suffisante car nous ne retrouvons pas la perméabilité du milieu avant déformation ($k=5.57 \times 10^{-10} m^2$). Sur la figure 2.39b nous pouvons bien voir que la perméabilité a baissé (les points en bleu turquoise) par rapport à la perméabilité prenant en compte une section fixe (les points en rouge) mais ce n'est pas assez.

Une hypothèse pour expliquer cet écart est qu'il faudrait prendre en compte une augmentation de la section de passage de la suspension dans les deux directions. C'est-à-dire que le gonflement des canaux entraînerait un amincissement des plots étirés, et donc un élargissement des pores. Sous cette hypothèse, l'expression de la surface de la section en fonction de la pression change et prend cette forme :

$$A = \text{Profondeur} \times \left(1 + \frac{\text{Gonflement}(\%)}{100} \right)^2 \times \text{Largeur}$$

La correction de la surface dans les deux directions (les points en jaune sur la figure 2.39b) s'avère pertinente et donne de bons résultats puisque nous retrouvons en moyenne la perméabilité avant déformation. Il faut noter que ce processus de correction est simplement

fait pour vérifier de notre hypothèse de gonflement et pour bien caractériser le milieu, mais que nous travaillons uniquement dans la gamme 0-400 mbar, pour laquelle la déformation du milieu est inférieure à 2%.

Enfin, pour faire le lien avec les milieux poreux naturels, nous nous apercevons que la perméabilité calculée correspond à la perméabilité des roches fracturées et des sables bien classés.

2.4.3 Traitement et analyse d'image

Dans ce paragraphe, nous allons détailler la méthode de traitement et d'analyse d'images utilisée afin d'extraire les différents indicateurs que nous avons définis pour caractériser la dynamique de colmatage. Nous avons choisi de définir des indicateurs basés sur des images binarisées. L'objectif est de distinguer les zones d'accumulation de particules, que nous appelons cluster, des zones où l'écoulement a lieu. Une approche plus fine, s'intéressant aux variations de concentration locale des particules dans les clusters est présentée dans la section 2.5

2.4.3.1 Protocole

Les différentes étapes de traitement des images sont présentées sur la figure 2.40 :

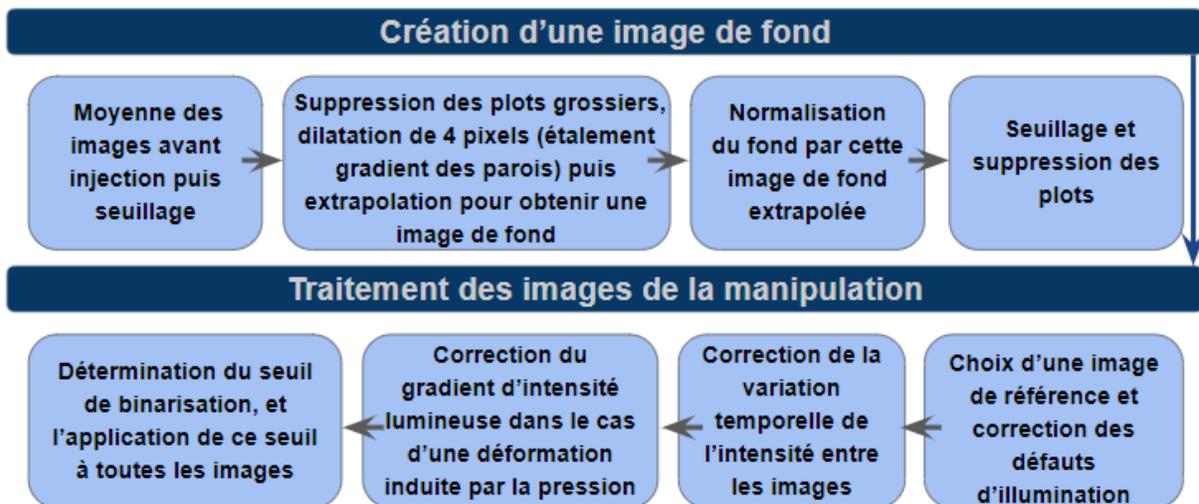


FIGURE 2.40 – Schéma résumant les différentes étapes de traitement d'images

La première étape consiste à réaliser une image de référence, sans particule. Pour ce faire, nous faisons la moyenne d'une vingtaine d'images du milieu lors de l'injection du fluide suspendant (phase de saturation du milieu poreux, voir section 2.3.2 pour les détails sur le protocole expérimental). La figure 2.41a montre un exemple d'image moyenne avant injection de la suspension. À titre indicatif Les images sont en niveaux de gris codée entre 0 et 65535 (16 bits = 2^{16} valeurs).

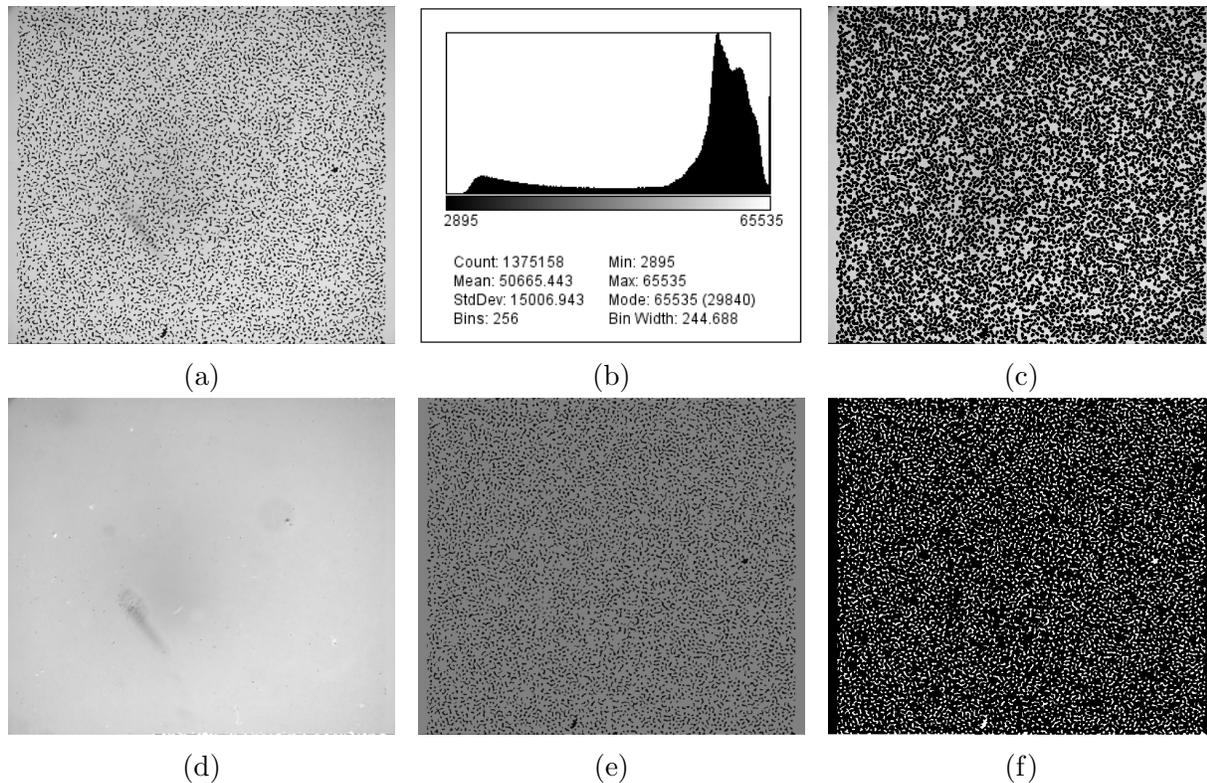


FIGURE 2.41 – Correction des défauts d’illumination et création du masque des plots. a) Image de fond moyen. b) Histogramme d’intensité lumineuse (en 16bit) de l’image de fond. c) Image avec plots supprimés. d) Image de fond extrapolée. e) Image de fond normalisée par l’image extrapolée. f) Masque des plots.

Le second objectif est de corriger les défauts d’illumination. Pour ce faire, les plots sont supprimés par seuillage. La figure 2.41b montre l’histogramme d’intensité lumineuse de l’image moyenne 2.41a. Sur celle-ci, nous pouvons noter qu’il est possible de discerner les plots du fluide. La bosse de droite correspond au fluide suspendant, et celle de gauche aux plots. Un seuil pris pour un niveau de gris de 30000 semble adapté. Néanmoins, des effets de bords apparaissent autour de chacun des plots, avec un gradient d’intensité lumineuse étalé sur environ 4 pixels (voir figure 2.42). Ainsi, pour corriger les défauts d’illumination, nous dilatons les plots de 4 pixels, afin de s’assurer de ne prendre en compte uniquement des zones ”loin” des plots, dont l’intensité lumineuse n’est pas affectée par la présence de ces derniers. La figure 2.41c montre l’image obtenue à l’issue de cette étape. Puis, nous extrapolons les valeurs d’intensité lumineuses entre les zones conservées, afin de remplir les zones de plots dilatées. Pour ce faire, nous avons utilisé une fonction d’interpolation 2-D des éléments NaN à partir des éléments non-NaN de John D’Errico, implémentée dans Matlab [126]. Le résultat de l’image interpolée est donné sur la figure 2.41d. Cette image représente l’intensité lumineuse sur l’image, sans présence de plot.

Ensuite, les défauts d’illumination et la présence de tâches sur le dispositif sont corrigés

sur l'image de fond en la normalisant par l'image extrapolée. Sur la figure 2.41e, il est clair que le niveau de gris est devenu homogène partout dans le milieu après cette opération. La dernière étape consiste à extraire un masque des plots par binarisation sur cette image corrigée (figure 2.41f)

Donc pour résumer, sur cette première partie, nous avons pu d'une part créer une image de fond extrapolée qui servira à homogénéiser l'intensité lumineuse sur toutes les images de la manipulation. Et d'autre part, nous avons réussi à extraire le masque des plots qui sera utilisé dans la suite pour éliminer tous les plots lors du traitement sur la partie d'injection de la suspension.

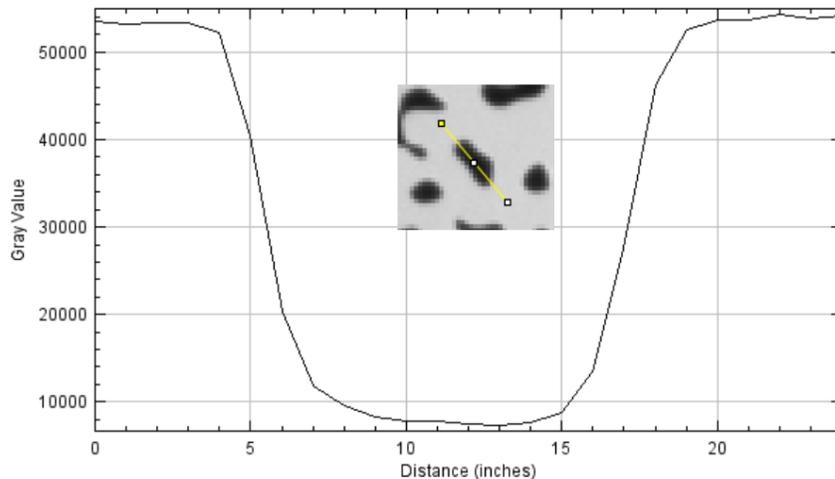


FIGURE 2.42 – Courbe du niveau de gris en fonction de la distance le long d'un plot du milieu poreux. En jaune, est le segment sur lequel la mesure a été réalisée.

Une fois le masque des plots extrait, nous passons à la partie du traitement d'images après injection de la suspension. Le but est d'identifier les clusters, c'est-à-dire là où les particules s'accumulent et constituent des agrégats. Cette extraction se fait après application de trois corrections sur toutes les images :

- Correction des défauts d'illumination en normalisation avec l'image de fond,
- Correction du gradient d'intensité lumineuse à cause d'une déformation induite par la pression.
- Correction de la variation temporelle de l'intensité entre les images en maintenant la valeur moyenne de l'intensité dans les plots constante sur toutes les images.

Pour commencer, nous nous sommes rendus compte qu'un gradient d'intensité lumineuse faible existait entre l'entrée et la sortie du milieu poreux à cause d'une légère déformation du milieu, cette déformation étant liée à la différence de pression en l'entrée et la sortie. Ce gradient d'intensité lumineuse est calculé en utilisant la variation spatiale du niveau de gris moyen des plots comme référence. De plus, nous supposons que cette déformation n'est qu'horizontale. Nous obtenons une image gradient (figure 2.43b) qui

représente l'écart entre l'intensité lumineuse à une abscisse donnée par rapport à l'intensité lumineuse moyenne de l'image. Ce gradient d'intensité lumineuse est corrigé sur l'image de fond. Puis, toutes les images sont corrigés (défaut d'illumination + gradient) en les normalisant par l'image de fond (figure 2.41f). Nous obtenons après normalisation l'image affichée sur la figure 2.43d.

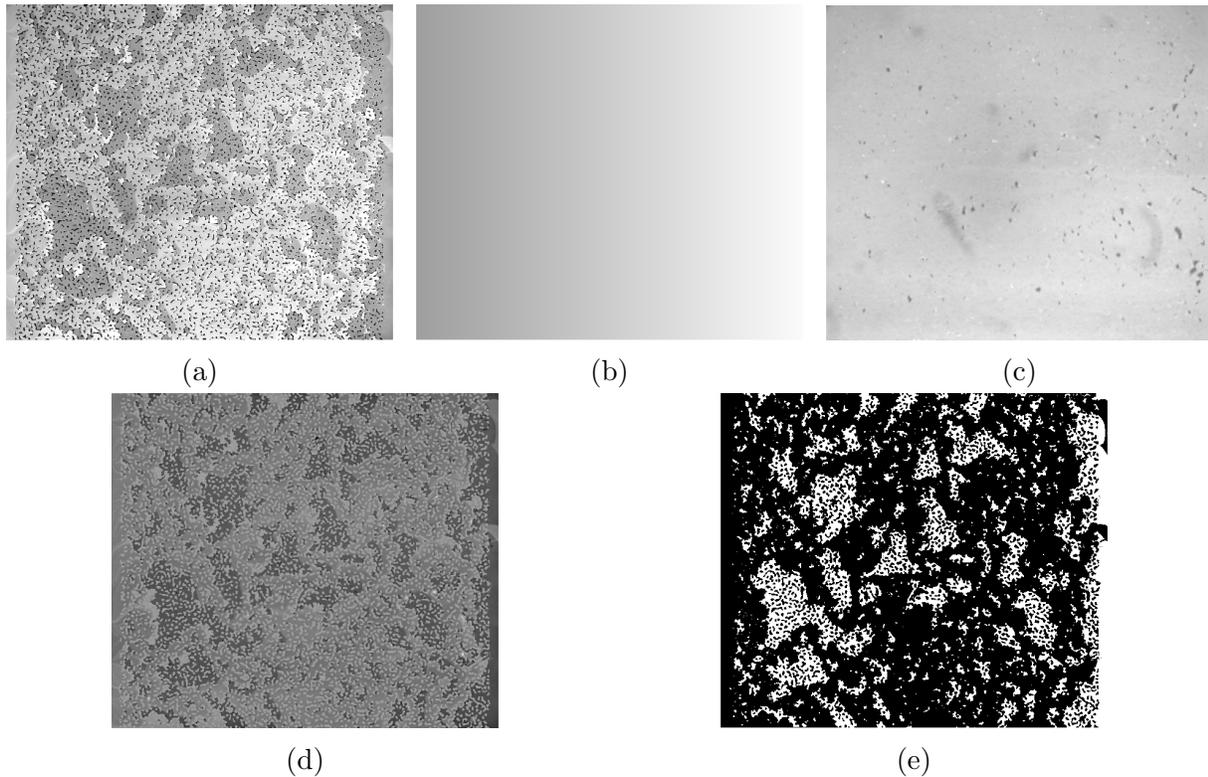


FIGURE 2.43 – a) image de fond moyen. b) histogramme d'intensité lumineuse (en 16bit) de l'image de fond. c) image avec plots supprimés. d) image de fond extrapolée. e) image de fond normalisée par l'image extrapolée.

Une dernière correction consiste à prendre en compte la variation temporelle de l'intensité entre les images. A cet effet, nous gardons constante la valeur moyenne de l'intensité dans les plots en divisant les valeurs de chaque image par la valeur moyenne des plots. La figure 2.44a illustre le niveau de gris moyen au niveau des plots en fonction des numéros d'images avant et après correction. Nous pouvons clairement voir à travers cette figure que la valeur des plots sera constante tout au long du traitement de la manipulation. Les trois corrections faites se sont avérées suffisantes pour améliorer l'homogénéité de l'intensité de l'image et trouver ainsi un seuil bien clair comme ce que nous montrons sur la figure 2.44b qui représente la courbe d'accumulation de nombre de pixels de l'image en fonction du seuil de la variation pour la binarisation (l'axe des abscisses correspond aux valeurs des pixels de l'image de référence corrigée cf sous-image dans la figure 2.44b).

Une fois le seuil trouvé, nous passons à la toute dernière étape à savoir la binarisation de l'image de référence et l'application de toutes ces opérations effectuées à l'ensemble des images de la manipulation. La figure 2.43e montre à quoi ressemble le résultat final de binarisation à partir de l'image de référence. Nous arrivons donc à retrouver et détecter les clusters de l'image en niveau de gris et à leur affecter une valeur de 1 tandis que tout le reste prend une valeur de 0.

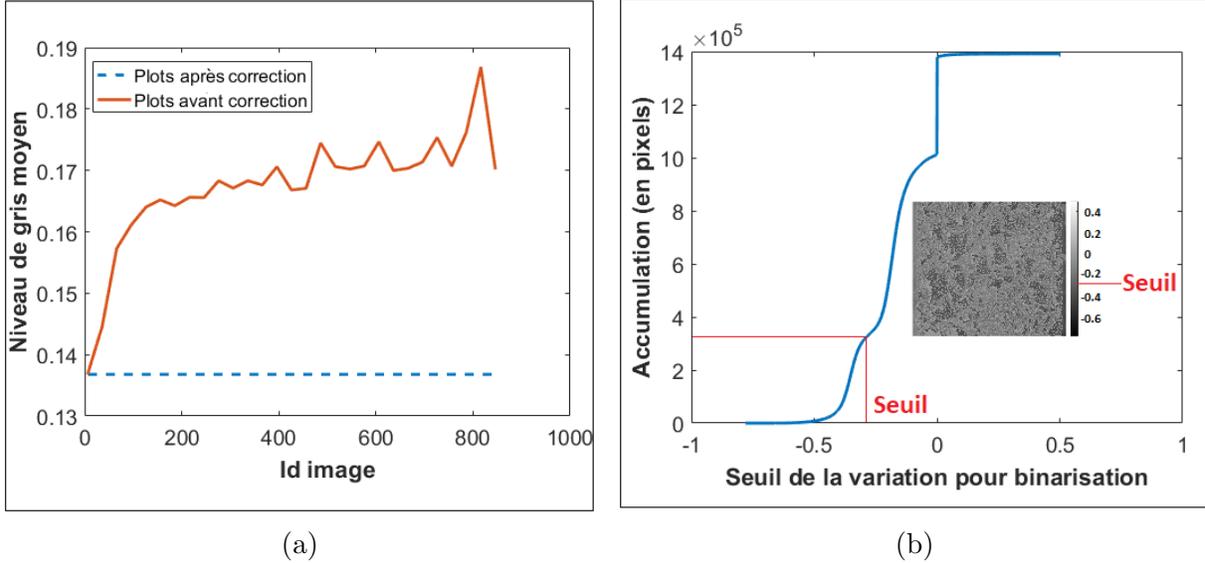


FIGURE 2.44 – a) Niveau de gris moyen au niveau des plots en fonction des numéros d'images avant et après correction de la variation temporelle de l'intensité entre les images. b) Courbe d'accumulation de nombre de pixels de l'image en fonction du seuil de la variation pour la binarisation .

2.4.3.2 Extraction des résultats

En considérant l'image binarisée au temps t comme une matrice $I_{i,j,t}$ égale à 1 s'il y a un cluster au pixel (i, j) , et 0 sinon, l'accumulation est la fraction volumique du milieu occupée par un cluster. Elle est simplement donnée par :

$$a(t) = \langle I_{i,j,t} \rangle_{i,j} \quad (2.6)$$

En utilisant l'algorithme de segmentation standard (matlab) sur les images binaires, nous avons identifié chaque cluster de particules arrêtées et calculé leur surface $A_{k,t}$. Nous avons vérifié à l'œil que les petits clusters de quelques pixels seulement correspondaient bien à des clusters réels, et n'étaient pas des artefacts. Certaines caractéristiques statistiques des clusters ont ensuite été calculées : la taille maximale du cluster $S_{c_{\max}}$, définie comme la racine carrée de l'aire du plus grand cluster ; la dimension transversale maximale du cluster, obtenue à partir de la dimension de la boîte englobante dans la direction

transversale à l'écoulement ; et la taille moyenne pondérée par l'aire du cluster S_c , que nous avons normalisée par la taille moyenne des pores du milieu. Elle est donnée par :

$$S_c(t) = \frac{1}{W_p} \sqrt{\frac{\sum_k A_{k,t}^2}{\sum_k A_{k,t}}} \quad (2.7)$$

La croissance et l'érosion des clusters sont suivies par la soustraction d'une image au temps t à une image au temps $t + dt$.

Nous avons observé que les clusters de particules arrêtées n'étaient pas fixes dans le temps et changeaient de taille et de forme. Afin de caractériser cette dynamique, nous avons systématiquement calculé les différences entre les images successives. Ceci nous a permis de caractériser la croissance et l'érosion des clusters, comme illustré sur la Fig. 3.3. Il était intéressant de définir une quantité globale pour quantifier cette dynamique, indépendamment de la variation temporelle de l'accumulation des particules. En effet, l'érosion et la croissance simultanées d'un cluster donné laisseraient l'accumulation inchangée. Nous avons défini la mobilité m à partir du volume cumulé de croissance et d'érosion des clusters arrêtés entre chaque pas de temps Δt , normalisé par le volume total du milieu poreux. Comme ce volume cumulé comprend des particules qui se sont accumulées, nous avons soustrait la valeur de l'accumulation, de sorte que la mobilité ne représente que la fraction du milieu correspondant aux particules arrêtées qui ont été renouvelées. En résumé, la mobilité a été calculée selon la formule suivante :

$$m(t) = \sum_{p \leq t} \langle |I_{i,j,p} - I_{i,j,p-\Delta t}| \rangle_{i,j} - a(t) \quad (2.8)$$

Une telle définition est a priori sensible au bruit et à l'incertitude du processus de binarisation. Elle peut également être sensible au pas de temps utilisé.

2.4.4 Reproductibilité

Nous nous sommes posés la question de reproductibilité des expériences surtout que notre milieu poreux modèle est désordonné.

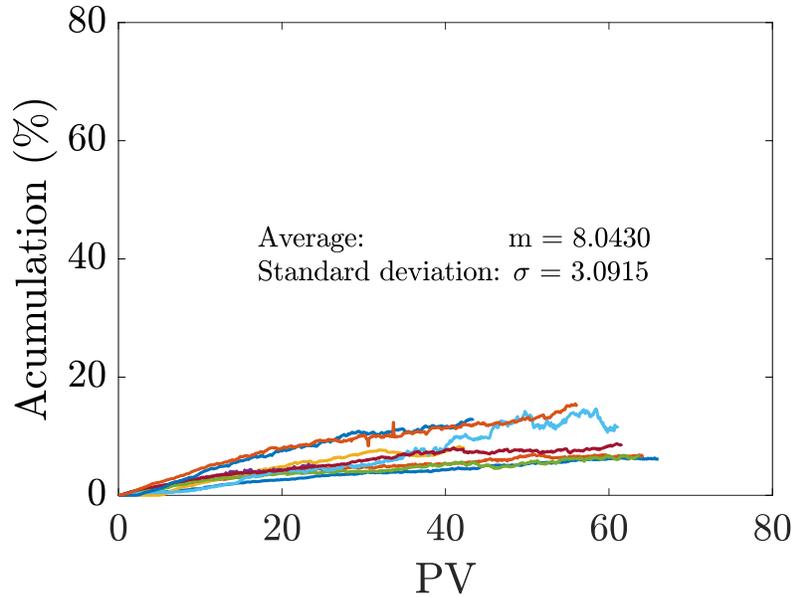


FIGURE 2.45 – Évolution de l’accumulation en fonction de VP pour une suspension de $\phi = 15\%$. La même expérience répétée 10 fois pour l’étude de reproductibilité .

Nous avons réalisé un ensemble d’expériences dans les mêmes conditions pour pour une suspension de $\phi = 15\%$. Nous reportons sur la figure 2.45 l’accumulation en fonction du nombre de volume de pores de suspension injectée. L’écart type de cet ensemble d’expériences est 3.0915%. Nous constatons que la variabilité n’est pas très importante mais au même temps les expériences ne sont pas non plus parfaitement reproductibles. Pour cette raison, nous avons choisi, comme nous allons voir ultérieurement dans le chapitre 4, de faire une étude statistique surtout dans la partie de l’injection à pression imposée. Cette étude statistique sera basée comme nous allons voir en détails sur le fait de répéter chaque expérience entre 4 et 7 fois.

2.5 Perspectives : vers une cartographie du champ de concentration

Dans cette étude nous nous sommes intéressés uniquement aux clusters par le biais d’un traitement d’images basé sur la binarisation. Nous avons vu que la raison de notre choix est du au fait qu’il y avait surtout deux concentrations dans le milieu : une première concentration de la partie en écoulement qui est à peu près de l’ordre de grandeur de la concentration injectée et une deuxième concentration plus grande qui correspond aux clusters. Donc nous nous sommes dit que le plus important dans un premier temps est d’abord la dynamique et les propriétés des clusters.

Après cette première étape, une des perspective qui s’impose est de faire une cartogra-

phie de la concentration des particules de sorte que nous puissions donner la valeur de la concentration en chaque point du milieu et décrire de près les petites variations dans la phase qui coule. Cette cartographie peut apporter encore beaucoup d'informations sur ce qui se passe autour des clusters, ce qui va permettre de mieux comprendre et décrire le phénomène étudié. Nous avons effectué quelques essais de cartographie semi-quantitative comme ce qui est montré sur la figure 2.46. La figure 2.46a est une image acquise en microscopie à florescence sur laquelle les zones blanches sont celles où il y a le moins de particules, les zones sombres (gris foncé) sont celles où la concentration est maximale et les zones en gris clair celles où la concentration correspond à la concentration initiale d'injection. La figure 2.46a représente une cartographie semi-quantitative de cet exemple, dans laquelle le 0 correspond à la concentration minimale et le 1 à la concentration maximale.

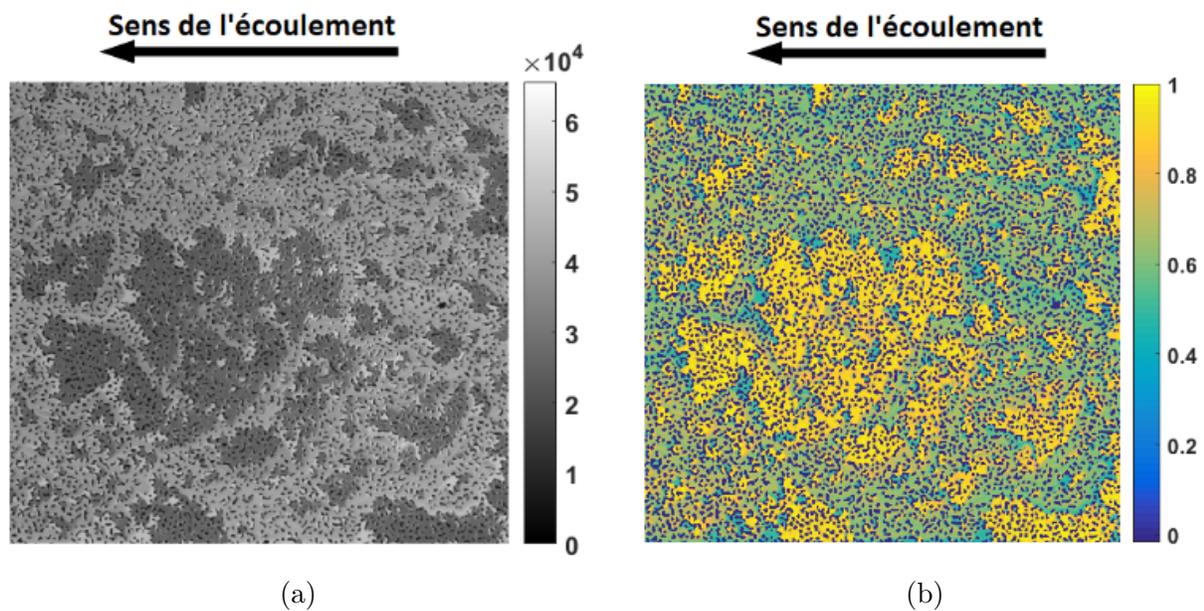


FIGURE 2.46 – a) Image acquise par la caméra représentant un exemple de l'état du milieu poreux à travers lequel une suspension dense s'écoule. b) Cartographie de concentration suivant une loi linéaire (1 correspond à la concentration maximale de particules et 0 correspond la concentration minimale de particules).

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons pu donner un aperçu sur les outils et méthodes essentiels dans l'étude élaborée dans ce travail, allant de la fabrication des milieux poreux modèles à l'analyse et au traitement d'images. En ce qui concerne la suspension, nous avons élaboré un protocole de tamisage des particules pour assurer leur monodispersité puis avons préparé un fluide qui répond à notre cahier de charge avant de caractériser la

suspension. Ensuite nous avons détaillé le principe de mesure en microscopie à fluorescence et de mesure des différentes grandeurs nécessaires à la quantification des résultats. Nous avons consacré une partie à la validation notre dispositif expérimental, puis nous sommes passé au traitement et à l'analyse d'image avant de clore par des perspectives.

Chapitre 3

Article : Particle accumulation and clogging of a 2D model porous media by suspensions of non-Brownian hard spheres

Sommaire

3.1	Introduction	100
3.2	Materials and Methods	102
3.2.1	Micromodels	102
3.2.2	Suspension	102
3.2.3	Experimental procedure and image processing	104
3.3	Results and discussion	107
3.3.1	Clogging phase diagram	107
3.3.2	Particle accumulation	108
3.3.3	Cluster size	111
3.3.4	Cluster dynamics	113
3.3.5	Discussion	115
3.3.5.1	Clogging mechanism and percolation	115
3.3.5.2	Role of flow rate	116
3.3.5.3	Role of volume fraction and cluster dynamics	117
3.4	Conclusion	118

Ce chapitre est sous la forme d'un brouillon d'article. Il présente les résultats obtenus sur le colmatage du milieu poreux modèle 2D pour une suspension de particules tamisées non browniennes

Article : Particle accumulation and clogging of a 2D model porous media by suspensions of non-Brownian hard spheres

Abstract

Particle accumulation and clogging of porous media were studied by direct observation in 2D micromodels for conditions where colloidal interactions between particles and between particles and solid walls are negligible. Pore throat bridging mechanism triggered the accumulation of particles at certain locations in the porous medium, as soon as the neck/particle ratio was of the order of 3 or less. Dense clusters of arrested particles grew very slowly over time, reaching a pseudo-stationary state at low volume fraction for this particular ratio. The particle accumulation was found to be linear with respect to the injected volume fraction. At higher volume fractions, the arrested particle clusters percolated and clogged the medium. In both regimes, independently of the experimental control parameters, a unique relationship was found between the amount of particles trapped in these clusters and their average size, and was in good agreement with the random percolation theory. A rather weak influence of flow rate was observed, as expected for hard spheres at low Reynolds number and high Peclet number. Rich and complex dynamics were observed when approaching clogging conditions, indicating that particle accumulation and clogging in the studied non adhesive regime could be the result of a balance between particle trapping causing cluster growth and mechanisms of erosion and destabilization of dense clusters.

3.1 Introduction

Suspension flows through porous media are encountered in many applications such as ink-jet printing [127], waste water treatment [128], oil recovery [129], particle [130] or cell [131] sorting, as well as red blood cell flows [132] or sediment transport [133]. In lot of situations, these flows can be affected by clogging, which is defined by Dressaire et al. as the mechanisms that interrupt the transport of particles in confined geometries [85]. Clogging of a porous media is generally to be avoided. For example, it is the major obstacle for the development of membrane based filtration process because of the decrease

of the permeate flux over time [134]. This phenomena is very complex because it involve colloidal interactions between particles, and between particles and the solid phase of the porous medium. It has been broadly studied at macroscopic level, for example measuring the retention rate of particles or the growth dynamic of a cake at the entrance of the porous medium when the suspension is passing through it. But recently, the progress in microfabrication give the tools to fabricate two-dimensional and transparent microfluidic model of porous media [135] suitable to study the clogging at pore scale. Moreover, pore blocking can be seen as the initial phase of the total fouling of a porous medium, before the formation of a cake layer at its entrance [134]. Thus, studies of clogging phenomena conducted at local scale with microfluidic devices is a great opportunity to provide data or mechanism that can help to interpret macroscopic experiments [69].

From around fifteen years, many studies have been performed at single pore scale and three main pore clogging mechanisms were highlighted (see [85] for a detailed review). The sieving occurs when a particle is too big to enter in a pore. In case of a rigid particle, it is limited to a geometrical problem : a big particle block the pore, and then a cluster grows upstream [84]. The second mechanism is called bridging. It corresponds to the formation of an arch across the pore section involving few particles. The probability to form an arch increases a lot when the neck-to-particle size ratio becomes lower than around three [136]. It also depends on the particle concentration in the suspension because it can be triggered only when enough particles are located at the same time where the arch forms. The latter can be mechanically stable with constant condition, even in a straight tube [90]. Nevertheless, they can be destabilized by perturbations easily, and intermittent flows are observed [137] around a neck-to-particle size ratio of three - five. The last mechanism is particle aggregation. It appears when particles can adhere to wall and to other particles. Particles are capture by physical-chemical interactions and a cluster growth continuously, until clogging the pore. It depends a lot on the competition between the physical-chemical surface interactions which capture the particles to the surface and the drag force which tends to pull them off [105]. When experiments are conducted in a series of parallel pores, the growth of clogs are coupled between pores, because of the colloid diffusion from a clog to its neighbouring pores [138] and the modification of the hydraulic resistance of clogged pores [139]. In 2-dimensional porous media with regular pattern, the formation of a clog in pore promotes also more clogging locally [140].

At this point, lot of improvement have been done thanks to microfluidics to explain clogging phenomena in porous media. Nevertheless, the effect of the intrinsic geometrical randomness of most of pore space are still unexplored. Moreover, there is a lack of study of clogging in case of a dense suspension in model porous media, probably because of the experimental difficulties to characterize the flow and to have a consistent set of experiments, whereas interesting phenomena have been observed at one constriction scale as self-filtration and oscillatory particle flows [141]. Thus, the goal of this paper is to

extend previous result to the clogging of a 2D disordered micromodel for a dense suspension flow. Our goal is to analyze the effect of flow conditions and suspension properties on the clogging dynamics. The study will focus specifically on the bridging mechanism under laminar flow of non brownian, inertialess, non buoyant and non adhesive particles. In term of dimensionless number, it means that the Reynolds number $Re = \rho_s U h / \mu_s$, the Stokes number $St = 1/18 \rho_p D^2 U / (\mu h)$, the Archimedes number $Ar = g D^2 (\rho_p - \rho_f) / \mu U$ and the adhesion number $N_{as} = F_A /$ are much smaller than one, and that the Peclet number $Pe = 6\pi\mu_f (D/2)^2 U / (k_B T)$, is much higher than one, where ρ is the density, μ the viscosity, U the velocity, h the typical pore size, D the particle diameter, and where indexes s , f and p indicate the suspension, the fluid and the particles.

The experimental procedure will be detailed in the first section of this paper, with a specific focus on the preparation of suspension with refractive index and density matching, adapted to our image analysis procedure. Then, the results concerning clogging and particle accumulation for different neck-to-particle size ratio, flow rates, and suspension solid fraction are presented and discussed.

3.2 Materials and Methods

3.2.1 Micromodels

The micromodels are fabricated by soft lithography. A mask layout of a disordered porous media was generated by an algorithm which enable to set the porosity, a typical correlation length between pores and pillars (details on the algorithm could be found in reference [142]). Inlet and outlet are designed as a tree network in order to inject homogeneously the suspension (figure 3.1a and b). Pore and throat size were characterized a posteriori by image anlysis (see again reference [142] for details). The porous medium was 7.3 mm width and 8 mm long. It was made of 3547 pores and 8426 pore throats of an average width equal to $W_p = 59\mu\text{m}$. The constant thickness is $e = 46\mu\text{m}$. The pore throat width distribution are presented in figure 3.1c.

This mask layout was printed and used to fabricate a silicon wafer master with a laminated dry film negative photoresist (DF-1050) [143]. Then, polydimethylsiloxane (PDMS) was casted, polymerized and unmold. Supply holes were pierced with a punch and a glass slide was bonded as a cover after an oxygen plasma.

3.2.2 Suspension

To be able to observe the formation of clogs and the qualitative particle concentration field, the experiments were performed using refractive index matching between solution and particles, but adding a fluorescent die in the carrier fluid. In that way, the intensity of

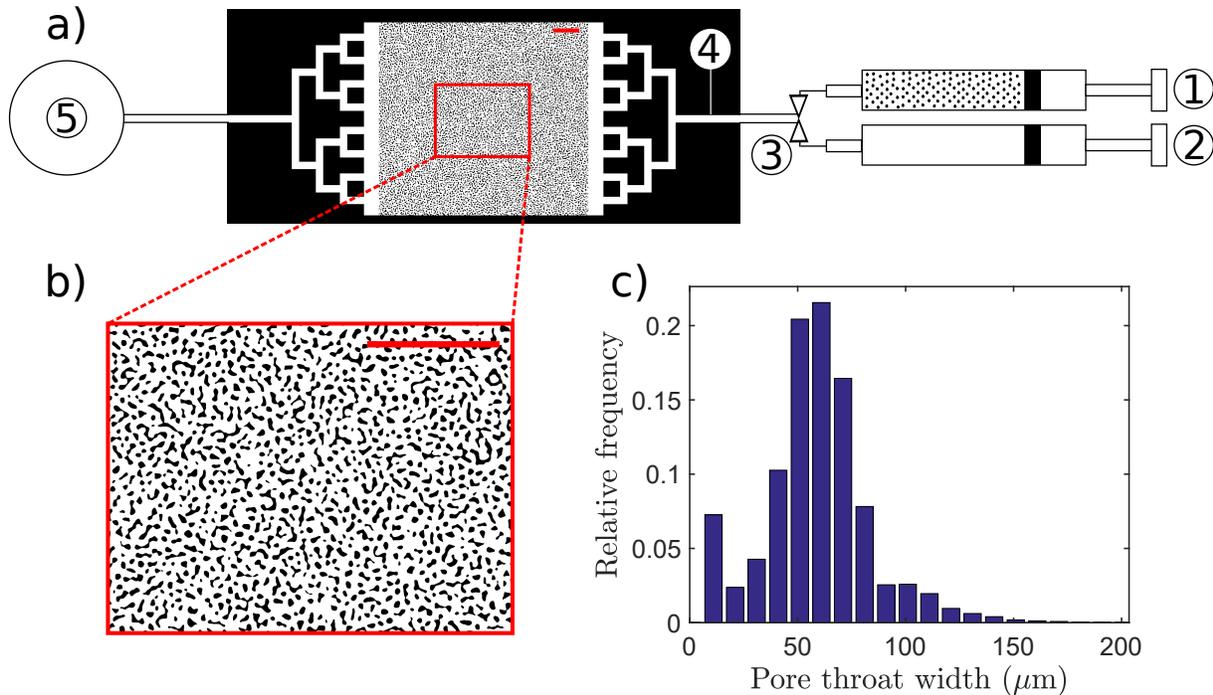


FIGURE 3.1 – Experimental procedure. a) A syringe filled with the suspending fluid (1) and one filled with the suspension (2) are connected to the model porous media through a switch valve (3). A pressure sensor (4) measures the pressure at the entrance. The exit is connected to a reservoir (5) opened at ambient pressure. b) Zoom in the random porous media. c) Distribution of the pore throats width. The red scale bars are 1 mm.

the suspension was directly related to the particle volume fraction. Indeed, the presence of particles reduced the amount of dye locally, and the suspension appeared darker. Typical grayscale images obtained by fluorescent microscopy are shown in figure 3.3, We could clearly distinguish the pillars, some dense clusters and the suspension with different gray scale levels. For example, downstream a cluster, the suspension is brighter because particle are sieved by it. In principle, one could get after calibration and quantitative determination of the local volume fraction, but we restricted ourselves in this work to distinguish dense region of the flow from the flowing suspension.

To avoid sedimentation the fluid and the particle had to be density matched. Thus, we designed a 3 component suspending liquid to match refractive index and density at the same times, being inspired by reference [144]. We were limited to study liquids of low enough viscosity in order to avoid deformation of the PDMS device due to the pressure associated to the flow. In addition, the liquid used should not swell the PDMS device.

After significant investigations made of trails and errors, we found an experimental system satisfying all the above mentioned constraint. The system used was made of polymethylmetacrylate (PMMA) particles dispersed in a suspending liquid consisting in a mixture of 2-pyridinemethanol, deionised water and sodium iodide. Chemicals were pur-

Component	Density (g/cm ³)	Refractive index	Mass fraction (%)
2-pyridinemethanol	1.131	1.543	62
Deionized water	0.997	1.33	27
NaI	3.670	1.774	11
Solution	1.18	1.48	100

TABLE 3.1 – Suspending liquid composition and physical quantities of the solution and its components.

chased from Sigma Aldrich. Physical properties and mass fraction of each solution component are summarized in table 3.1. We obtain a carrier fluid with a viscosity of 15.34 mPa.s. The density was 1.18 and the refractive index 1.48, both matching PMMA properties. Fluorescein was added in the solution at a concentration of 1%. It was verified that bleaching was negligible during the experiments.

Different monodisperse PMMA particles suspension were prepared with diameter equal to 6, 10 15 and 20 μm (Spheromers C from Microbeads) and a volume fraction ranging from 5 to 30%. Thus, the neck-to-particle size ratio is around 8 to 1.5. It was identified that these particles contain around 0.12% of bigger particles. These contaminant particles were sorted under vibration and through a nylon sieve (Nytal). This step was extremely important since these big particles, even in very low quantity greatly enhanced clogging.

The viscosity of the 15 μm particle suspension was characterized with a cone and plate rheometer, at 25°C, for different shear rate and solid fractions (see in figure 3.2). The viscosity was found to be rate independent, as expected for a hard sphere suspension. The viscosity increased when increasing the particle volume fraction. It was well accounted by the following relation [?]

$$\mu_s = \mu_0 \frac{\exp(-2.34\phi)}{(1 - \phi/\phi_m)^3} \quad (3.1)$$

where μ_s and μ_0 are suspension and carrying fluid viscosities, ϕ and ϕ_m the solid and the maximal solid fraction (taken equal to 0.62).

3.2.3 Experimental procedure and image processing

To perform the experiment, the microdevice was first saturated with the carrier fluid. Then, the suspension was injected at constant flow rate ranging from 2.5 to 40 $\mu\text{L}/\text{min}$ (velocities between 0.15 and 2.3 mm/s, $Re < 10^{-5}$). A differential pressure sensor (ASDX-RR-X-015PDAA Honeywell) was used to measure the pressure at the entrance, the exit being linked to a reservoir at atmospheric pressure.

Particle accumulation in the device and clogging were observed with an inverted fluorescent microscope (Olympus CKX53) with a 0.625X objective. Images were recorded by a sensitive CMOS camera (Hamamatsu OrcaFlash 4.0) at frame rates between 0.1 and 1

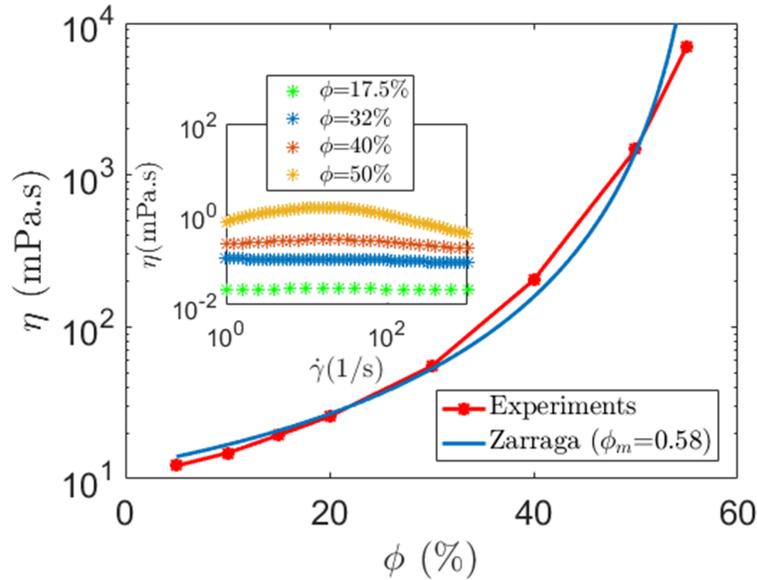


FIGURE 3.2 – Suspension viscosity at different particle volume fractions at 25°C and a shear rate of 30 s⁻¹, and comparison with Zaragga’s relation (equation 3.1). In the inset, suspension viscosity as a function of shear rate for different volume fractions indicated in the legend.

images per second, depending on the flow rate.

Typical images are displayed in fig. 3.3. In between the pillars of the micromodel, we observed two apparent phases, with rather well defined interfaces. Since the fluorescent dye was dissolved in the liquid phase, the dark apparent phase corresponded to a high volume fraction. The bright one had a similar intensity as in the inlet of the device, so that its volume fraction was closed the injected one. Note that some modulations of the fluorescence intensity could be guessed, but we did not analyze them in this work and rather focused characterizing the dense regions of the flow. Observations at high magnification revealed that in these dense region, particles were immobile. These cluster of arrested particles should thus had a volume fraction which is closed the maximal volume fraction at which the suspension viscosity diverges.

In order to discriminate the dense clusters of particles from the flowing suspension, a thresholding procedure was applied. First, illumination heterogeneity was corrected by divided the image by a light background. Then, clusters were isolated by a manual thresholding which ensure a precise localization of the interface between the clusters and the flowing suspension. Eventually, the pillars were removed from the binary image, taking advantage of an image obtained prior to the experiment, during the filling step by the suspending liquid. It was then straightforward to determine the total fraction of the image occupied by the clusters of arrested particles. In the following, this fraction will be referred to as the accumulation a . Considering the binarized image at time t as a matrix $I_{i,j,t}$ equal

to 1 if there is a cluster at pixel (i, j) , and 0 if not, the accumulation is simply given by :

$$a(t) = \langle I_{i,j,t} \rangle_{i,j} \quad (3.2)$$

Using standard segmentation algorithm (matlab) on the binary images, we identified each cluster of arrested particles and computed their area $A_{k,t}$. It was checked by eye that small clusters of only a few pixels did correspond to real clusters, and were not artefacts. Some statistical features of the clusters were then computed : the maximal cluster size $S_{c_{\max}}$, defined as the square root of the area of the biggest cluster ; the maximal transverse dimension of the cluster, obtained from the dimension of the bounding box in the transverse direction to the flow ; and the area weighted mean size of the cluster S_c , which we normalized by the mean neck size of the medium. It is given by :

$$S_c(t) = \frac{1}{W_p} \sqrt{\frac{\sum_k A_{k,t}^2}{\sum_k A_{k,t}}} \quad (3.3)$$

The growth and the erosion of the clusters are tracked by the subtraction of an image a time t to an image at time $t+dt$.

We observed that the clusters of arrested particles were not fixed in time changed in size and in shape. In order to characterize this dynamics, we systematically computed the differences between successive images. This allowed us to characterize cluster growth and erosion, as illustrated in Fig. 3.3. It was interesting to define a global quantity to quantify this dynamic, independently of the temporal variation of particle accumulation. Indeed, simultaneous erosion and growth of a given cluster would leave the accumulation unchanged. We defined the mobility m from the cumulative volume of arrested cluster growth and erosion between each time step Δt , normalized by the total volume of the porous medium. Since this cumulative volume include particles that have accumulated, we subtracted the value of the accumulation, so that the mobility only represent the fraction of medium corresponding to arrested particles that have been renewed. To sum up, the mobility was calculated according to :

$$m(t) = \sum_{p \leq t} \langle |I_{i,j,p} - I_{i,j,p-\Delta t}| \rangle_{i,j} - a(t) \quad (3.4)$$

Such a definition is a priori sensitive to noise and to uncertainty in the binarization process. It can be also sensitive to the time step used.

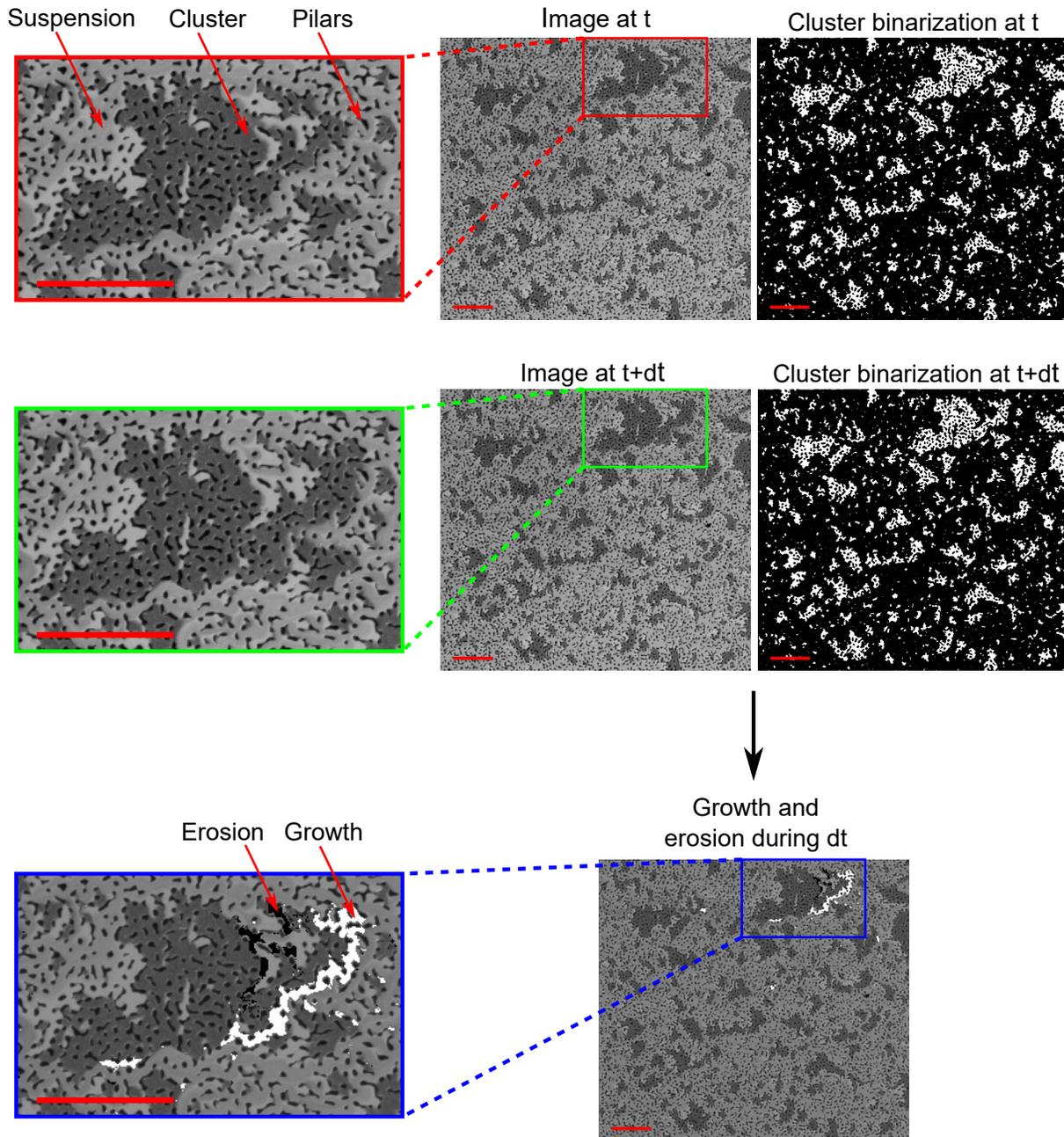


FIGURE 3.3 – Illustration of the image analysis procedure used to isolate the dense clusters of arrested particles from the flowing suspension, and the dynamics of cluster growth (white) and erosion (black). The red scale bars is 1 mm.

3.3 Results and discussion

3.3.1 Clogging phase diagram

Depending on the experimental parameters (particle size, concentration and flow rate), two different scenarios are observed. As shown in Fig. 3.4 (top left), for some conditions,

after a filling step, a pseudo steady state is reached and the pressure drop remains steady, while for others, the pressure drop increases sharply and then particles accumulate at the inlet of the device. These two flow regimes are designed in the following as "clogging" and "non-clogging" conditions. Direct observation (see images displayed in figure 3.3) reveals that the pore space is locally filled either by the flowing suspension which volume fraction remains close to the injected one either by a dense and arrested suspension. This allows us to define arrested clusters, which correspond to regions of the porous media where particles are densely packed. After thresholding of the images (see materials and methods section), we obtain maps of these clusters. Some examples of these maps are displayed in Fig. 3.4 (bottom). Clearly, for clogging conditions, the pore space occupied by arrested clusters is much larger than for non-clogging ones. In fact, clogging always occurs due to the percolation of these clusters. This scenario is evidenced in Fig. 3.4 (top middle), where the dimension of the biggest cluster is plotted with respect to the injected pore volume. For clogging conditions, it reaches that of the micromodel width just before the pressure drop suddenly increases.

It is tentative to conclude that the type of clogging investigated in this work corresponds to *inner clogging* [145] (and not to *superficial clogging*), since arrested clusters were randomly observed in the whole porous medium. This is further checked in Fig. 3.4 which displays the center of mass of the clusters of all the experiments performed in this study. At short times, clusters appeared and grew at random locations in the device, but after a few tens of injected pore volumes (PV), the center of mass corresponded to the middle of the porous medium, in both clogging and non-clogging conditions.

Several particle sizes were tested, at various flow rates and volume fractions. The phase diagrams summarizing the observations concerning clogging and non-clogging are displayed in Fig. 3.5. Suspensions of 15- μm particles exhibited the most interesting situations, as clogging occurred at all flow rates for volume fraction of 20% and above and did not occur for volume fraction of 15% and below. At $\phi = 17.5\%$, a transition from non-clogging to clogging was observed when increasing the flow rate at about $20\mu\text{L}/\text{min}$. In contrast, smaller particles (6 and 10 μm) never lead to clogging, even at $\phi = 30\%$. Bigger particles (20 μm) always lead to clogging, even at low volume fraction (down to 3%). Therefore, the main parameter which controlled the clogging was the neck-to-particle size ratio. This point will be discussed in the dedicated "discussion" section. In the following, we restrict ourselves to results concerning the 15- μm , for which both clogging and non-clogging are observed.

3.3.2 Particle accumulation

Fig. 3.6 displays the particle accumulation for various conditions, i.e. the fraction of the porous volume occupied by arrested clusters. For non clogging conditions, it rapidly

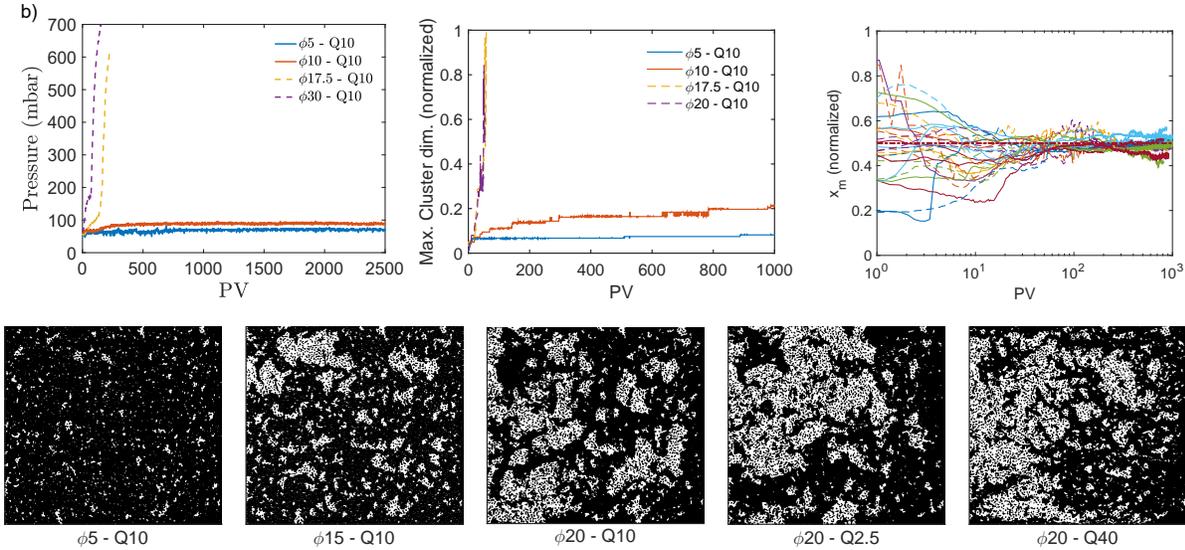


FIGURE 3.4 – *Top left* : Pressure drop as function of injected pore volume (here and in the following, the injected pore volume is a reduced time, defined by $P_v = Qt/V$, where Q is the flow rate and V the total void volume of the porous domain). A few examples are shown for non-clogging (solid lines) and clogging (dashed lines) conditions. These data were obtained using the $15\mu\text{m}$ particles, at volume fraction and flow rate that are indicated in the legend ($\phi X - QY$ stands for a volume fraction of $X\%$ and a flow rate of $Y\mu\text{L}/\text{min}$, etc...). *Top middle* : size of the biggest arrested cluster identified, in the transverse direction to the main flow. It is normalized by the width of the porous medium. *Top right* : position along the flow direction of the center of mass of the arrested clusters, x_m . It is normalized by the length of the porous medium. Dashed lines correspond to clogging conditions, solid line to non-clogging ones. Data from 28 different experimental conditions are shown. *Bottom* Examples of binary images of the arrested clusters (in white) at the end of the experiment. The two first images correspond to non-clogging conditions ($\phi = 5$ and 15% at $10\mu\text{L}/\text{min}$). The three others to clogging ones ($\phi = 20\%$ at flow rates of 10 , 2.5 and $40\mu\text{L}/\text{min}$).

increased with time before reaching a regime where it only very slowly increased. Given the huge time scales involve (hundreds of PV, typically a few tens of hours), we shall consider that this second regime is a pseudo steady state. The volume fraction had a strong influence on the accumulation value in this pseudo steady state : it was only a few percent at 5% but reached values of about 20% at $\phi = 17.5\%$, i.e. very close to clogging conditions. For clogging conditions, the accumulation increases rapidly until it reaches a value between 20 and 35% for which the clusters percolated across the medium. Prior to the percolation, the accumulation usually exhibited important fluctuations.

We tried to analyze the clogging time with respect to the experimental control parameters, but did not succeed in finding clear trends. We believe that repeating several times each condition would be necessary. Clogging always occurred due to the percolation of the arrested clusters, as illustrated in Fig. 3.4. Because of the finite size of the medium,

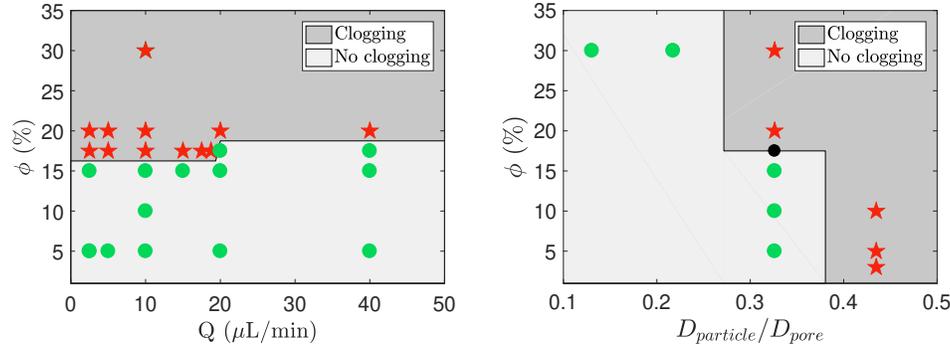


FIGURE 3.5 – Phase diagrams of clogging/non-clogging conditions. Left : suspensions of 15 μm particles. Right : phase diagram highlighting the influence of the particle size which was varied from 6 to 20 μm . In the figure, the particle size is normalized by the pore size (46 μm). For the 6 and 10 μm particles, volume fraction was kept constant at 30% and the flow rate was varied from 5 to 40 $\mu\text{L}/\text{min}$. For the 20 μm particles, the flow rate was kept constant and equal to 10 $\mu\text{L}/\text{min}$.

the percolation time is expected to significantly depend from one realization to another in case of a random growth of the clusters.

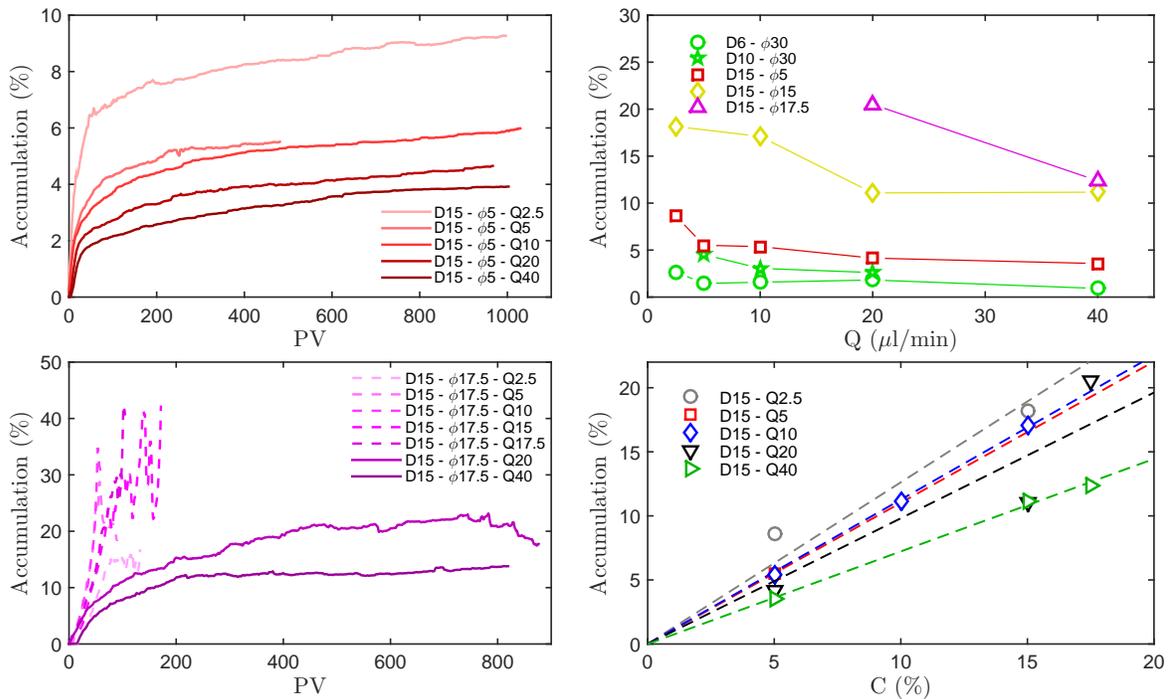


FIGURE 3.6 – *Left* : Evolution of the accumulation with the injected volume of the suspension expressed in pore volume (PV). Solid line : without clogging. Dashed line : with clogging. *Right* : Accumulation after the injection of 600 PV for non-clogging conditions. *Bottom right* : dashed lines are the best linear fits to the data.

Focusing on non-clogging conditions, the influences the particle volume fraction and of the flow rate are synthesised in Fig 3.6c. Remarkably, the accumulation was found to increase linearly with respect to the particle volume fraction. In contrast, the the flow rate had a much weaker impact. We systematically observed that the lower the flow rate, the higher the accumulation, similarly to many work [108]. However, when the flow rate was reduced by a factor of 16, the accumulation is only multiplied by about 2.

3.3.3 Cluster size

The arrested clusters were systematically analyzed suing standard image analysis techniques. Figure 3.7 summarizes the results concerning the mean size of the clusters. Note that this mean size was computed weighed by the cluster area.

Similarly to the accumulation growth, cluster size growth strongly depends on whether the conditions investigated lead to clogging or not.

For non clogging ones, the mean cluster size rapidly increased and reached a pseudo steady state where it remained roughly constant over hundreds of injected pore volumes. At low volume fractions (5%), clusters were small, typically 2 times the size of the mean throat size of the medium, W_p . At higher volume fractions and especially when approaching clogging conditions, the cluster size is much bigger, reaching about 20 times the pore size. The dependency of the cluster size upon the flow rate and the particle volume fraction are summarized in Fig. 3.7 (right). Similarly as for the accumulation, we noticed that the cluster size depends strongly on the volume fraction, and more weakly on the flow rate. As compared to the accumulation, results were however less clear. With respect to ϕ , the cluster size seemed to increase faster than linearly, but the data were too scattered to propose an objective scaling law. Concerning the influence of the flow rate, we noticed that increasing the flow rate led to a significant decreased of the cluster size, but only for conditions where the clusters are greater than 5 pore sizes. When they were smaller, cluster sizes became in a first approximation independent on the flow rate.

For non clogging conditions, it is worth computing the size distribution during the pseudo steady state. As shown in Fig. 3.8 (left), the cumulative distribution functions are well fitted using a log-normal distribution function, f , given by :

$$f = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left(\frac{\ln(x) - \mu}{\sigma\sqrt{2}} \right). \quad (3.5)$$

For clogging conditions, cluster sizes exhibit important fluctuations prior to percolate and clog the medium. It was not possible to obtain a well defined cumulative distribution functions since it significantly changed in time. An example i given in Figure 3.8 (middle). One can clearly see that though the mean and max cluster size increased with time. Correlatively, the shape of the cumulative distribution functions evolved from that of a

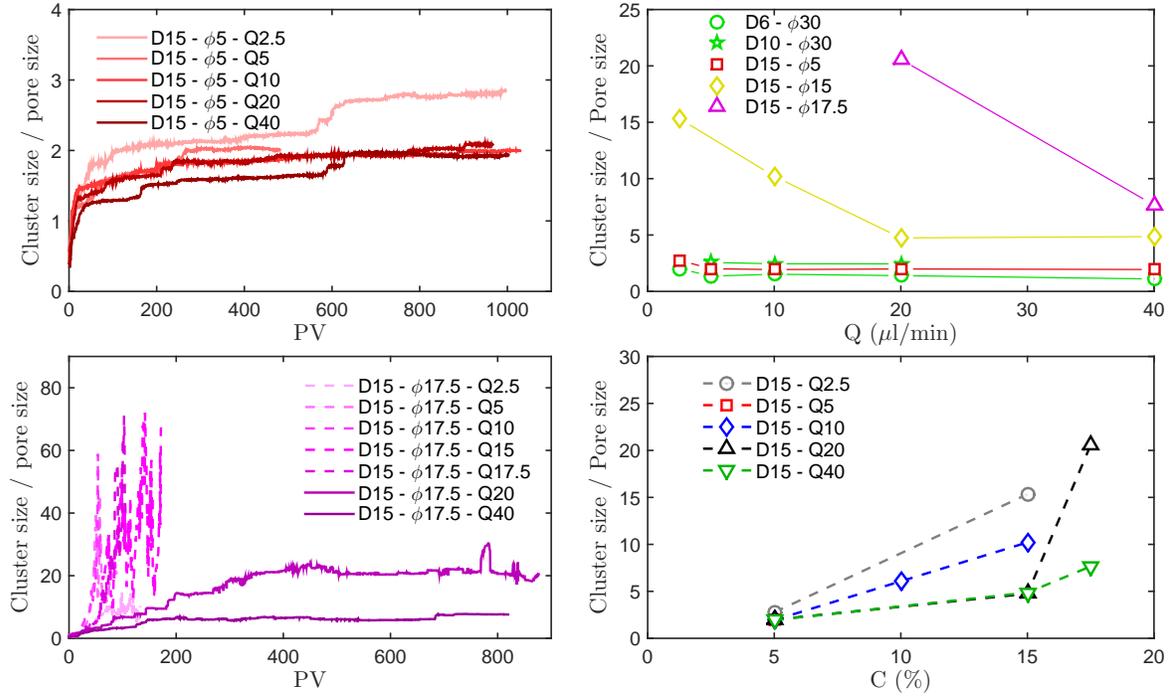


FIGURE 3.7 – *Left* : Evolution of the cluster size with the injected volume of the suspension expressed in pore volume (PV). Solid line : without clogging. Dashed line : with clogging. *Right* : Cluster size after the injection of 600 PV for non-clogging conditions.

log-normal one at early times, to a very different one when approaching the clogging. It very sharply increased towards unity for a given cluster size which is close to the size of the porous domain. This is characteristic of a percolation phenomenon.

In Fig. 3.8 (Right), we tried to correlate the accumulation and the cluster size. For non clogging conditions, in steady state, the data collapsed remarkably on a single curve, which is rather well accounted by an exponential function, $S_c \sim \exp(a)$, where a is the accumulation. Since for clogging conditions, both accumulation and cluster sizes strongly fluctuated and increased in time, we plotted all the instantaneous data on the same plot. A good collapse was obtained, even with the data obtained in non-clogging conditions. This strongly suggests that, independently on the experimental parameters, the global accumulation level sets the arrested cluster morphology. As shown in Fig. 3.8 (right), the cluster size no longer follows the exponential growth when the accumulation is higher than 0.15. This was not surprising as increasing the accumulation, one would have expected a divergence of the cluster size, as in percolation theory. In 2D, the critical accumulation in standard percolation theory is $a_c = 0.5$. We thus plotted the data as a function of $|a - a_c|$. When $a > 0.15$, the mean cluster size growth when increasing the accumulation is in relative good agreement with the prediction of the percolation theory, i.e. $S_c \sim |a - a_c|^{-\beta}$, with $\beta = 2.39$. The maximal cluster size also follows the predicted law $S_c \sim |a - a_c|^{-1/\sigma}$,

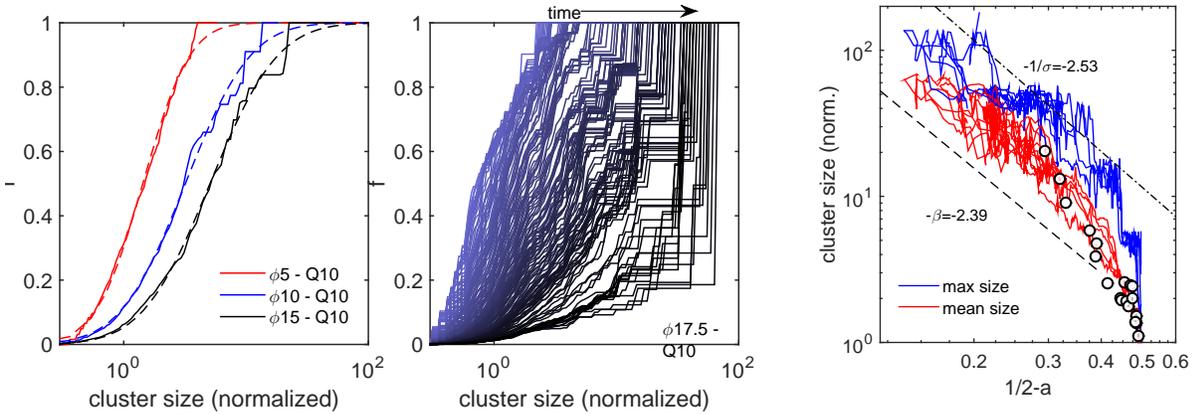


FIGURE 3.8 – Cumulative distribution functions f of the cluster size (area weighted). Cluster size is the square-root of the cluster area and is normalized by the mean pore size W_d . *Left* : non-clogging conditions (15 μ m-particles, $Q = 10\mu$ L/min, $\phi = 5, 10, 15\%$), during steady state at PV=600. Dashed-line are the best log-normal fit to the data. *Middle* : Clogging conditions (15 μ m-particles, $Q = 10\mu$ L/min, $\phi = 17.5\%$). Line colors stand for the injected pore volume, from 0 (brightest) to 58.6 (darkest) at which clogging occurred. *Right* : For clogging conditions (solid lines) and for non-clogging conditions (circles, one value per experiment during the pseudo steady state), cluster size versus $|a - a_c|$, where a is the accumulation and a_c its critical value ($1/2$ is 2D). Dashed lines are guides for the eyes showing predicted power laws from percolation theory (2D). Data from all conditions (various flow rates and volume fractions) are gathered.

with $\sigma = 36/91$. Given the scatter in the data and the small extent of the accumulation range, the precision concerning the exponent is limited, and it is only possible to claim that cluster sizes are in agreement with predictions from the percolation theory. A much larger micromodel would be necessary to investigate larger values of the accumulation, so that the relevance of the percolation theory could be checked in more details.

3.3.4 Cluster dynamics

Direct observations showed that the arrested clusters of particles were dynamical. Clusters not only grew in time but exhibited erosion, displacements, coalescence and rupture. This dynamics was very clear for clogging conditions, but also existed for non-clogging ones, especially at high volume fractions. In Fig. 3.9, we averaged over time the accumulation maps displayed in Fig. 3.4, once the first regime of rapid growth of the accumulation was finished. Some locations of the porous media were always clogged, but, except for $\phi = 5\%$, a much greater fraction exhibited an intermittent presence of an arrested cluster. Careful examination of these cluster presence probability maps revealed that those area of intermittent dynamics are usually located upstream permanently clogged area.

We tried many analysis to characterize this cluster dynamics, like Fourier transforms,

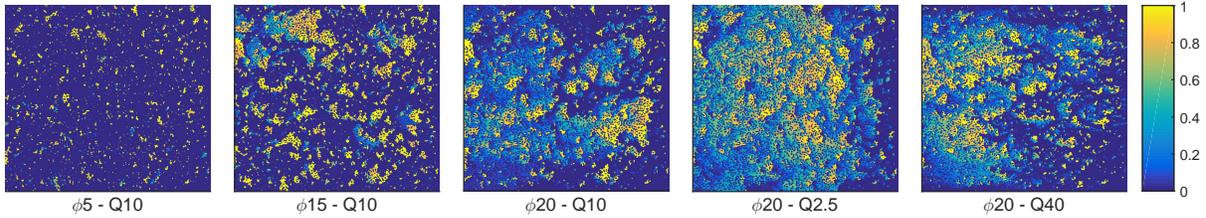


FIGURE 3.9 – Local cluster probability. During pseudo steady state, the local presence of a cluster is averaged over time. Same conditions as in Figure 3.4 bottom.

time and space correlations, but realized that the dynamics is very complex, with a combination of huge events, intermittency, and small fluctuations. In Fig. 3.10, an illustration of this complex dynamics is presented. We picked up a few locations of the porous medium where a permanent clogging was observed and determine the instantaneous size of the cluster to which it belonged. Individual cluster size varies in time, but without a clear trend. Indeed, one can observe in the time series plotted in Fig. 3.10. Some clusters remained roughly constant in size, others exhibited size fluctuations or intermittency. In addition, some huge events where the size suddenly changed significantly could be observed. Given the limited time and space scale of the experiments, we did not push the analysis further and restricted ourselves to quantify globally the cluster dynamics, and compare experimental conditions.

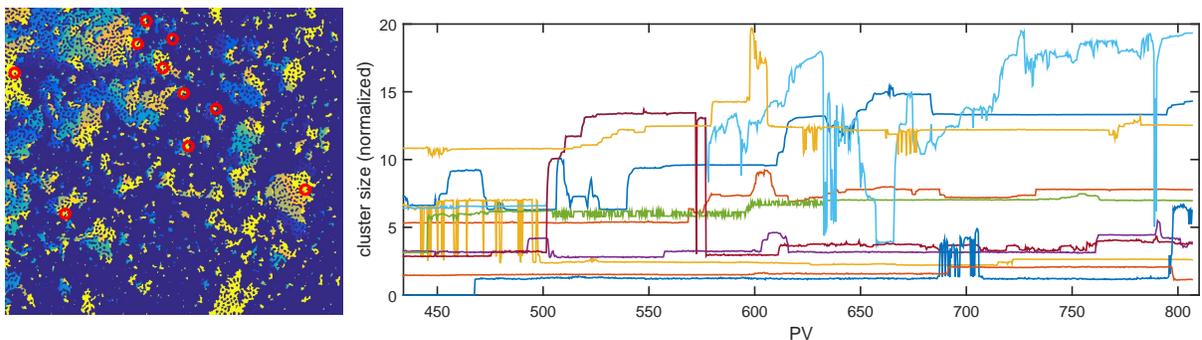


FIGURE 3.10 – For some locations highlighted by red circles on the arrested clusters probability map (left), the size of the local cluster is plotted as a function of the injected pore volume (PV). Experimental parameters : 15- μm particles, 2.5 $\mu\text{L}/\text{min}$, $\phi = 15\%$. Cluster sizes are defined the square-root of the cluster area, and are normalized by the mean pore throat width W_p . The corresponding movie is available as supplemental material

In order to achieve this comparison, we defined and calculated using image analysis the mobility m of the clusters. Briefly (please refer to the section devoted to methods for additional details), m is the cumulative amount of arrested locations that have been renewed. It is expressed as a fraction of the medium surface. In case a cluster would grow and remain fixed, m would be zero. Results are summarized in Fig. 3.11. For all

experimental conditions, we found that m was non-zero, and increased linearly with time, once the initial regime was finished. The slope of this linear growth, which is the mobility rate, was thus systematically determined, and the corresponding values are reported in Fig.3.11 as a function of the particle volume fraction. The physical meaning of the mobility rate is rather simple : it correspond to the fraction of the medium where arrested particles are renewed during the injection of one pore volume. A huge difference can be observed between clogging and non-clogging conditions. The mobility rate is typically between 2 and 10%/PV in clogging conditions, and of the order of 0.1%/PV or less in non-clogging ones. Though generally small in non-clogging conditions, it remained significant, and tended to increase when approaching clogging conditions : it increased when decreasing the flow rate and when increasing the particle volume fraction.

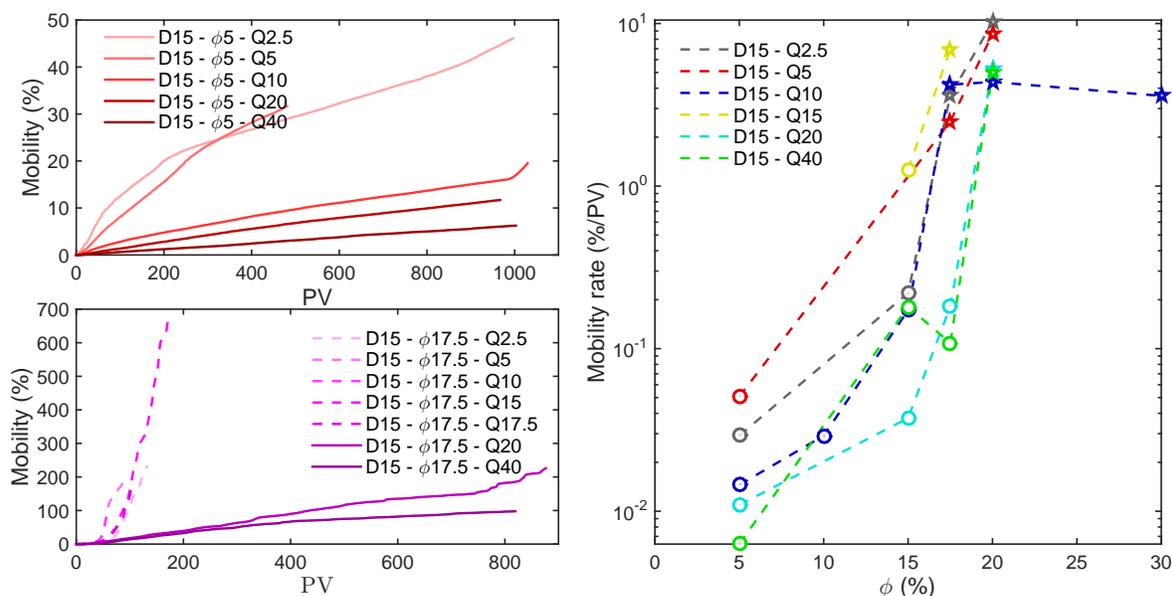


FIGURE 3.11 – Cluster mobility as a function of time (see section 3.2.3 for detailed definition). *Left* : Mobility is displayed as a function of the injected pore volume for both non-clogging (solid lines) and clogging (dashed lines) conditions. *Right* : Mobility rate (i.e. the slope of the linear increment of the mobility with respect to PV) is plotted as a function of particle volume fraction for various flow rates. Circles stand for non-clogging conditions, stars for clogging ones.

3.3.5 Discussion

3.3.5.1 Clogging mechanism and percolation

Clogging of a porous medium by a suspension as been categorized in the literature [85] depending on the mechanism leading to clogging. Filtration, bridging and aggregation are the three main ones. The results of the present study are clearly consistent with bridging

mechanism. Indeed, filtration involved particles that are larger than the constriction size, which was not the case here. Aggregation and wall induced mechanisms could also be ruled out by a few different arguments. i) Particles were index-matched with the suspending liquid, so that Van Der Waals interactions should be small. ii) We never observed article aggregates nor particle attached to the wall. iii) Clogging never occurred when the particle size is smaller than about 30% of the constriction size. A transition towards clogging was observed for this ratio, which correspond exactly to the ratio that was reported for bridging mechanisms at the pore scale in both suspensions and granular systems [146, 136]. iv) Typical injected volume is very large, and clogging only occurred after the injection of several tens or even hundreds of pore volume. All these arguments are thus consistent with clogging involving bridging mechanisms.

The fact that particles accumulated randomly in the porous medium is striking. The center of mass of the arrested clusters is perfectly in the middle of the porous medium, whereas in most studies devoted to clogging of porous medium, the entrance region plays the most important role.

Correlatively, we found by analyzing the cluster size, that the latter is a unique function of the accumulation, whatever the experimental conditions, and that it is rather well described using random percolation theory. Percolation theory had already been evoked to describe clogging in porous media [147], but it was argued that directed percolation should be more adequate than random one due to the fact that particle transport is not isotropic, but follow the mean direction of the flow. Directed percolation lead to a much larger critical value for the accumulation, to smaller critical exponents and to anisotropic patterns. In this study, isotropic clusters were observed and random percolation better described the cluster size dependency with the accumulation. We believe that this is directly linked to the fact that clogging and cluster growth is very slow as compared to the flow of the particles. Particles accumulated over decades of injected pore volumes, meaning that only a very small fraction (typically less than 1/1000) of the particles were trapped. At the scale of the micromodel used, particle trapping events in clusters or involved in bridges between the solid wall are thus likely to occur in any location of the porous medium.

3.3.5.2 Role of flow rate

The fact that the accumulation increased significantly with particle volume fraction and only weakly depended on the flow rate is consistent with the fact that interactions between particles and with the solid walls were negligible. In fact, for inertialess and non-interacting particles, viscous and contact forces are the only forces to consider. Since contact interactions (including Coulombian friction) does not involve physical quantities when particle rigidity is high enough, we did not expect any role of the flow rate. This is similar to the rheology of suspensions, when, in absence of colloidal interactions, a

Newtonian behavior is expected, the volume fraction being the single parameter of the problem [28]. The observations that the clogging diagram did primarily depend on the volume fraction, similarly to the weak effect of the flow rate on particle accumulation, pore size or mobility is therefore not surprising and consistent with the fact that for this study, colloidal forces between particles and between particles and solid walls were negligible. The reason why we did however observe a weak but non-negligible influence of the flow rate remained rather unclear. It was difficult to rule out some possible effects of colloidal forces, but other small effects of the flow rate could be argued. Since the device was made in PDMS, which is a soft material, its precise geometric features can slightly vary when increasing the pressure. However, we paid a great attention to this point and only worked at pressure drop that were low enough to neglect the device deformability. Another possibility which might explain the influence of the flow rate might also come from the non-Coulombian nature of the frictional contacts of the suspension. This has recently been evidenced in the context of suspension rheology [148], and successfully accounts for shear-thinning of suspensions at high volume fraction. Although we have verified that the suspension used in this study had a steady viscosity, we did not measure its viscosity at very high volume fraction, where these effects are likely to be dominant. We believe that a small decrease of the friction coefficient with respect to the applied load would explain why the flow rate had a small influence on the results presented in this article. Additional work and characterization of the particles would be needed to confirm this hypothesis.

3.3.5.3 Role of volume fraction and cluster dynamics

We observed a unique relation between the pore size and the accumulation. Since clogging is nothing else than percolations of the arrested clusters, the remaining question is to understand which physical phenomenon is responsible for particle accumulation. The latter saturated at low volume fraction (below 17.5% for the 15 micrometers particles studied, but the precise value might depend on the particle to constriction ratio) for non-clogging conditions. The transition to clogging conditions was rather sharp : a slight increase of the volume fraction (or small decrease of the flow rate) completely changed the observed phenomenology. The onset of particle accumulation was likely to be the bridging of some constrictions. Despite the probability of forming a bridge should increase strongly when increasing the volume fraction, we do not think that interpretation of the present results is connected to this probability since experiments are conducted during hundreds of PV, and since by varying the volume fraction, the main difference observed is not the rate of cluster growth but their steady state value, or the absence of steady state when ϕ is high enough to induce clogging. In other words, if accumulation and clogging were only a matter of probability, the general behavior would be the same for all volume fractions with variation of the accumulation rate. In contrast, we did observe very different behaviors and a pseudo steady state (in non clogging conditions).

One of the most striking features of our observations lie in the complex dynamic observed before clogging. Cluster growth was clearly in competition with cluster erosion and destabilization. As a consequence, a significant portion of the arrested particles were continuously renewed. It is likely that some flow fluctuations were responsible for erosion and cluster destabilization, and probably independent (or only slight dependent) on particle volume fraction.

A linear relation between particle accumulation and injected volume fraction was also found in DEM simulations of granular systems [110]. It also depends on the friction coefficient between particles.

We believe that some portion of the arrested clusters of particles were not very stable. Indeed, contrary to the nucleation of a cluster by bridging of a small constriction, cluster growth happened on neighboring pores, which are not likely to be bridging locations. Cluster should thus be stabilized by friction between particles, and by viscous drag associated to flow through the arrested cluster. Note that the latter could also be a source of cluster destabilization, if the flow is not directed towards a stable bridge. In contrast to cluster destabilization, cluster growth rate should directly be related to particle volume fraction, and likely proportional to particle volume fraction. As a consequence, the balance between cluster growth and erosion/destabilisation lead to a clear ϕ -dependence, which is furthermore linear as found experimentally.

3.4 Conclusion

We reported in this article a set of experimental results concerning the formation of arrested clusters of particles in a porous medium, for the case where colloidal interactions between the particles and with the solid surfaces of the medium are negligible. A striking feature in this case is that particle accumulation and clogging are very slow processes. Tens of pore volume could be injected before particle significantly accumulate. We find that two main parameters control the formation of these clusters and consequently the clogging of the medium after their percolation. The first one is the particle-to-neck size ratio. In agreement with the literature, if it is below 0.3, particle accumulation remained small. If it is slightly higher, particles accumulate in arrested clusters which eventually percolate and clog the medium. We focused in the transition and observed that for the intermediate case, the volume fraction was the main parameter controlling particle accumulation and clogging. As expected from the absence of other forces than viscous and contact ones, we found that flow rate had a small influence. Particle accumulation was linear with respect to the injected volume fraction, and appeared randomly inside the medium. Importantly, we found that these particles form clusters of size that only depends on the amount of arrested particles, and showed good agreement with the standard random percolation theory in 2D. We evidenced a pseudo steady state regime, for particle volume fraction

that are below 17.5%. The existence of such a steady state prevents cluster percolation and clogging. We discussed these phenomena by taking into account the rich and complex cluster dynamics which we observed, and propose that a balance between cluster growth and erosion or destabilisation is responsible for the pseudo steady state at low volume fraction and for delaying the clogging at higher ones.

These results opens many questions that would require additional experimental and theoretical investigations. The role of the flow rate remained mostly unexplained, and the few hypothesis we proposed should be interesting to test. The role of cluster dynamics on particle accumulation also requires to be better understand. We hypothesise that it could be crucial to account for the observed regimes, but it remained to be tested. We believe that studies in simpler geometries and numerical simulations (e.g. DEM-CFD) should help to achieve a better understanding of the observations reported in this paper.

Chapitre 4

Écoulement sous signaux périodiques de pression

Sommaire

4.1	Écoulement à pression imposée	122
4.1.1	Comparaison entre écoulement à débit imposé et écoulement à pression imposée	123
4.1.2	Diagramme de phase	123
4.1.2.1	Effet de la concentration	124
4.1.2.2	Effet de la pression	126
4.1.3	Signaux périodiques de pression d'injection : phénoménologie .	129
4.1.4	Effet de la fréquence	131
4.1.4.1	Accumulation	131
4.1.4.2	Taille des clusters	135
4.1.5	Rôle de la déformabilité du milieu	139
4.1.6	Effet de l'amplitude	140
4.1.6.1	Accumulation	140
4.1.6.2	Taille des clusters	141
4.2	Conclusion et discussion	143

Nous avons vu dans le chapitre précédent le rôle important des constructions et des destructions des ponts dans le processus de colmatage et que les perturbations de l'écoulement pouvaient influencer significativement le mécanisme de destruction de ces ponts. Ainsi, nous pouvons penser que des conditions d'injection non stationnaires peuvent avoir une influence sur le colmatage. Le but que nous voulons atteindre à la fin de ce chapitre est d'évaluer l'effet de la non stationnarité de l'écoulement sur les différents régimes de colmatage soulevés précédemment.

Pour ce faire, nous avons décidé de contrôler cette fois les expériences en pression et non plus en débit. En effet, le temps de réponse du système expérimental est bien plus faible pour un contrôle en pression qu'en débit. Ainsi, puisque nous changeons le type de contrôle de l'écoulement, la première section sera consacrée à une caractérisation des expériences à pression constante imposée, et la comparaison avec les expériences à débit imposé. Ensuite, nous nous attarderons sur l'effet de la fréquence de ces signaux sur la dynamique de colmatage, puis sur l'effet de l'amplitude.

4.1 Écoulement à pression imposée

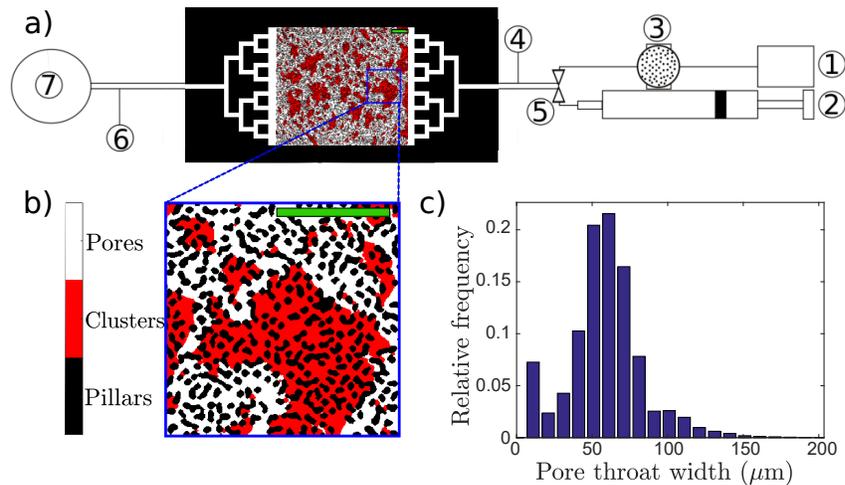


FIGURE 4.1 – Procédure expérimentale. a) Un réservoir (3) (rempli de la suspension et contrôlé en pression via le contrôleur de pression (1)) et une seringue remplie du fluide suspendant (2) sont reliés au milieu poreux par une vanne (5). Un capteur de pression (4) permet de mesurer la pression à l'entrée. La sortie est reliée à un débitmètre (6) puis à un réservoir (7) ouvert (pression ambiante). b) Zoom sur le milieu poreux aléatoire. c) Distribution de la largeur des pores. Les barres d'échelle vertes représentent 1 mm.

Sur la figure 4.1-a nous rappelons le schéma expérimental du système utilisé pour cette partie. À l'entrée de notre système nous contrôlons la pression moyennant un contrôleur de pression et à la sortie nous mesurons le débit.

4.1.1 Comparaison entre écoulement à débit imposé et écoulement à pression imposée

4.1.2 Diagramme de phase

Pour commencer, nous avons essayé de produire un nouveau diagramme de phase (figure 4.2b) pour vérifier s'il ressemble à celui de la partie faite avec injection à débit imposé (figure 4.2a). Il est important de noter que les pressions utilisées permettent d'être dans la même gamme de débits que ceux imposés dans la section précédente. Les résultats sont tracés après l'injection au moins de 100 PV. Nous nous sommes rendus compte qu'il y

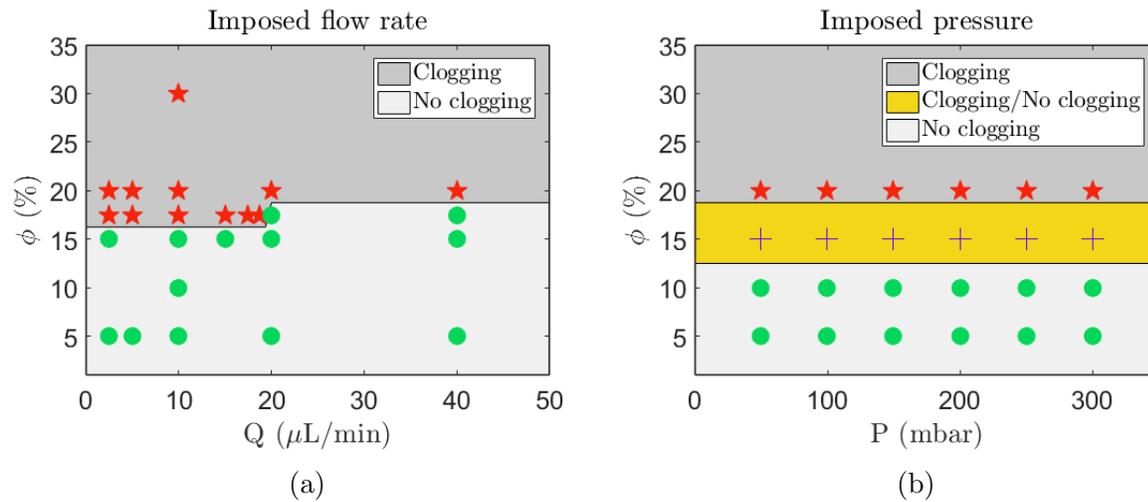


FIGURE 4.2 – a) Diagramme de phase de colmatage dans les conditions à débit imposé. b) Diagramme de phase de colmatage dans les conditions à pression imposée.

avait une petite différence au niveau des limites de la phase de transition entre bouchage et non bouchage suivant les conditions de contrôle de l'écoulement. En effet, elle se situe entre $\phi = 17.5\%$ et $\phi = 20\%$ lorsque le débit est imposé, et à partir de $\phi = 15\%$ lorsque la pression est imposée. De plus, lorsque nous reproduisons une même expérience à pression imposée et pour $\phi = 15\%$, nous pouvons obtenir un milieu parfois colmaté et d'autres fois non colmaté (voir étude statistique de reproductibilité section 2.4.4). Cette zone transitoire est représentée en jaune sur le diagramme de phase 4.2b. Ce décalage de la limite de passage d'un régime à un autre, entre les expériences à débit imposé et à pression imposée peut s'expliquer par le fait, que même si la pression est constante le débit diminue légèrement lorsque les clusters s'accumulent dans le milieu, ce qui peut amener des conditions favorables au colmatage.

De la même manière que pour les expériences à débit imposé, nous avons ensuite cherché à caractériser l'influence de la concentration sur la dynamique de colmatage en étudiant l'évolution de l'accumulation au cours de l'expérience.

4.1.2.1 Effet de la concentration

Les graphiques des figures 4.3a,4.4a,4.5a et 4.6a représentent l'accumulation en fonction du nombre de volumes de pores pour différentes concentrations à pression constante. Et les figures 4.3b,4.4b,4.5b et 4.6b reportent les mesures de débit associées. Nous constatons clairement que plus la concentration est importante et plus l'accumulation est élevée. Par rapport aux expériences à débit imposé, nous nous apercevons qu'il n'y a pas la première phase d'accumulation rapide en début d'expérience, et que cette accumulation croît plus lentement. sans atteindre un plateau rapidement.

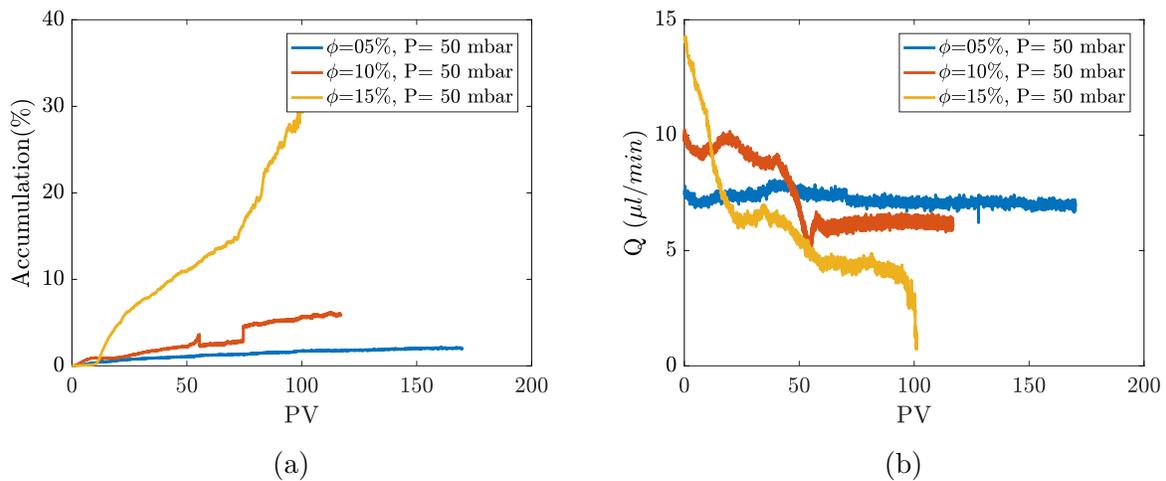


FIGURE 4.3 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 50mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).

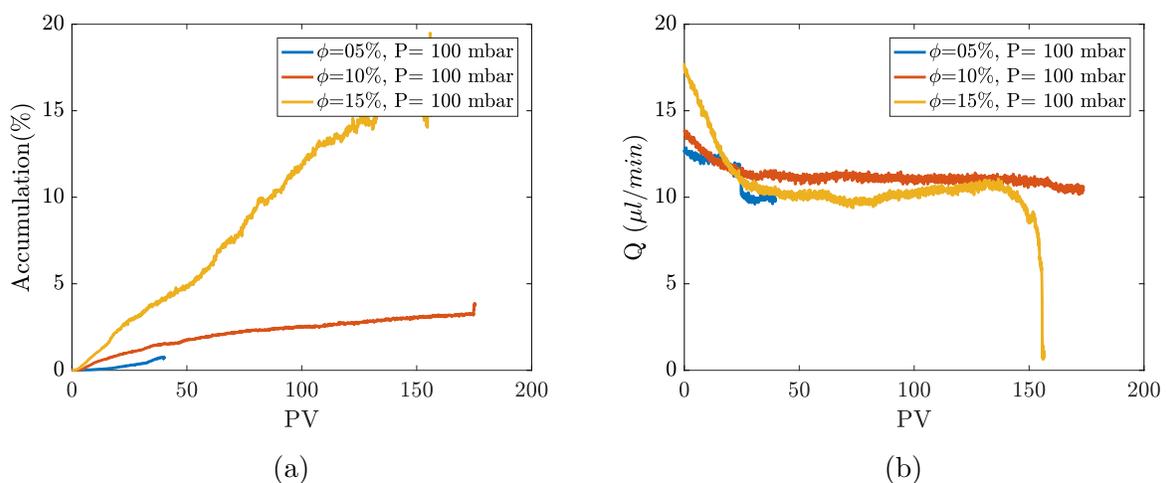


FIGURE 4.4 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 100mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).

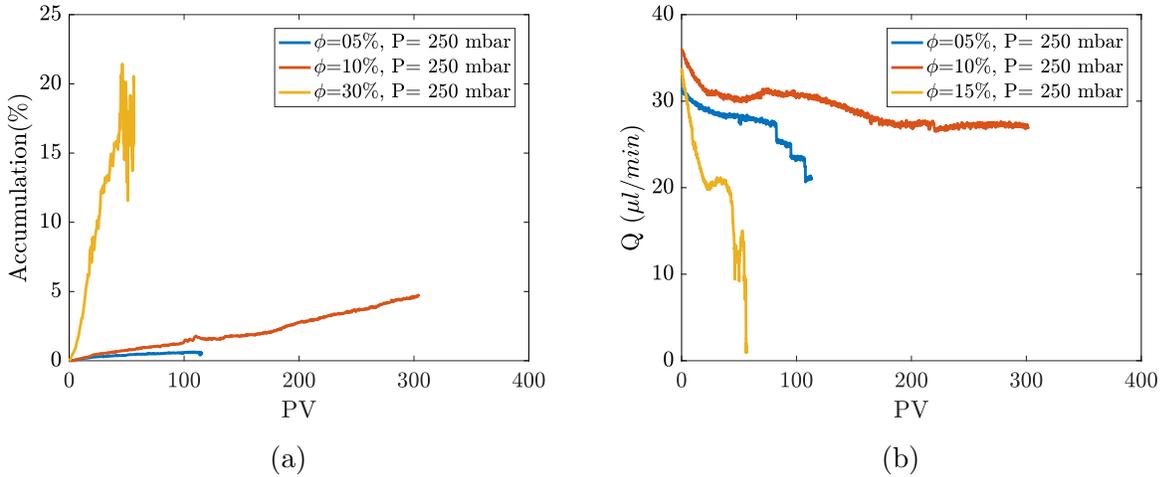


FIGURE 4.5 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 250mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).

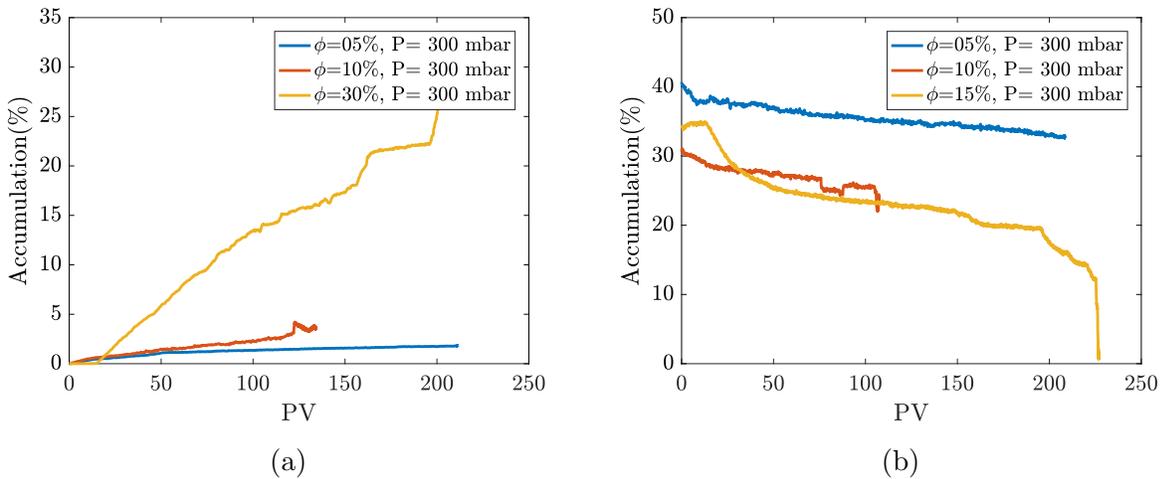


FIGURE 4.6 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 300mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).

Pour synthétiser, nous traçons les valeurs de l'accumulation à 100 VP en fonction de la concentration pour différentes pressions (figure 4.7). Dans le régime de non colmatage ($\phi = 5\%$ et $\phi = 10\%$) l'accumulation croit faiblement avec la concentration de particules. Par contre, à $\phi = 15\%$, là où nous commençons à avoir du colmatage (transition), les valeurs de l'accumulation augmente significativement. Ce résultat est similaire à ce que nous avons retrouvé lors de l'étude du colmatage dans le cas de l'injection à débit imposé (voir figure 3.7).

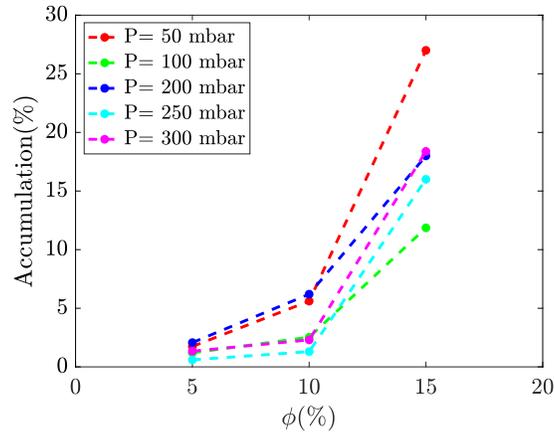


FIGURE 4.7 – Évolution de l'accumulation à 100 VP en fonction de la concentration pour différentes pressions d'injection

4.1.2.2 Effet de la pression

Nous voulons ensuite évaluer l'effet de la pression. Pour ce faire, nous avons fait varier la pression d'injection entre 50 mbar et 300 mbar. Les débits mesurés correspondant à cette gamme de pression varient entre $5 \mu\text{l}/\text{min}$ et $40 \mu\text{l}/\text{min}$.

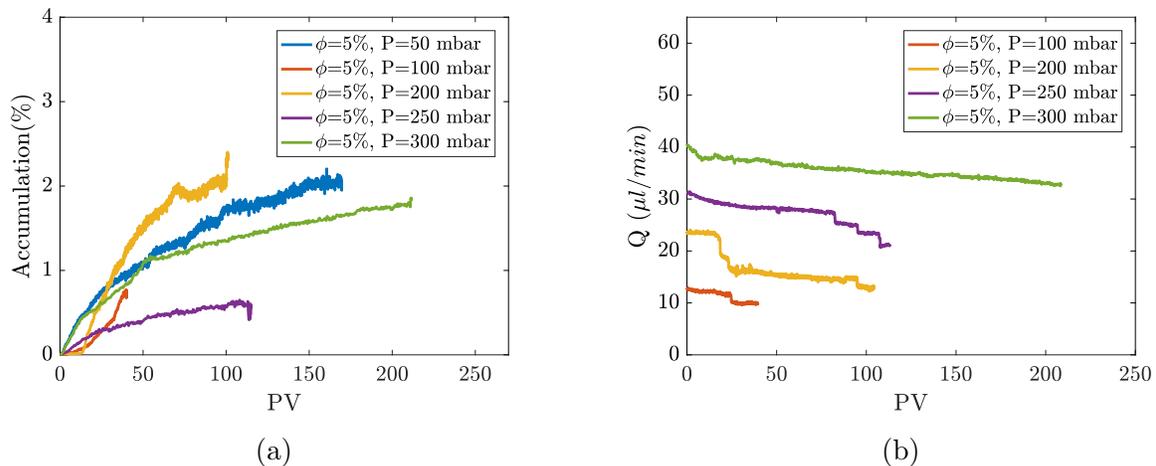


FIGURE 4.8 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP à $\phi = 5\%$. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a) en fonction de VP

Les figures 4.8a, 4.9a et 4.10a représentent l'évolution de l'accumulation en fonction du nombre de volumes de pores pour différentes pressions et des concentrations constantes. Les figures 4.8b, 4.9b et 4.10b sont les débits mesurés correspondant en fonction du nombre de volumes de pores. Contrairement aux expériences à débit imposés, nous constatons que les valeurs d'accumulation ne s'ordonnent pas régulièrement avec les valeurs de pression imposée. Les valeurs d'accumulation sont certainement trop proches et dans la plage de

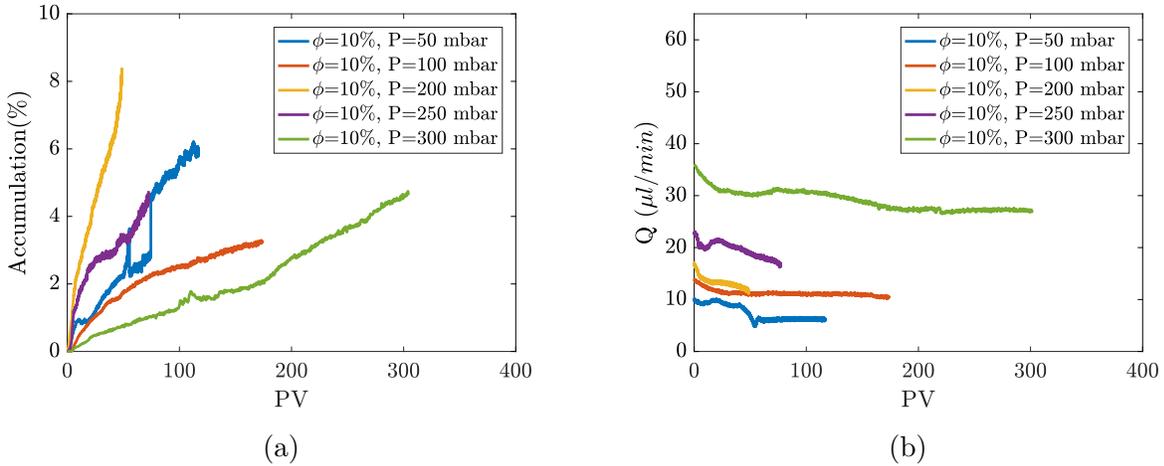


FIGURE 4.9 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP à $\phi = 10\%$. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a) en fonction de VP

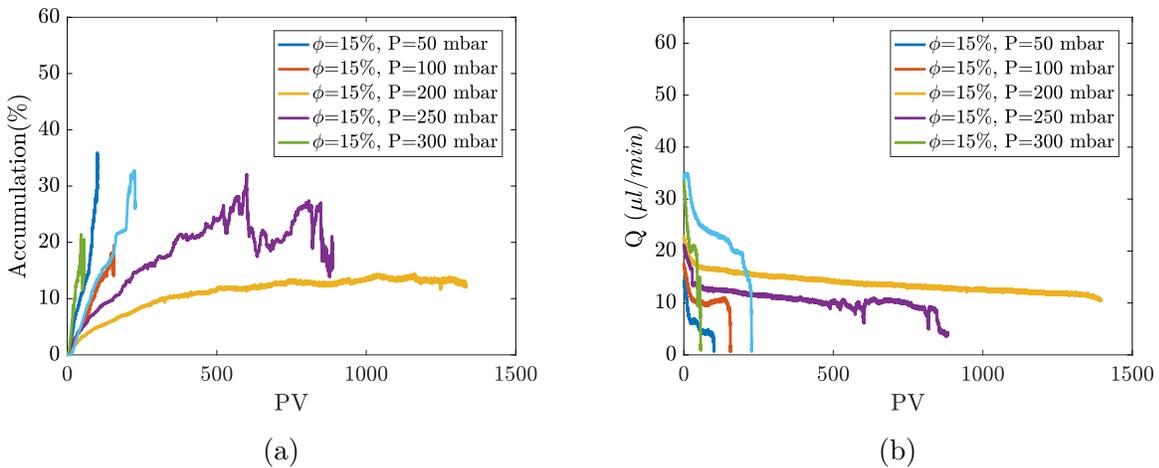


FIGURE 4.10 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP à $\phi = 15\%$. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a) en fonction de VP

variabilité de l'expérience pour être discriminées.

Pour mieux comparer les conditions de débit et de pression imposées, nous prenons l'exemple de la concentration $\phi = 5\%$ à débit imposé (figure 3.6-a) et à pression imposée (figure 4.8a). Nous retenons les valeurs d'accumulation correspondant à 100 VP et les retraçons sur la figure 4.11 en fonction du débit mesuré. Nous remarquons que l'effet du débit sur l'accumulation est effectivement faible dans les 2 cas. Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la faible influence du débit peut s'expliquer par l'absence d'interactions particule/particule ou particule/paroi.

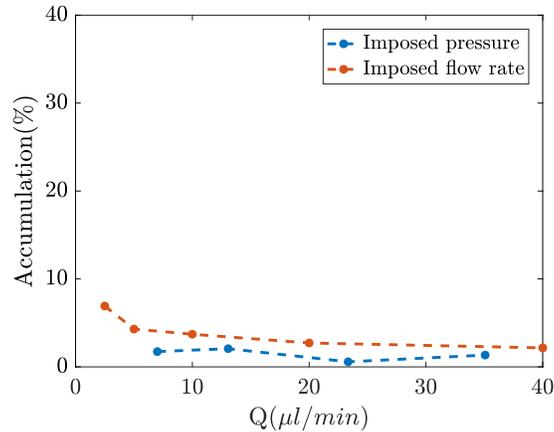


FIGURE 4.11 – Évolution de l'accumulation à 100 VP en fonction du débit à $\phi = 5\%$ dans le cas de l'injection à pression et à débit imposés

En conclusion, nous pouvons dire que les principaux effets du débit et de la concentration sur la dynamique de colmatage sont relativement similaires entre l'injection à débit imposé et à pression imposée. En effet, nous retrouvons le fait que l'accumulation augmente légèrement avec la concentration dans le régime de non colmatage et que la pression (et le débit) a un effet faible sur l'accumulation. La différence principale entre les deux conditions d'injection est qu'il ne semble pas que l'accumulation atteigne un plateau dans le cas de la pression imposée.

Intermittence :

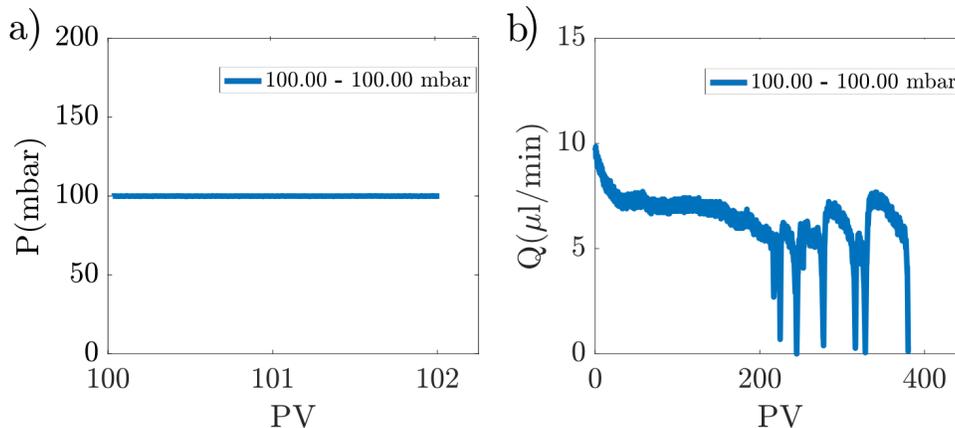


FIGURE 4.12 – a) Évolution de la pression en fonction du nombre de VP sur le tronçon [100VP, 102VP]. Une consigne de pression de 100 mbar est donnée par le contrôleur. b) La mesure de débit, en fonction du nombre VP, correspondant à la consigne de pression.

Nous nous apercevons également pour certains cas à pression constante que le milieu se colmate puis se décolmate de temps en temps en formant à peu près un processus

intermittent. Un exemple de cette intermittence est donnée sur la courbe bleue de la figure 4.12-b qui représente la mesure du débit à la sortie du milieu pour une injection à 100mbar. Nous remarquons que le débit diminue significativement juste après 200VP qui correspond à la première fois où le milieu se colmate puis la suspension s'écoule une nouvelle fois puis le milieu se recolmate et ainsi de suite jusqu'à ce que le milieu se colmate définitivement à 400VP environ.

4.1.3 Signaux périodiques de pression d'injection : phénoménologie

Le mécanisme de colmatage principal dans le cas de notre étude est le pontage. Grâce aux observations effectuées et à l'analyse de la mobilité des clusters, nous avons montré l'existence d'une dynamique de construction et de déconstruction des clusters lors du colmatage du milieu. Ce mécanisme de destruction des ponts est probablement piloté essentiellement par les perturbations de l'écoulement. De là est venue l'idée d'appliquer des signaux carrés périodiques de pression afin d'imposer des modifications d'écoulement.

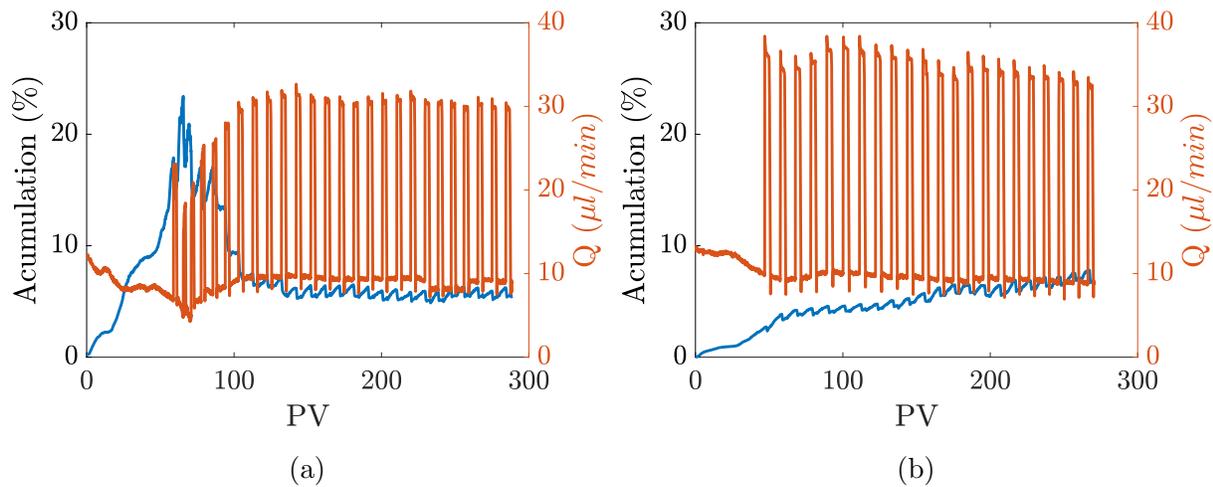


FIGURE 4.13 – Évolution de l'accumulation (axe de gauche) et du débit correspondant (axe de droite) en fonction de VP pour deux expériences similaires réalisées à $\phi = 15\%$ en utilisant des pressions périodiques de valeur minimale 100 mbar pendant 100s et de valeur maximale 400 mbar pendant 10s.

Des premières expériences ont été réalisées pour avoir une idée de quelle pouvait être la dynamique de colmatage avec ces signaux périodiques de pression. Par exemple, sur la figure 4.13b, nous représentons l'accumulation en bleu et le débit correspondant en marron en fonction du nombre de volumes de pores, pour une expérience similaire répétée deux fois. Dans cette expérience, la pression est d'abord constante, jusqu'à atteindre un niveau

d'accumulation donné. Ensuite, le signal périodique est imposé. La pression minimale a une valeur $P_{min} = 100$ mbar et elle est maintenue pendant **100s**. La pression maximale a une valeur $P_{max} = 400$ mbar, et elle est maintenue pendant **10s**. Dans le premier cas, le signal de pression oscillant est appliqué après avoir atteint une valeur d'accumulation élevée de l'ordre de 20%. Dans le second cas, il est imposé alors que la valeur d'accumulation est faible, de l'ordre de 2%. En comparant les deux courbes d'accumulation (figure ??), nous nous sommes aperçus que le niveau d'accumulation final tendait vers une même valeur. Dans le premier cas, le signal de pression oscillant cause une diminution de l'accumulation. Dans le second cas il semble ralentir sa croissance.

Également ces premières expériences ont montrés qu'il était possible d'éviter le colmatage. Pour $\phi = 15\%$, La figure 4.14-a montre un exemple de deux consignes de pression constantes (75mbar et 125mbar) et d'un signal carré de pression fluctuant entre 87.5mbar et 112.5mbar, lors de l'injection d'une suspension à $\phi = 15\%$. Sur la figure (4.14-b), est représentée la réponse du système sous forme d'une mesure de débit, à la sortie du milieu.

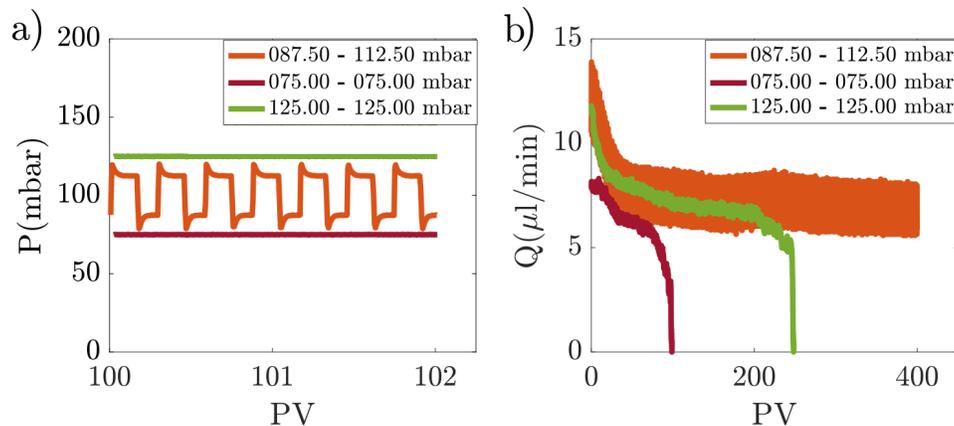


FIGURE 4.14 – a) Évolution de la pression en fonction du nombre de VP sur le tronçon [100VP, 102VP] . Trois consignes de pression : deux pressions constantes (75mbar et 125mbar) et une pression variable (signal carré variant entre 87.5mbar et 112.5mbar). b) La mesure de débit, en fonction du nombre VP, correspondant à chaque consigne de pression.

À 75mbar, le débit tend vers 0 au bout de 100VP, le milieu est colmaté. A 125mbar, le colmatage se produit un peu plus tard. A l'opposé, pour la pression variable, l'écoulement de la suspension à travers le milieu poreux est maintenu et le débit continue à fluctuer sans que le colmatage se produise.

Dans la suite, nous allons donc chercher à caractériser l'influence des caractéristiques du signal de pression sur la dynamique de colmatage. Nous considérerons le cas simple d'un signal périodique. Tout signal périodique est doté de deux caractéristiques

principales : sa fréquence et son amplitude. Nous allons donc nous intéresser à l'effet de ces caractéristiques sur la dynamique de colmatage. Nous avons fait le choix de travailler autour d'une pression moyenne de $P_{moy} = 100 \text{ mbar}$ qui correspond à un débit moyen initial $Q_{moy} = 10 \mu\text{l}/\text{min}$, et de varier l'amplitude autour de cette valeur à différentes fréquences.

4.1.4 Effet de la fréquence

Dans cette partie, nous allons étudier l'effet de la fréquence du signal de pression. Sur le tableau 4.1 nous rapportons les différents paramètres utilisés pour mener cette étude.

Caractéristiques	Valeurs
<i>Diamètre des particules (μm)</i>	15
<i>Fraction massique (%)</i>	10, 15, 20
<i>P_{min} (mbar)</i>	75
<i>P_{max} (mbar)</i>	125
<i>Amplitude (mbar)</i>	25
<i>Fréquence (Hz)</i>	1/2.5, 1/5, 1/15, 1/60

TABLE 4.1 – Caractéristiques de l'étude de l'effet de la fréquence du signal de pression sur le colmatage

Trois fractions massiques ont été utilisées : $\phi = 10\%$, $\phi = 15\%$ et $\phi = 20\%$. La valeur maximale du signal de pression est $P_{max} = 125 \text{ mbar}$ et sa valeur minimale $P_{min} = 75 \text{ mbar}$ (l'amplitude $A = 25 \text{ mbar}$ et la pression moyenne $P_{moy} = 100 \text{ mbar}$). À $\phi = 10\%$ et $\phi = 20\%$, quatre expériences ont été réalisées : deux à pression constante de 75 mbar et 125 mbar et deux signaux de pression carrés de fréquences 1/2.5 Hz et 1/60 Hz. Dans le cas d'une suspension de fraction massique $\phi = 15\%$, six expériences ont été réalisées : deux à pression constante de 75 mbar et 125 mbar, et quatre signaux de pression carrés de fréquences 1/2.5 Hz, 1/5 Hz, 1/15 Hz et 1/60 Hz.

4.1.4.1 Accumulation

Pour $\phi = 10\%$, nous reportons sur la figure 4.15-a l'évolution de l'accumulation en fonction du nombre de volume de pores pour les quatre signaux de pression appliqués, et sur la figure 4.15-b la moyenne des courbes d'accumulation obtenues à partir des expériences répétées dans les mêmes conditions. A cette fraction volumique de particules, nous sommes dans un régime de non colmatage lorsque la pression est constante. Tout d'abord, nous remarquons la relativement bonne répétabilité des expériences faites avec les mêmes conditions. Ensuite, nous pouvons voir que la fréquence de 1/60 Hz n'a quasiment aucune influence sur la dynamique de colmatage. En effet, pour cette fréquence, l'accumulation évolue de la même manière que pour les courbes à fréquence nulle. Par contre, l'effet de la pression périodique sur l'état de colmatage est clair pour la fréquence 1/2.5 Hz. A cette

fréquence, l'accumulation atteint un palier stationnaire et un niveau d'accumulation plus faible que ceux atteints aux pressions constantes.

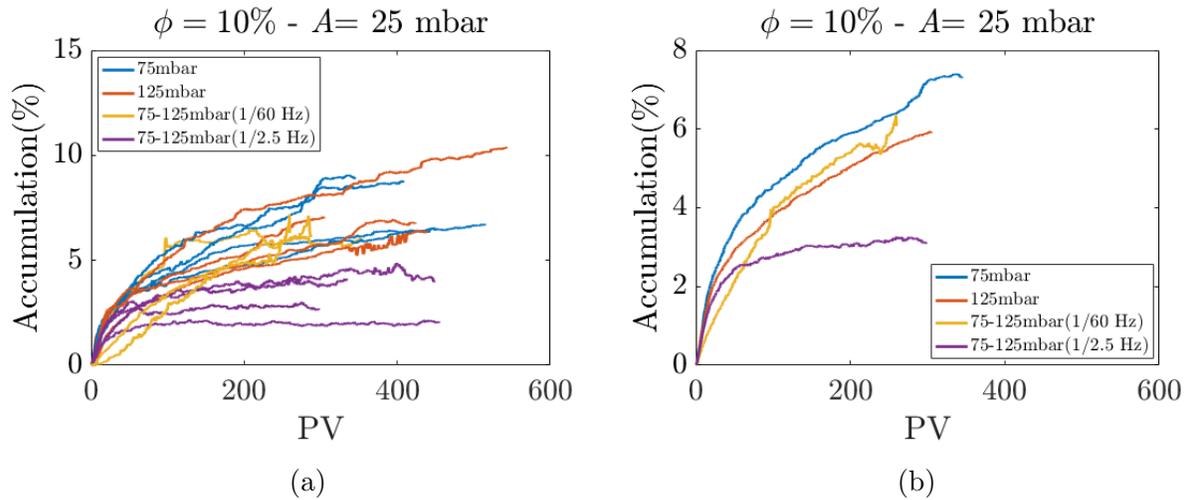


FIGURE 4.15 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de particules de diamètres $15 \mu m$ et une fraction volumique $\phi = 10\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP.

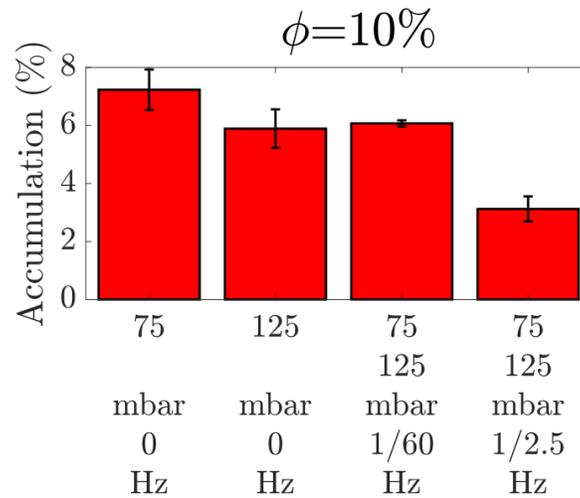


FIGURE 4.16 – Histogramme de l'accumulation moyenne à différentes fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 10\%$.

Nous prenons les valeurs de l'accumulation moyenne à 200VP et les représentons sous forme d'un histogramme en fonction de la fréquence comme le montre la figure 4.16. Pour une fréquence de 1/2.5 Hz, l'accumulation est autour de 3% tandis que pour le reste des expériences, ses valeurs sont d'environ 6 % c'est-à-dire que l'accumulation est diminuée

de presque 50 %.

Pour $\phi = 15\%$, nous traçons sur la figure 4.17-a l'accumulation en fonction du nombre de volumes de pores pour les six signaux de pression appliqués, et sur la figure 4.17-b la moyenne des courbes d'accumulation obtenues à partir des expériences répétées dans les mêmes conditions. Pour cette fraction volumique de particules, nous sommes normalement dans un régime intermédiaire dans lequel le colmatage peut avoir lieu. C'est pour cela qu'en moyennant les courbes, nous avons distingué les expériences colmatées (trait continu) et non colmatées (trait discontinu).

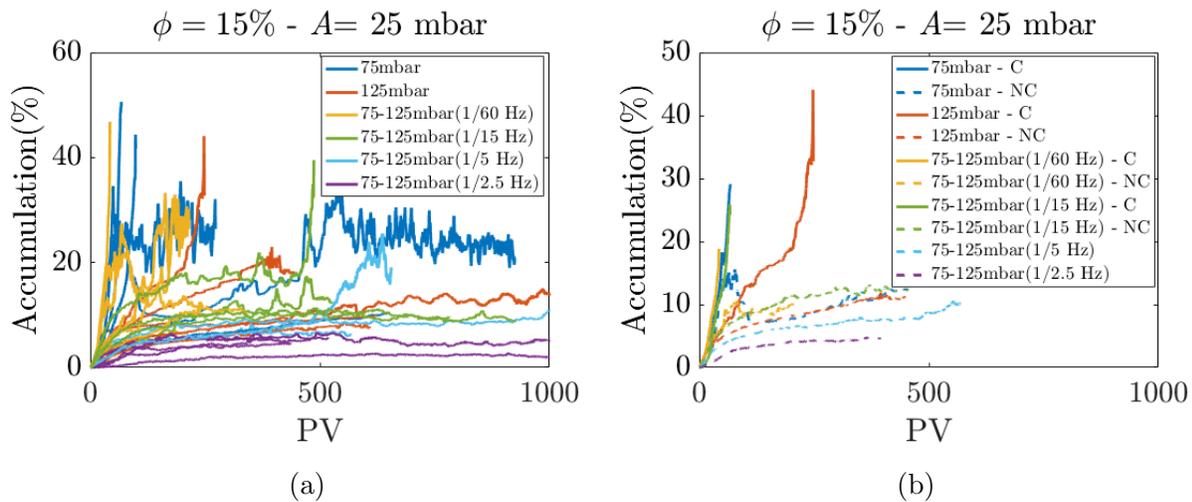


FIGURE 4.17 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu\text{m}$ à $\phi = 15\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP (sur la légende C : signifie colmaté(clogged) et NC : signifie non colmaté(non-clogged)).

Pour une meilleure visibilité nous traçons sur la figure 4.18 les résultats de l'accumulation moyenne sous forme d'un histogramme en fonction de la fréquence ainsi que le pourcentage des expériences colmatées. Nous remarquons tout d'abord que le nombre des expériences colmatées diminue avec la fréquence. À 1/60 Hz, il n'y a aucun effet clair sur le colmatage. Effectivement, l'accumulation ainsi que le pourcentage d'expérience colmatées ont quasiment les mêmes valeurs que celles des expériences faites à une pression constante de 125 mbar. À 1/15 Hz, l'effet commence à apparaître et nous remarquons que le pourcentage d'expériences colmatées ainsi que l'accumulation diminuent légèrement (30% par rapport à 75mbar). À 1/2.5 Hz et 1/5 Hz, plus aucune expérience n'est colmatée. C'est-à-dire que pour ces deux valeurs de fréquence, nous arrivons à éviter le colmatage de façon définitive. De plus la valeur de l'accumulation diminue également de plus de 80% par rapport à la pression constante 75mbar.

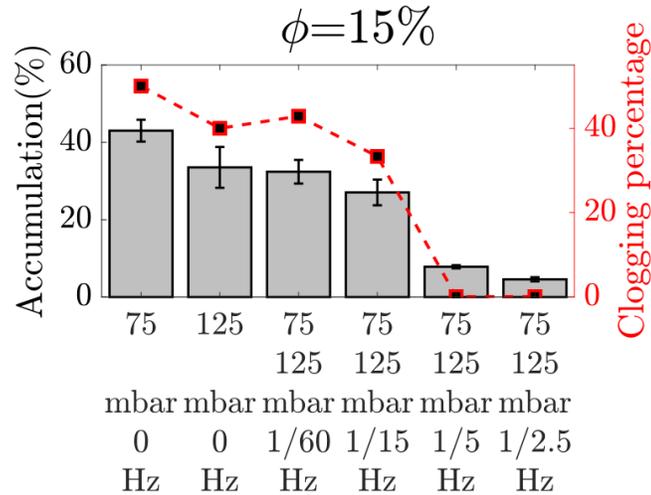


FIGURE 4.18 – À gauche : Histogramme de l'accumulation moyenne. À droite : Pourcentage des expériences colmatées, à différentes fréquences et $\phi = 15\%$.

Enfin, à $\phi = 20\%$, ce régime correspond à un régime de colmatage dans le cas d'une pression constante. Nous nous attendons à ce que toutes les expériences soient colmatées.

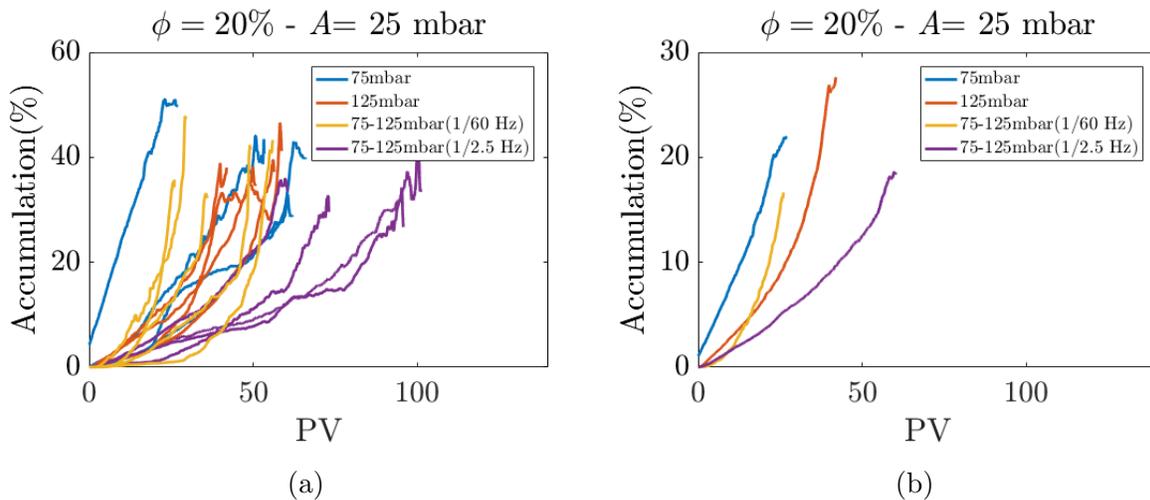


FIGURE 4.19 – a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15\ \mu\text{m}$ à $\phi = 20\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP.

La figure 4.19-a représente l'accumulation en fonction du nombre de volume de pores pour les quatre signaux de pression appliqués, et la figure 4.19-b la moyenne des courbes d'accumulation obtenues à partir des expériences répétées dans les mêmes conditions. Nous nous apercevons que toutes les expériences sont colmatées mais ce qui change d'un signal de pression à un autre est le nombre de volume de pores injectés avant le colmatage.

Autrement dit, la quantité de particules injectées nécessaire pour colmater le milieu est plus importante pour les fortes fréquences. Pour illustrer ce retardement du colmatage, nous reportons sur la figure 4.20 l'histogramme de nombre de volumes de pores injectés avant colmatage en fonction de la fréquence et nous constatons qu'à 1/60 Hz, le signal carré périodique n'a pas d'effet sur la vitesse du colmatage. Cependant, à 1/2.5 Hz, le colmatage est retardé de 30 PV par rapport à la moyenne des deux pressions constantes (26 PV).

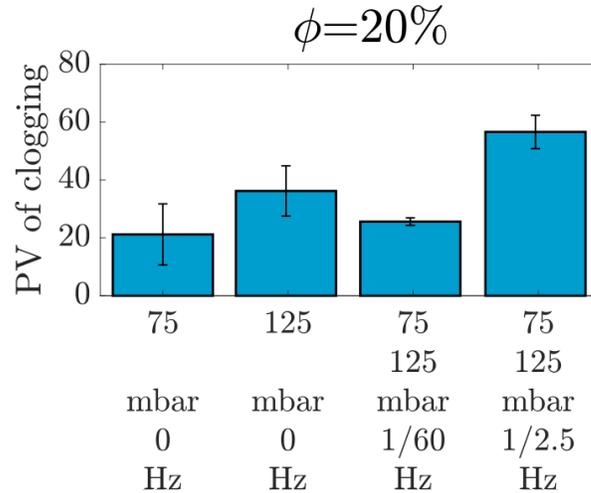


FIGURE 4.20 – Histogramme de nombre de volumes de pores injectés avant d'arriver au colmatage du milieu, à différentes fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 20 \%$.

En conclusion, dans les trois régimes, non bouchage, transition ou bouchage, nous avons mis en avant qu'une fréquence supérieure à 1/15 Hz avait un effet inhibiteur sur le colmatage en réduisant l'accumulation, en prévenant le bouchage ou en le retardant. La pression périodique ne donc peut avoir un impact sur le colmatage qu'au delà d'une fréquence caractéristique F_{cara} . Celle-ci a été défini comme étant l'inverse du temps mis par une particule pour traverser un cluster (le rapport entre la longueur du cluster et la vitesse de l'écoulement). Dans notre cas, nous retrouvons la valeur $F_{cara} \approx 1/7 \text{ Hz} \approx 0.14 \text{ Hz}$ par le calcul. Pour là vérifier, nous avons réalisé des expériences à une fréquence de 1/7.5 Hz et à 1/10 Hz. À 1/7.5 Hz l'effet des pressions périodiques est toujours présent alors qu'à 1/10 Hz non.

4.1.4.2 Taille des clusters

La même analyse a été refaite sur la taille des clusters pour chacune des fraction massiques 10%, 15% et 20%. Nous traçons sur la figure 4.22-a le rapport de taille Cluster/Pore en fonction du nombre de volumes de pores pour les quatre signaux de pression appliqués, et sur la figure 4.22-b la moyenne des courbes de la même expérience répétée plusieurs

fois dans les mêmes conditions. Nous remarquons que l'effet de la pression périodique sur l'état de colmatage est clair pour la fréquence 1/2.5 Hz vu que le rapport de taille atteint un palier stationnaire et une valeur plus faible par rapport aux pressions constantes. Au contraire la courbe correspondant à la fréquence 1/60 Hz a la même allure que celles des pressions constantes.

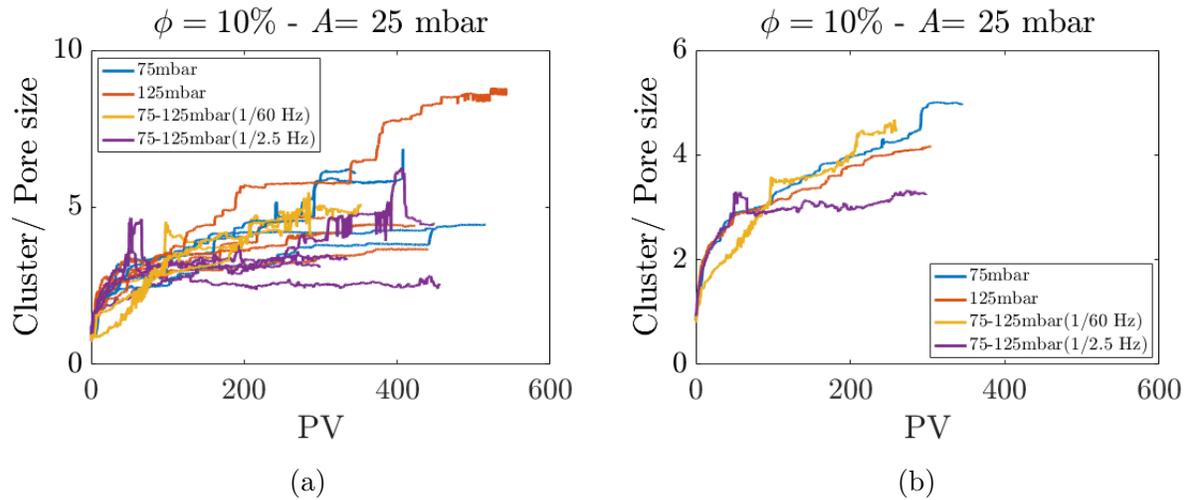


FIGURE 4.21 – a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différents fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 10\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.

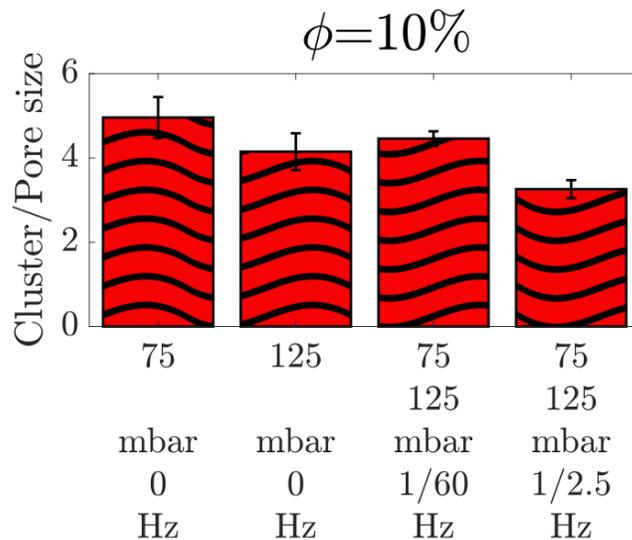


FIGURE 4.22 – Histogramme de la taille des clusters moyenne à différents fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 10\%$.

Les tailles des clusters à 200VP sont ensuite représentées sous forme d'un histogramme en fonction de la fréquence sur la figure 4.22. Nous nous apercevons que pour une fréquence de 1/2.5 Hz le rapport de taille Cluster/Pore est autour de 3 tandis que pour le reste des expériences, les valeurs sont d'environ 4. C'est-à-dire que la taille est réduite de presque 33 %. Pour le signal de pression à la fréquence 1/60 Hz, il n'y a presque pas d'effet sur la taille des clusters, ce qui rejoint les observations sur l'accumulation.

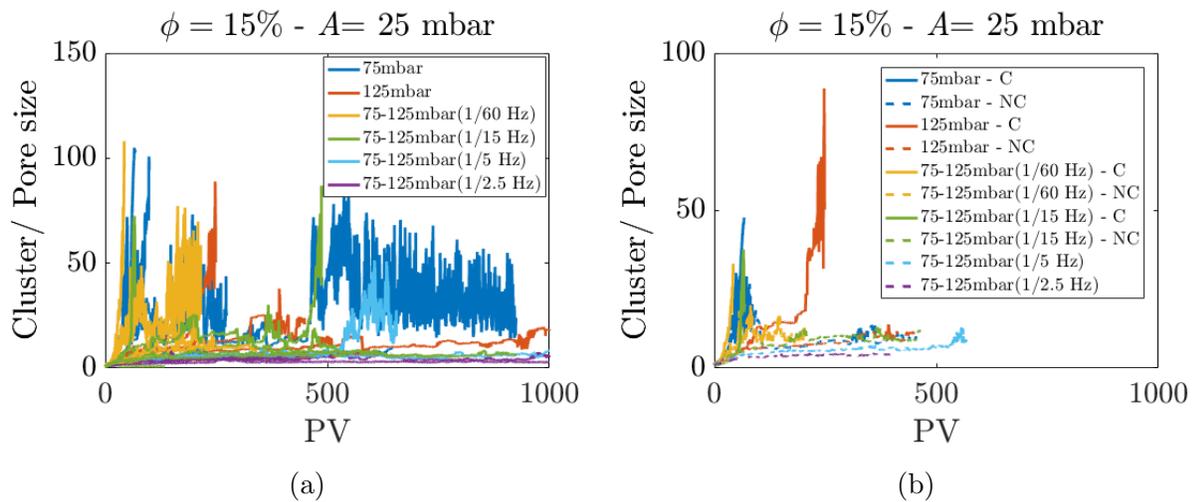


FIGURE 4.23 – a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.

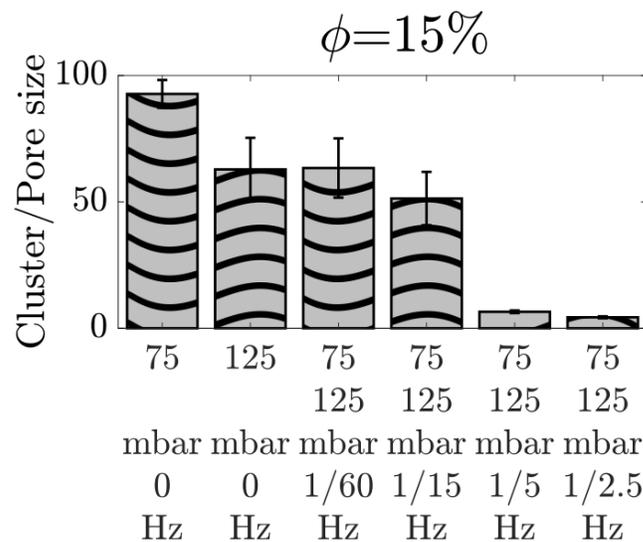


FIGURE 4.24 – Histogramme de la taille des clusters moyenne à différents fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15\%$.

Pour $\phi = 15\%$, le rapport de la taille des clusters sur la taille des pores en fonction du nombre de volume de pores pour les six signaux de pression appliqués sont tracés sur la figure 4.23-a. Les moyennes des courbes des tailles obtenues à partir des expériences répétées dans les mêmes conditions sont tracées sur la figure 4.23-b. Les moyennes des expériences colmatées (C) sont tracées en trait continu et les moyennes des expériences non colmatées (NC) en trait discontinu.

En synthèse, nous traçons sur la figure 4.24 les résultats de la taille moyenne sous forme d'un histogramme en fonction de la fréquence. À 1/60 Hz, il n'y a aucun effet clair sur le colmatage. La taille prend des valeurs qui sont quasiment les mêmes que celles des expériences à la pression constante 125mbar. À 1/15 Hz, l'effet commence à apparaître et nous remarquons que la taille des clusters diminue légèrement (30% par rapport à 75mbar). À 1/2.5 Hz et 1/5 Hz, nous avons vu qu'aucune expérience n'était colmatée. Ce se traduit aussi par une réduction significative de la taille des clusters de plus de 90% par rapport aux expériences faites à une pression constante de 75mbar.

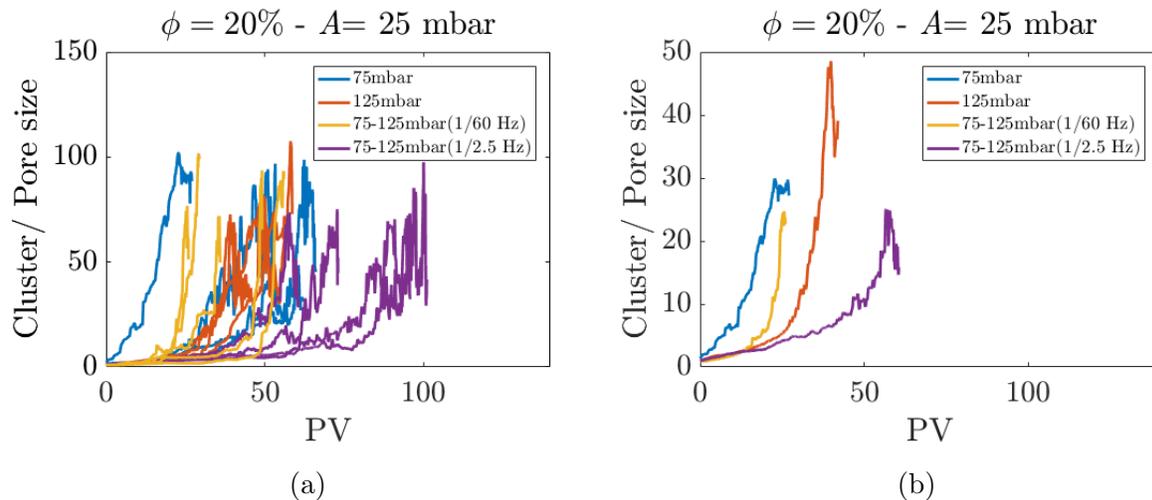


FIGURE 4.25 – a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 20\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.

Pour $\phi = 20\%$, la figure 4.25-a représente le rapport de taille Cluster/Pore en fonction du nombre de volume de pores pour les quatre signaux de pression appliqués. La figure 4.25-b représente la moyenne des courbes de taille obtenues à partir des expériences répétées dans les mêmes conditions. Comme il a été montré dans le paragraphe précédent caractérisant l'accumulation, toutes les expériences sont colmatées. Concernant la taille des clusters, nous nous apercevons qu'ils croissent d'autant plus lentement que la fréquence est grande.

Ainsi, nous pouvons conclure que la taille des clusters est aussi impactée par le fait d'imposer un signal de pression périodique. Tout comme l'accumulation, plus la fréquence est élevée et moins la taille des clusters est importante. Cette observation permet de dire que les particules s'accumulent moins dans le milieu poreux lorsqu'un signal de pression périodique est appliqué car les clusters n'arrivent pas ou ont plus de difficulté à croître. Nous pouvons penser que la perturbation de l'écoulement empêche le maintien d'arches de particules stable dans le temps.

4.1.5 Rôle de la déformabilité du milieu

Des effets intéressants des signaux périodiques de pression sur la dynamique de colmatage ont été mis en avant. Néanmoins, étant donné que le PDMS est légèrement déformable, une question légitime se pose : **Est-ce que la destruction des ponts due à l'écoulement non stationnaire est à cause de la déformabilité du PDMS ?**

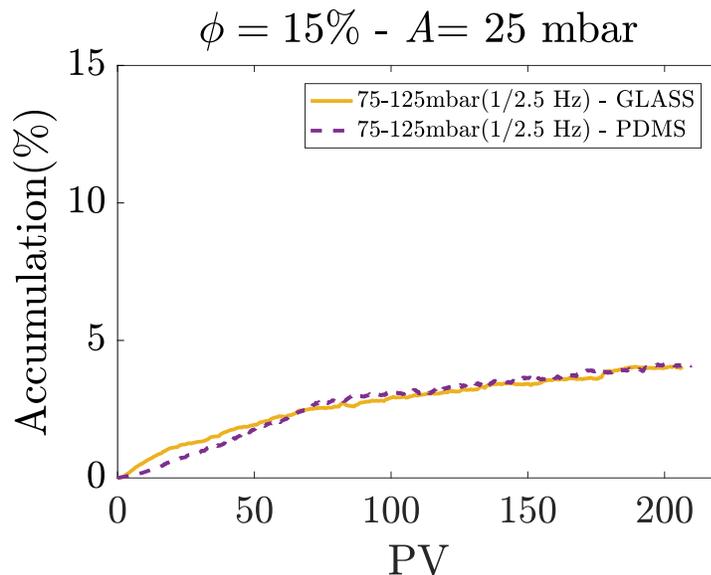


FIGURE 4.26 – Évolution de l'accumulation en fonction de VP. Comparaison des entre les résultats dans un dispositif en PDMS et un dispositif en verre. Une suspension de $\phi = 15\%$ est injectée sous le signal carré périodique de pression suivant : 75 mbar (2.5s) - 125 mbar (2.5s)

Pour répondre à cette question nous avons utilisé un milieu modèle réalisé en silicium et en verre, présentant la même géométrie de milieu poreux. Sur la figure 4.26, nous reportons la comparaison entre les courbes d'accumulations en fonction de PV pour un dispositif en PDMS et un autre en verre. Un signal périodique de pression est appliqué entre $P_{min} = 75\text{mbar}$ et $P_{max} = 125\text{mbar}$, avec fréquence $1/2.5 \text{ Hz}$. La courbe jaune est la moyenne de toutes les expériences réalisées sur du PDMS et la courbe en pointillés de couleur violet correspond à l'expérience réalisée sur le dispositif en verre silicium. Nous

pouvons clairement voir que les deux courbes se superposent. Ainsi nous pouvons dire que la destruction des ponts n'est pas liée à la déformabilité du PDMS.

4.1.6 Effet de l'amplitude

Dans cette partie, nous allons étudier l'effet de l'amplitude. Sur le tableau 4.2 nous rapportons les différents paramètres utilisés pour mener cette étude. La fréquence es prise égale à 0,4 Hz (ou 1/2,5 Hz), fréquence pour laquelle nous avons mis en avant un effet du signal périodique sur le dynamique de colmatage.

Caractéristiques	Valeurs
<i>Diamètre des particules (μm)</i>	15
<i>Fraction massique (%)</i>	15
<i>P_{moy} (mbar)</i>	100
<i>Fréquence (Hz)</i>	1/2.5
<i>Amplitude (mbar)</i>	0, 12.5, 18.75, 25

TABLE 4.2 – Caractéristiques de l'étude de l'effet de l'amplitude du signal de pression sur le colmatage

Pour se situer et faire le lien avec la partie précédente, nous rappelons que l'usage des particules de $15\mu m$ implique qu'on est dans un régime où le colmatage dépend de la concentration, et qu'à $\phi = 15\%$, nous ne sommes pas loin de la transition entre colmatage et non colmatage. Ce qui veut dire que nous nous attendons à avoir du colmatage sur certaines expériences.

4.1.6.1 Accumulation

Nous traçons sur la figure 4.27-a l'accumulation en fonction du nombre de volumes de pores pour les quatre amplitudes utilisées : 0mbar, 12.5mbar, 18.75mbar et 25mbar. Nous rappelons que pour chaque amplitude, l'expérience est faite au moins 4 fois.

Tout d'abord, nous pouvons remarquer que la reproductibilité est très bonne, et que les quatre paquets de courbes sont facilement discernables. Comme attendu, les courbe d'amplitude nulle (pression constante), sont celles présentant l'accumulation la plus élevée, avec des valeurs comprises entre 20% et 40%. Pour le reste des courbes, (amplitude non nulle) l'accumulation ne dépasse pas 16%. En outre, à 100 mbar sur une bonne partie des expériences, le milieu poreux est colmaté. Le milieu est considéré comme colmaté lorsque les pattes sont bouchées.

Pour une analyse plus approfondie, nous calculons la moyenne de l'accumulation sur chaque paquet de courbe et nous traçons les résultats sur la figure 4.27-b. Nous constatons que les courbes correspondant aux amplitudes non nulles, atteignent un plateau quasiment constant avec des niveaux d'accumulation faibles.

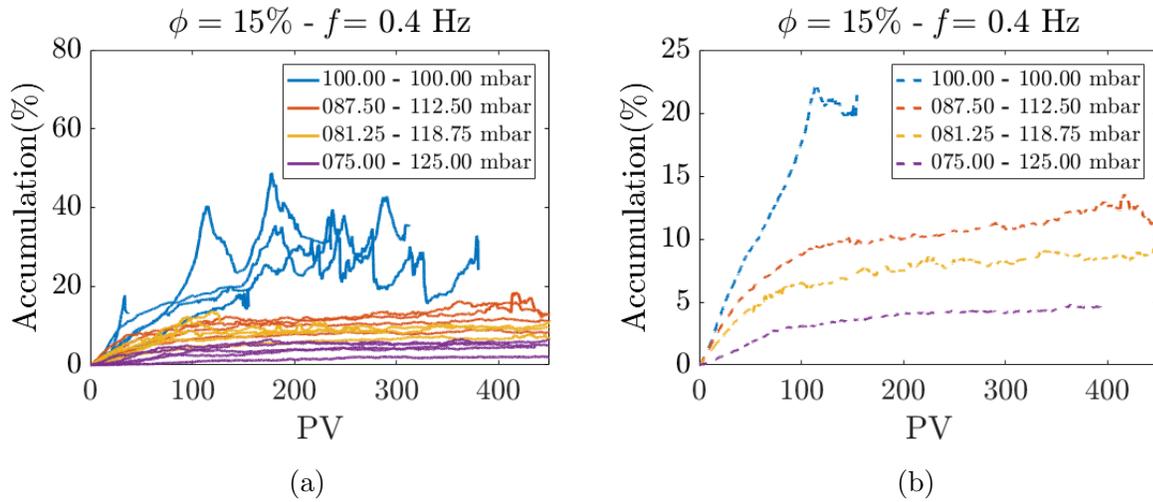


FIGURE 4.27 – a) Évolution de l’accumulation en fonction de VP pour différents amplitudes (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu\text{m}$ à $\phi = 15\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d’accumulation en fonction de VP.

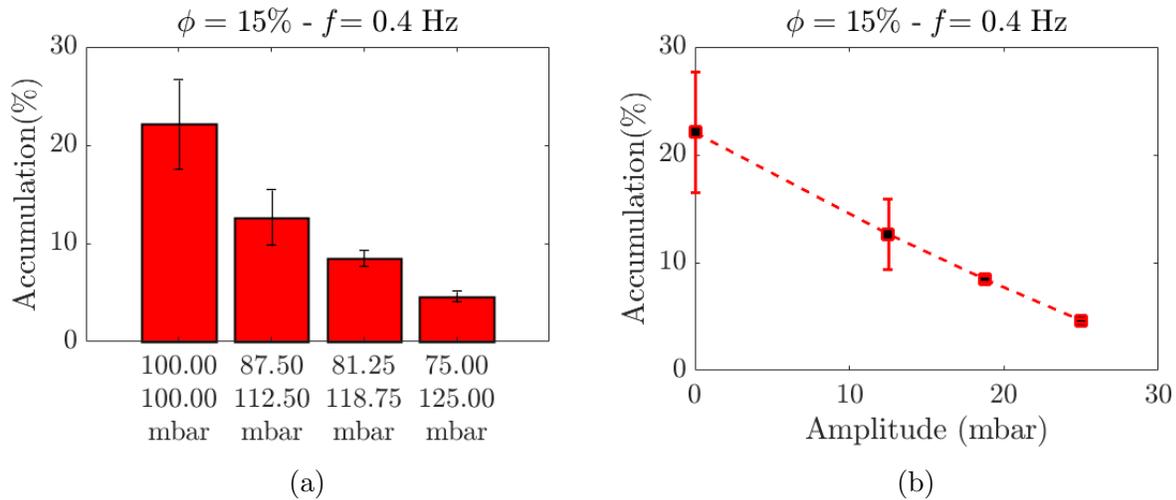


FIGURE 4.28 – a) Histogramme de l’accumulation moyenne à différents amplitudes pour une suspension de $15 \mu\text{m}$ à $\phi = 15\%$. b) Évolution de l’accumulation moyenne en fonction de l’amplitude.

La figure 4.28 représente à l’histogramme de l’accumulation moyenne et son évolution en fonction de l’amplitude des signaux de pression. Nous pouvons noter que l’accumulation diminue avec l’amplitude de façon linéaire.

4.1.6.2 Taille des clusters

De la même façon nous traçons sur la figure 4.29-a le rapport de la taille des clusters et la taille des pores en fonction du nombre de volumes de pores pour les quatre amplitudes utilisées : 0mbar, 12.5mbar, 18.75mbar et 25mbar.

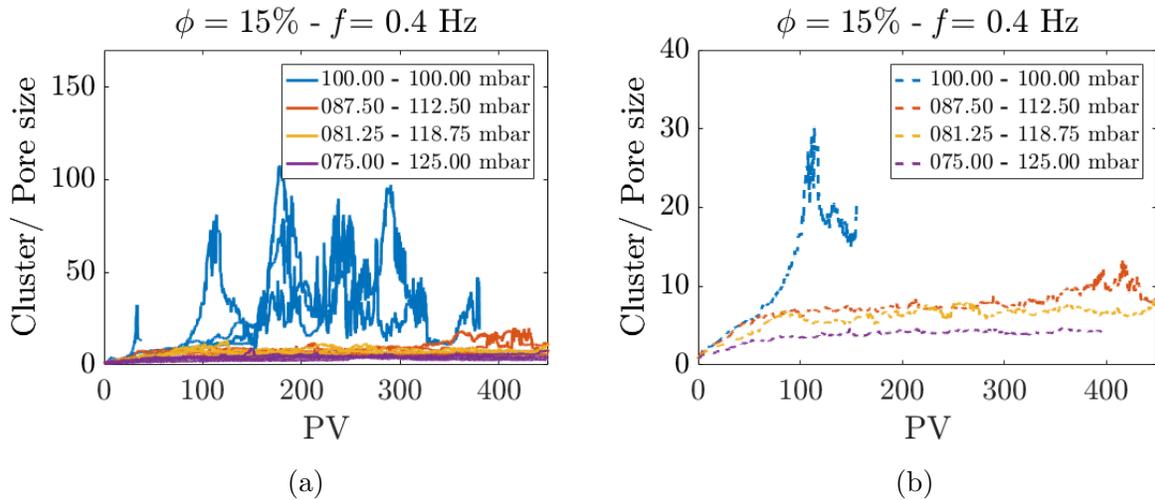


FIGURE 4.29 – a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différents amplitudes (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu\text{m}$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.

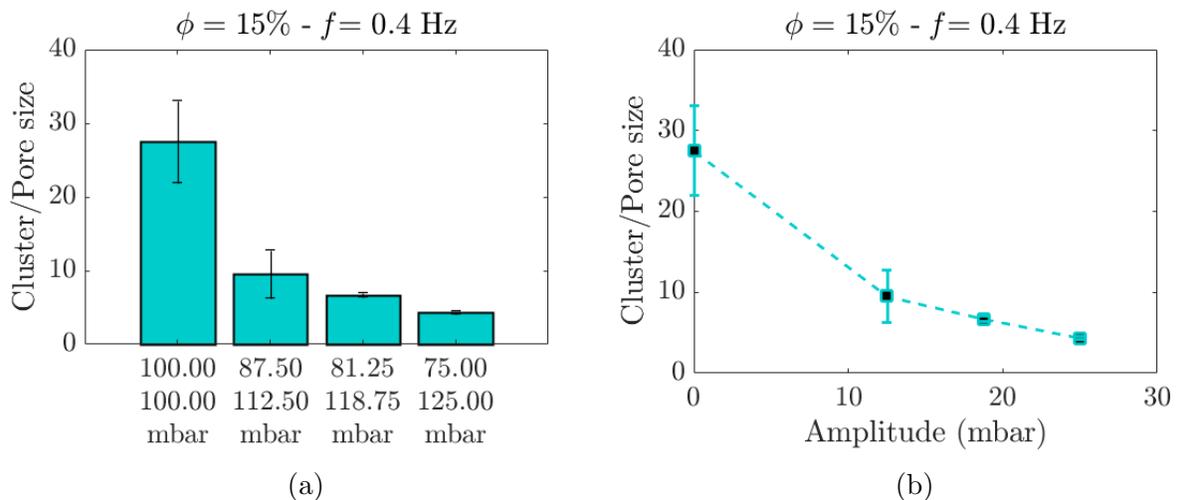


FIGURE 4.30 – a) Histogramme de la taille des clusters moyenne à différents amplitudes pour une suspension de $15 \mu\text{m}$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de la taille des clusters moyenne en fonction de l'amplitude.

À 100mbar les clusters peuvent faire jusqu'à cent fois la taille des pores ($100 \times D_{pores}$) alors qu'à amplitude non nulle la taille des clusters ne dépasse pas généralement dix fois la taille des pores ($10 \times D_{pores}$). En moyennant les courbes de taille, nous retrouvons sur la figure 4.29-b une allure similaire à l'accumulation, c'est-à-dire que des paliers quasi-constants sont atteints, sauf que les courbes ici sont beaucoup plus proches entre elles. Sur la figure 4.30, nous donnons l'historgramme de la taille moyenne et son évolution en fonction de l'amplitude des signaux de pression. A 100mbar, nous prenons la valeur de

la taille des clusters à 115VP et pour le reste des courbes nous prenons les valeurs de la taille à 400VP. Nous notons la taille des clusters diminue avec l'amplitude de manière non linéaire.

Les différentes observations faites sur les effets de l'amplitude du signal période sur la dynamique de colmatage montre que plus l'amplitude est importante est plus l'accumulation et la taille des cluster sont faibles. Une explication est que l'amplitude importante permet de déstructurer les clusters de manière plus efficace.

4.2 Conclusion et discussion

Nous avons vu dans le chapitre précédent à quel point les processus de formation/destruction des ponts sont importants et que les perturbations de l'écoulement peuvent influencer significativement le mécanisme de destruction de ces ponts. Ce qui nous a amené à adopter une méthode qui va nous permettre de piloter ces perturbations à travers un écoulement non-stationnaire bien maîtrisé. L'idée est d'appliquer des signaux carrés périodiques de pression et voir leurs effets selon le régime de colmatage étudié.

Compte tenu des résultats obtenus nous pouvons conclure ce qui suit :

- la pression périodique ne peut avoir un impact sur l'état et la dynamique du colmatage qu'au delà d'une fréquence caractéristique F_{cara} qui correspond au temps mis par une particule pour traverser un cluster. Dans notre cas, nous avons vérifié que $F_{cara} \approx 1/7 \text{ Hz} \approx 0.14 \text{ Hz}$.
- dans le régime de non colmatage ($\phi = 10 \%$ et $D_{par} = 15 \mu m$), la pression périodique permet de réduire jusqu'à 50% l'accumulation et la taille des clusters.
- dans le régime intermédiaire près de la transition colmatage/non-colmatage ($\phi = 15 \%$ et $D_{par} = 15 \mu m$), la pression périodique permet, au delà de la fréquence caractéristique, d'éliminer de façon définitive le colmatage et de réduire également l'accumulation et la taille des clusters jusqu'à 80% par rapport aux expériences colmatées.
- dans le régime de colmatage ($\phi = 20 \%$ et $D_{par} = 15 \mu m$), la pression périodique permet de retarder le colmatage et par conséquent augmenter la durée de vie du milieu poreux.
- au delà de F_{cara} et pour une fréquence donnée, plus l'amplitude est importante, moins l'accumulation est importante et moins la taille des clusters est importante. Ceci a été vérifié jusqu'à une amplitude minimale qui fait 12.5 % de la pression moyenne.
- Un état stationnaire est atteint sur les courbes d'accumulation et de taille des clusters dans le régime de non-colmatage et le régime intermédiaire ce qui va permettre d'avoir des états de colmatage robustes et reproductibles pour mener à bien des études de décolmatage par injection du fluide suspendant. C'est-à-dire que

pour étudier cette méthode de décolmatage les états stationnaires vont permettre d'avoir des conditions initiales, en terme d'accumulation et de taille des clusters, bien maîtrisées.

Pour finir nous reportons sur la figure 4.31 un schéma récapitulatif des résultats les plus importants selon les régimes de colmatages.

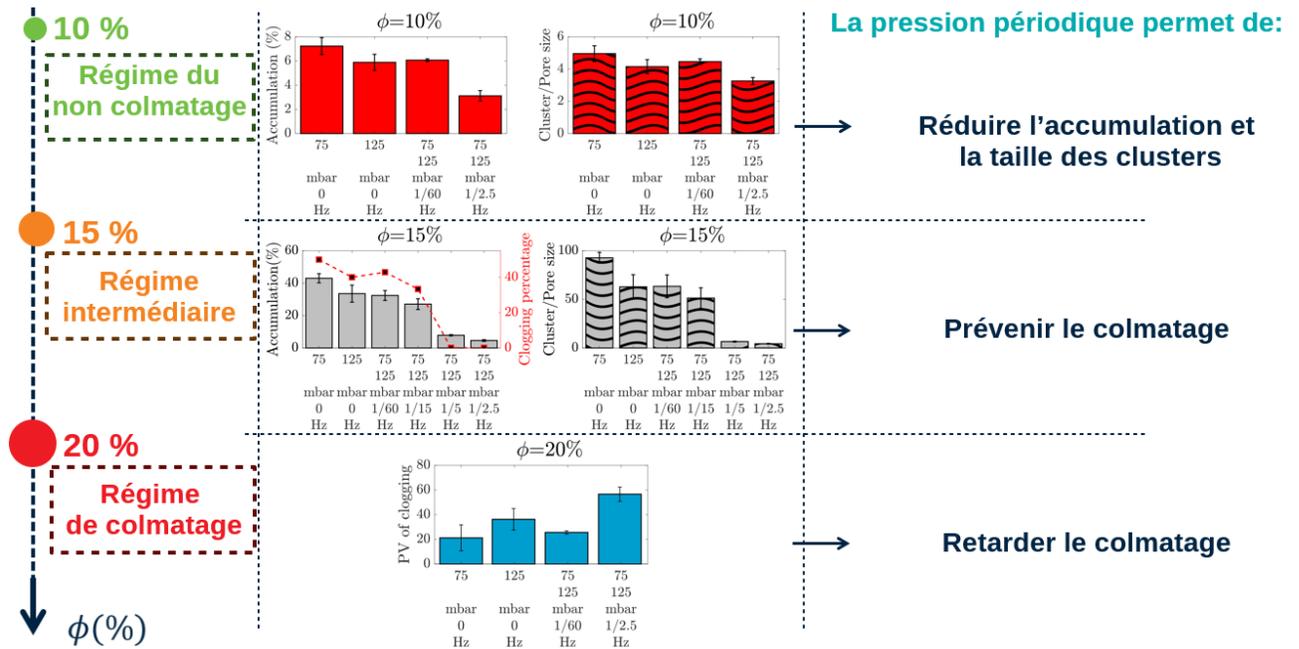


FIGURE 4.31 – Schéma résumant l'effet des signaux périodiques de pression sur chaque régime de colmatage

Chapitre 5

Colmatage par une suspension bidisperse

Sommaire

5.1	Caractérisation de la suspension	146
5.2	État du colmatage	147
5.3	Effet de la concentration et du débit	147
5.3.1	En terme d'accumulation	148
5.3.2	En terme de taille des clusters	152
5.3.3	En terme de centre de masse des clusters	153
5.4	Comparaison avec la suspension monodisperse	155
5.5	Conclusion et discussion	158

Dans ce chapitre nous allons étudier le colmatage dans le milieu poreux en utilisant une suspension de particules bidisperses de taille majoritaire $6 \mu m$. Dans les chapitres 3 et 4, nous avons utilisé des particules monodisperses, sans interactions significatives entre elles ni avec les parois. Nous avons vu que le mécanisme de colmatage était dans le cas monodisperse essentiellement le pontage. Ce mécanisme est efficace lorsque la taille des particules est égale ou supérieure à $1/3$ de la taille des constriction. Les particules de $6 \mu m$ sont inférieures à ce critère et aucun colmatage ni accumulation du milieu n'a été observée avec ces particules, ni même avec des particules monodisperses de $10 \mu m$. Nous avons vu que la paramètre le plus important pour définir l'état de colmatage est la taille des particules, et qu'il existe deux régimes : un régime de non colmatage et un régime de colmatage.

Dans ce chapitre, nous avons choisi de nous placer dans le régime de non colmatage pour les particules monodisperses mais d'ajouter à cette suspension un faible pourcentage de particules ayant une taille qui est de l'ordre des celle des pores. Ainsi, nous nous attendons à combiner le mécanisme de tamisage (exclusion géométrique) avec le mécanisme de pontage.

5.1 Caractérisation de la suspension

Les particules utilisées sont des particules de PMMA de $6 \mu m$ (**SPHEROMERS CA 6**) de la société MICROBEADS. Nous avons vu dans le chapitre de Matériels et méthodes (2.2.2.1) que leur coefficient de variation est $C_v = 1.8\%$, une valeur très faible nous permettant de parler de particules monodisperses. Il a cependant fallu utiliser une procédure de tamisage pour obtenir ces particules monodisperses. Dans cette partie, nous utilisons les particules telles qu'elles sont reçues par le fabricant c'est-à-dire sans les faire passer par le processus de tamisage. Une caractérisation par observation au microscope a été réalisée et nous avons trouvé que la taille des grosses particules est de l'ordre de $30 \mu m$ et que leur pourcentage est de 0.124% . Le tableau 5.2 donne la taille et pourcentage des particules.

Caractéristiques	Taille (μm)	Pourcentage (%)
<i>Petites particules</i>	~ 6	99.876
<i>Grosses particules</i>	~ 30	0.124

TABLE 5.1 – Caractéristiques de la suspension de particules bidisperses

Nous rappelons que le fluide suspensé est iso-indice de réfraction avec les particules de PMMA ce qui veut dire que les interactions avec les particules sont négligeables, et que celles-ci ne s'attachent pas aux murs du milieu poreux ce qui signifie que les interactions avec les murs sont également négligeables. Ceci a permis d'écarter le mécanisme d'agrégation (colmatage par interactions physico-chimiques) de notre étude et de ne s'intéresser qu'aux aspects géométriques de colmatage.

5.2 État du colmatage

Les expériences de cette partie sont effectuées pour des suspensions de particules de trois fractions massiques à différents débits situés dans la gamme $[2\mu\text{l}/\text{min}, 50\mu\text{l}/\text{min}]$. Les détails sont rapportés sur le tableau 5.2.

Caractéristiques	Valeurs
Taille des particules (μm)	6(99.876%) + 30(0.124%)
Fraction massique (%)	10, 20, 30
Débits ($\mu\text{l}/\text{min}$)	2, 5, 10, 20, 30, 50

TABLE 5.2 – Caractéristiques de l'étude l'écoulement des suspensions bidisperses

Les résultats ont montré que quelque soit la fraction massique et quelque soit le débit, le milieu poreux fini par se colmater, contrairement aux expériences réalisées pour des écoulements de suspensions de particules monodisperses de $6\mu\text{m}$ qui n'induisent jamais de colmatage. Sur le diagramme de phase de particules bidisperses 5.1a, nous pouvons remarquer que tous les points ont la forme d'une étoile qui représente le régime de colmatage et que l'accumulation peut aller jusqu'à 20%. Sur le diagramme de phase de particules monodisperses 5.1b, les points ont une forme circulaire qui représente le régime de non colmatage et l'accumulation ne dépasse pas 3%. Nous nous apercevons donc qu'un pourcentage très négligeable (0.124%) de grosses particules a un effet très significatif sur le colmatage. Malgré la prépondérance des petites particules (une grosse particule pour 1000 petites particules) nous sommes passés du régime de non colmatage au régime de colmatage. Pour quantifier ceci, nous mesurons l'accumulation, la taille des clusters et leurs centres de masse.

5.3 Effet de la concentration et du débit

Dans ce paragraphe nous allons nous intéresser en détail aux effets du débit et de la fraction massique pour voir si la combinaison des deux mécanismes (tamisage et pontage) va permettre de dégager les mêmes conclusions que celles des suspensions de particules monodisperses (mécanisme de pontage).

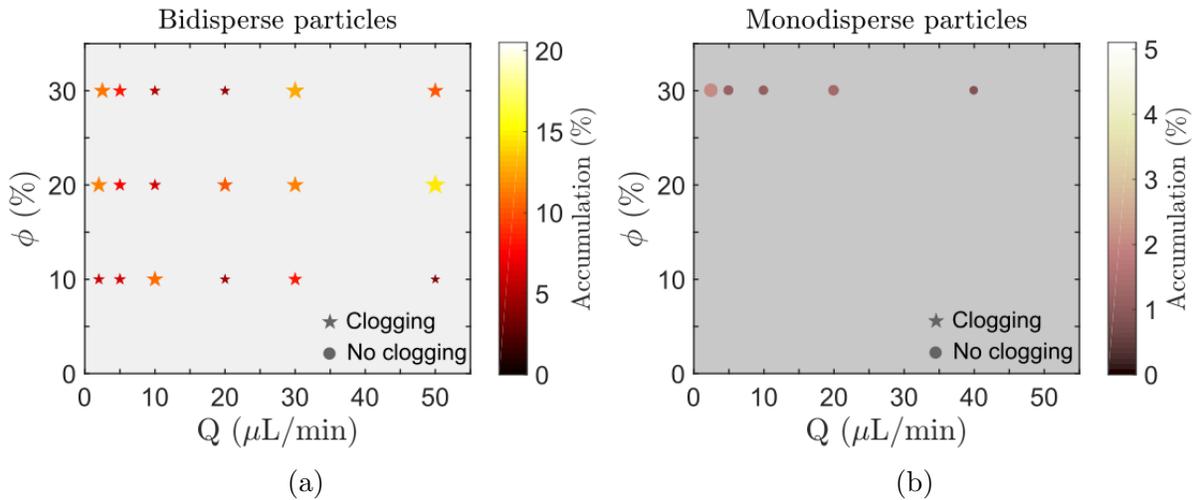


FIGURE 5.1 – Diagrammes de phase du colmatage . a) : Particules bidisperses ($6 \mu\text{m}$ (99.876%) et $30 \mu\text{m}$ (0.124%)) et b) : Particules monodisperses ($6 \mu\text{m}$).

5.3.1 En terme d'accumulation

Pour commencer, nous reportons sur la figure 5.2 l'évolution des courbes d'accumulation en fonction du nombre de VP à différents débits pour chacune des fractions massiques. La première remarque qui se dégage c'est que les courbes d'accumulation ne font qu'augmenter en fonction du nombre de PV. Elles sont linéaires contrairement au cas monodisperse dans lequel l'accumulation atteint un palier quasi-stationnaire. À $\phi = 10\%$ les courbes sont superposables et l'accumulation ne dépend donc pas du débit. À $\phi = 20\%$ elles sont toujours superposables mais un peu plus dispersées qu'à 10% et à $\phi = 30\%$ elles sont beaucoup plus dispersées. Nous constatons qu'aucune tendance ne se dégage vis-à-vis du nombre de volumes de pores injectés avant le colmatage du milieu, et nous pouvons confirmer ceci grâce à la figure 5.3 sur laquelle nous traçons le temps de colmatage en VP en fonction du débit pour chacune des fractions massiques (cf figure 5.3a) et en fonction de la fraction massique pour les différents débits.

En moyenne, les expériences à $\phi = 20\%$ se sont colmatées plus vite ($\sim 300\text{VP}$), ensuite celles à $\phi = 10\%$ un peu plus tard ($\sim 500\text{VP}$) puis à la fin celles à $\phi = 30\%$ ($\sim 700\text{VP}$). Entre $\phi = 10\%$ et $\phi = 20\%$ l'ordre du temps de colmatage correspond à celui avec lequel on peut s'attendre. Mais la suspension à $\phi = 30\%$ ne respecte pas cet ordre. Par rapport au débit, nous pouvons voir que le temps de colmatage ne dépend pas de celui-ci : à $\phi = 10\%$ la vitesse fluctue autour d'une valeur moyenne, à $\phi = 20\%$ elle croît en général et à $\phi = 30\%$ elle est décroît. La figure 5.3b confirme bien cette indépendance au débit.

Sur la figure 5.4a nous traçons la valeur de l'accumulation à la fin de chaque expérience en fonction du débit à fraction massique constante. En comparant la vitesse de colmatage (figure 5.3) et l'accumulation (figure 5.4a), nous pouvons constater que les deux grandeurs

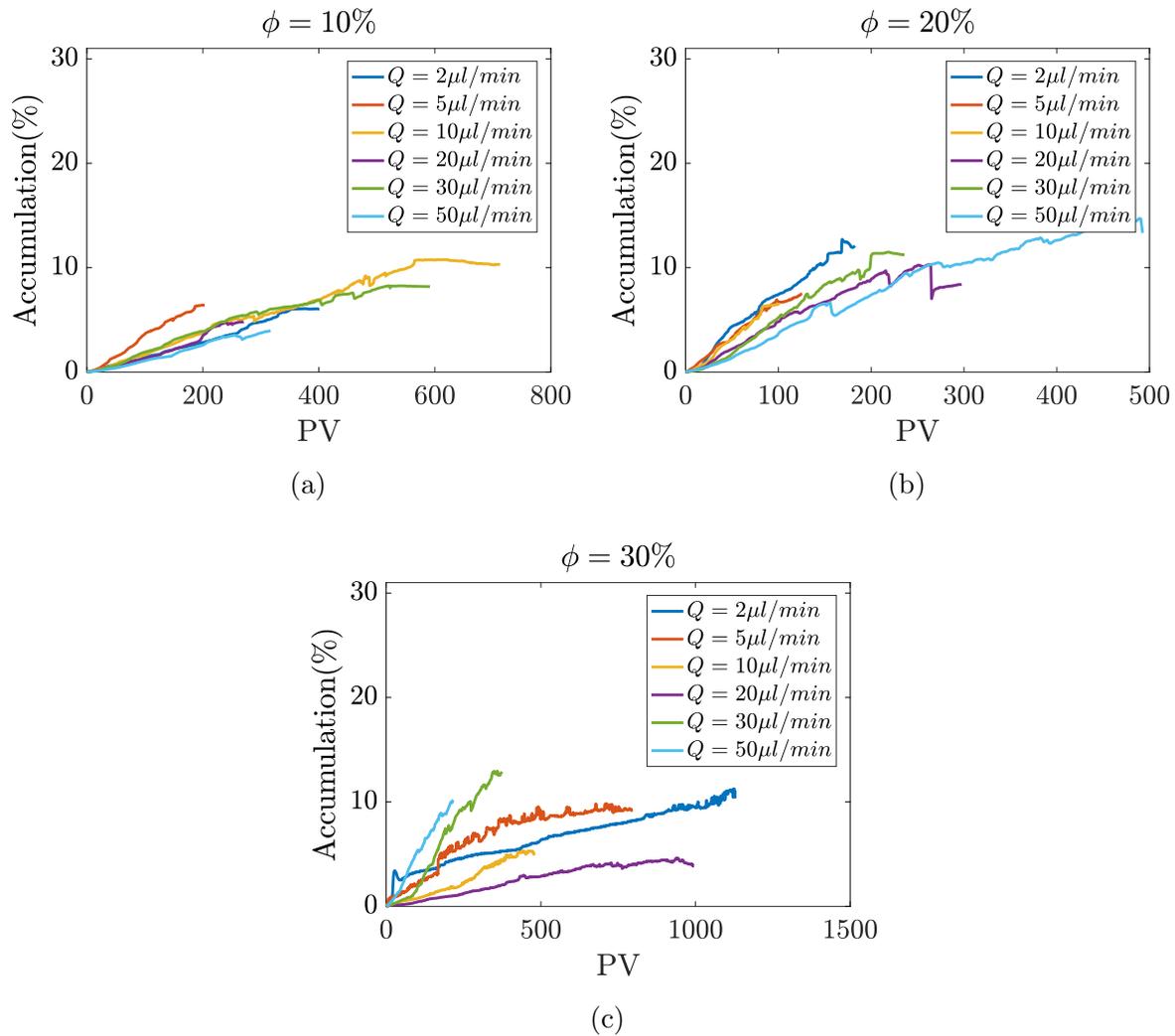


FIGURE 5.2 – a),b) et c) : Évolution de l'accumulation en fonction de VP à différents débits pour une suspension de $6\mu\text{m}$ à $\phi = 10\%$, $\phi = 20\%$ et $\phi = 30\%$ respectivement.

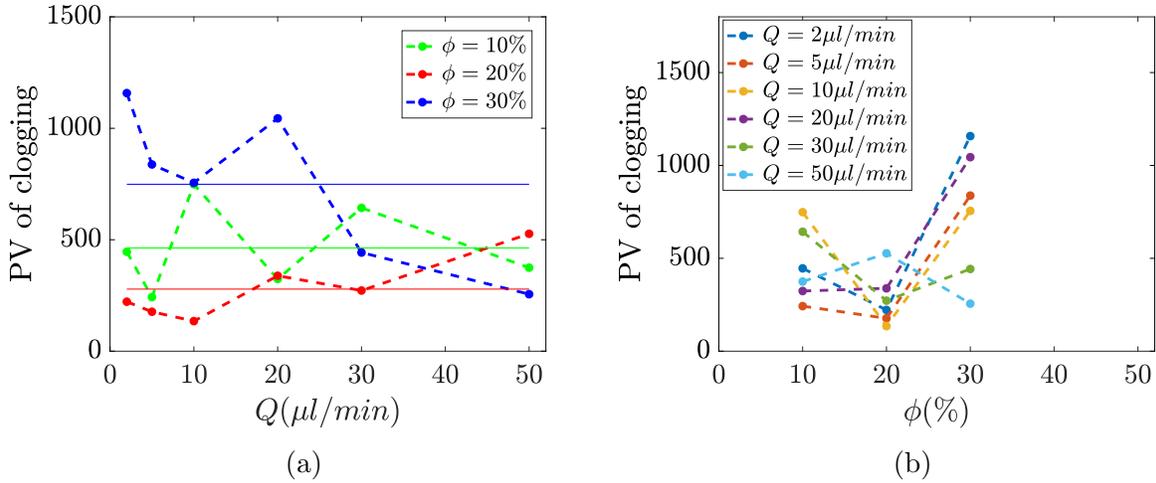


FIGURE 5.3 – a) Temps de colmatage en PV en fonction du débit à différentes fractions massiques. b) Temps de colmatage en PV en fonction de la fraction massique à différents débits.

sont corrélées et ceci rejoint l'observation faite sur la linéarité des courbes d'accumulation de la figure 5.2. Puis pour vérifier si la fraction massique a un effet, nous traçons cette fois-ci sur la figure 5.4b la valeur de l'accumulation à la fin de chaque expérience à débit constant.

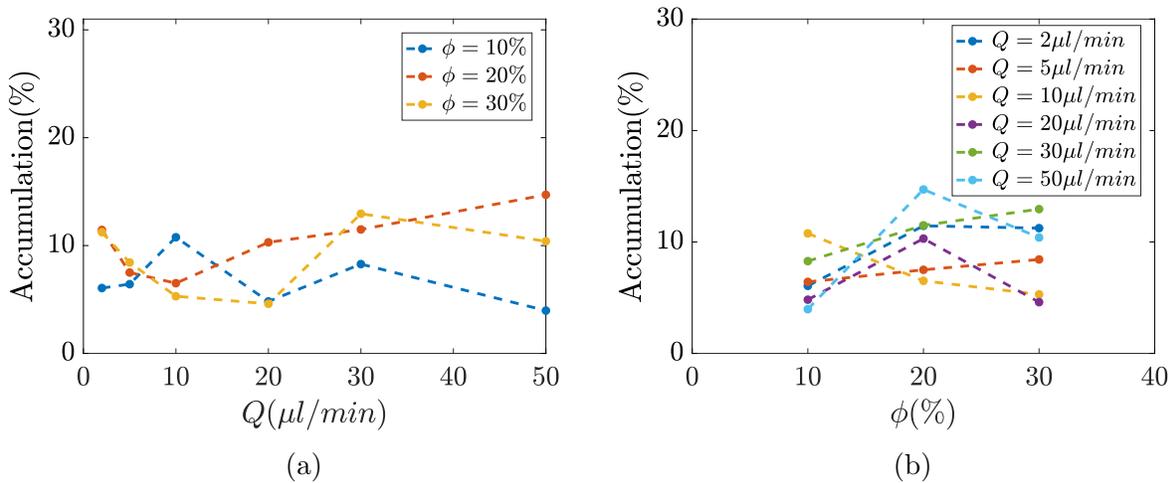


FIGURE 5.4 – a) Évolution de l'accumulation finale en fonction du débit à différentes fractions massiques pour une suspension de $6 \mu\text{m}$. b) Évolution de l'accumulation finale en fonction de la fraction massique à différents débits pour une suspension de $6 \mu\text{m}$.

Nous pouvons remarquer que le constat prouvé dans les deux chapitres précédents qui dit que plus la fraction massique est importante plus l'accumulation est élevée n'est pas valable ici. En effet, la valeur moyenne de l'accumulation est plus élevée à $\phi = 20\%$ puis vient ensuite celle à $\phi = 30\%$ et à la fin celle à $\phi = 10\%$. Dans le cas des suspensions

monodisperses, l'accumulation dépend de la fraction massique vu qu'il y avait un processus continu de construction/destruction des clusters. Et nous avons vu que la vitesse de construction dépend de la fraction massique parce que plus beaucoup de particules arrivent au même temps plus les clusters sont reconstruits rapidement. Par contre comme leur destruction ne dépend pas trop de la fraction massique cela fait que tout le processus va dépendre de la fraction massique. Cet aspect dynamique des clusters est absent dans le cas de suspensions bidisperses, par conséquent il n'y a pas de raison que l'accumulation augmente avec la fraction massique. En fait, dans ce système il va y avoir de temps en temps des grosses particules qui vont boucher quelques pores. À partir de là, des petites particules vont se mettre derrière la grosse et comme le système n'est pas dynamique l'accumulation va augmenter au cours du temps. Et progressivement, il va y avoir de plus en plus de grosses particules qui vont boucher encore plus de pores jusqu'à ce que le milieu va percoler à la fin. Quand nous analysons les cinétiques d'accumulations surtout à $\phi = 10\%$ et 20% , nous nous rendons compte que la pente de l'accumulation est proportionnelle au carré de la fraction massique comme il est montré sur la figure 5.5a. Sur la figure 5.5b nous reportons les courbes d'accumulations pour toutes les fractions massiques en fonction du produit $PV \times \phi^2$ et nous pouvons voir effectivement que les courbes de $\phi = 10\%$ et 20% en vert et en rouge se superposent.

Cette proportionnelle est due à l'existence de deux évènements :

- la probabilité qu'une grosse particule bouche un pore de taille plus petite, est proportionnelle à ϕ
- le fait de construire un cluster de petites particules derrière la grosse, qui est aussi proportionnel à ϕ

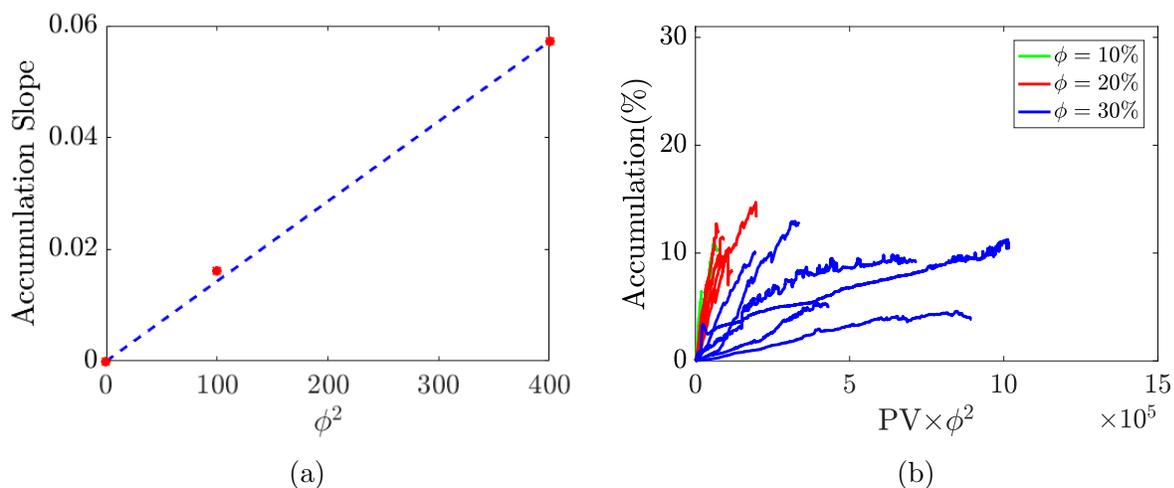


FIGURE 5.5 – a) Pente des courbes d'accumulations en (% par PV) en fonction du carré de la fraction massique ϕ^2 . b) Évolution de l'accumulation en fonction de $PV \times \phi^2$ (toutes les expériences sont reportées sur ce graphe).

Par contre à 30% nous ne retrouvons pas la même chose, les courbes sont trop dispersées et il n'y a pas d'ordre. Dans tout ce que nous avons analysé jusque là, le débit n'a pas d'effet et en passant à 30% l'expérience devient beaucoup moins reproductible et nous constatons une très grande variabilité. Nous verrons dans la suite les différentes hypothèses qui peuvent expliquer cette incompatibilité.

5.3.2 En terme de taille des clusters

Nous reportons sur la figure 5.6 l'évolution des courbes de taille des clusters en fonction du nombre de VP à différents débits pour chacune des fractions massiques. Contrairement

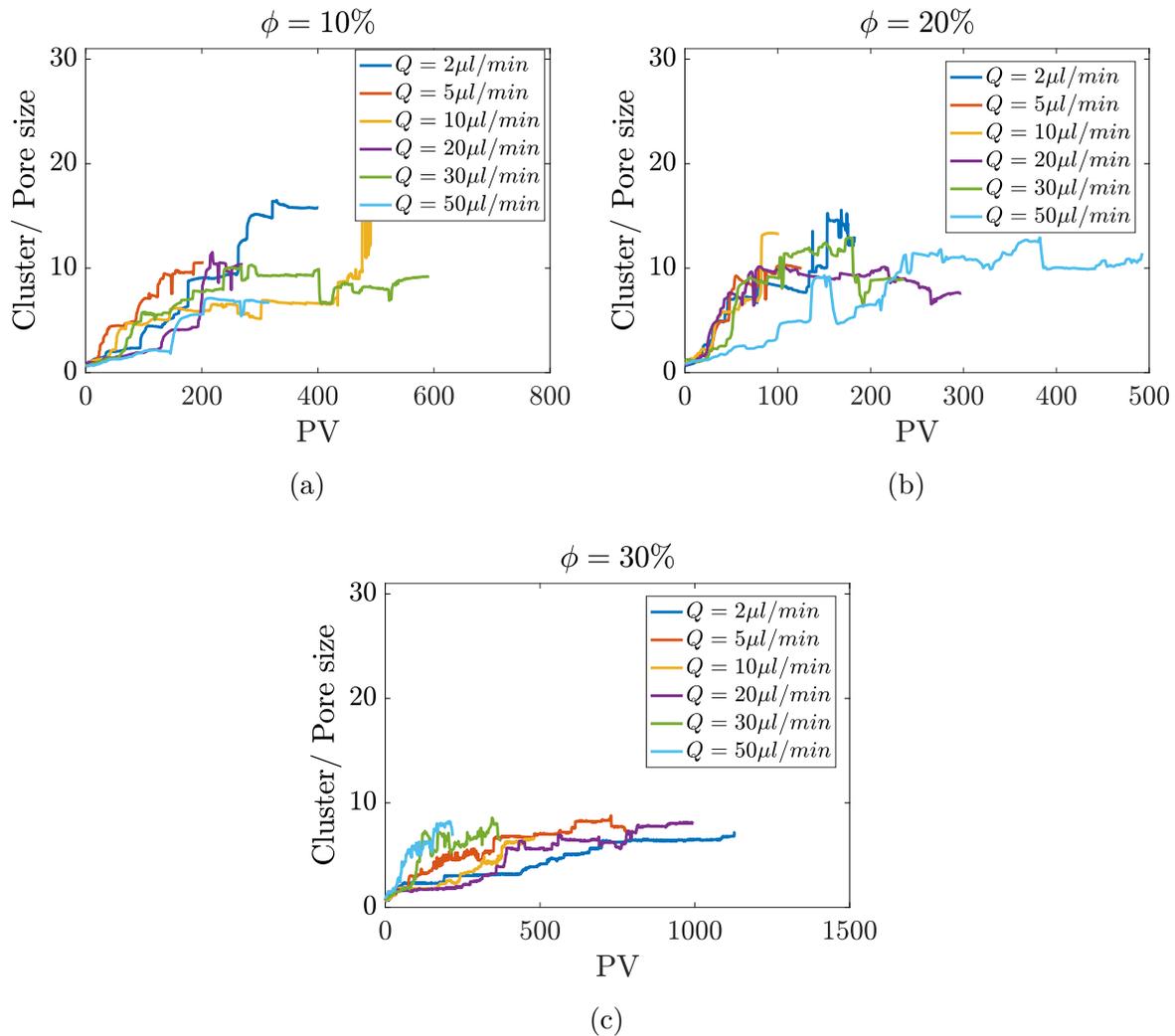


FIGURE 5.6 – a), b) et c) : Évolution du rapport des tailles des clusters sur la taille moyenne des pores en fonction de VP à différents débits pour une suspension de $6 \mu m$ à $\phi = 10\%$, $\phi = 20\%$ et $\phi = 30\%$ respectivement.

aux courbes d'accumulation, les courbes de taille des clusters ne sont pas toutes linéaires,

et prennent la forme de petits escaliers, Ce qui signifie que les clusters restent figés pendant un moment.

Pour illustrer la percolation du milieu en utilisant la taille des clusters, nous prenons un exemple d'une suspension injectée à $\phi = 20\%$ et $Q = 30 \mu\text{l}/\text{min}$ et nous représentons sur la figure 5.7a la surface en mm^2 du plus grande cluster sur chaque image acquise en fonction du nombre de PV.

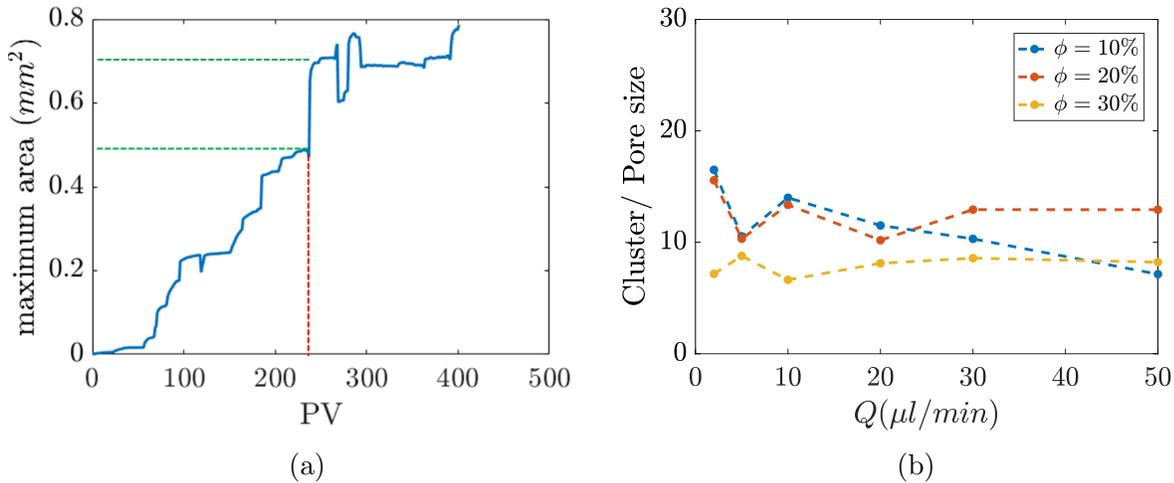


FIGURE 5.7 – a) Aire du plus grand cluster en mm^2 en fonction du nombre de PV pour une suspension de particule injectée à $\phi = 10\%$ et $Q = 30 \mu\text{l}/\text{min}$. b) Évolution de la taille des clusters en fonction du débit à différentes fractions massiques pour une suspension de $6 \mu\text{m}$.

Nous constatons que la surface du plus grand cluster augmente jusqu'à un certain moment où le plus grand cluster qui va percoler complètement le milieu se construit. Ici dans cet exemple, l'apparition du plus grand cluster de l'expérience se fait après 236 PV (le trait rouge en pointillés) et nous passons de 0.47mm^2 à 0.74mm^2 (les deux traits verts en pointillés). Ensuite pour évaluer l'effet du débit nous traçons sur la figure 5.7b la valeur du rapport taille Cluster/Pore à la fin de chaque expérience en fonction du débit à fraction massique constante.

5.3.3 En terme de centre de masse des clusters

Le centre de masse des clusters est important dans le sens où il permet d'avoir une idée sur la dispersion des clusters dans le milieu ainsi que leur niveau de pénétration. Nous reportons sur la figure 5.8 l'évolution des courbes des centres de masse des clusters en fonction du nombre de VP à différents débits pour chacune des fractions massiques. la valeur 0 correspond à l'entrée du milieu et la valeur 1 à la sortie du milieu poreux (uniquement la partie poreuse et sans considérer ni les pattes ni les piscines). Nous nous

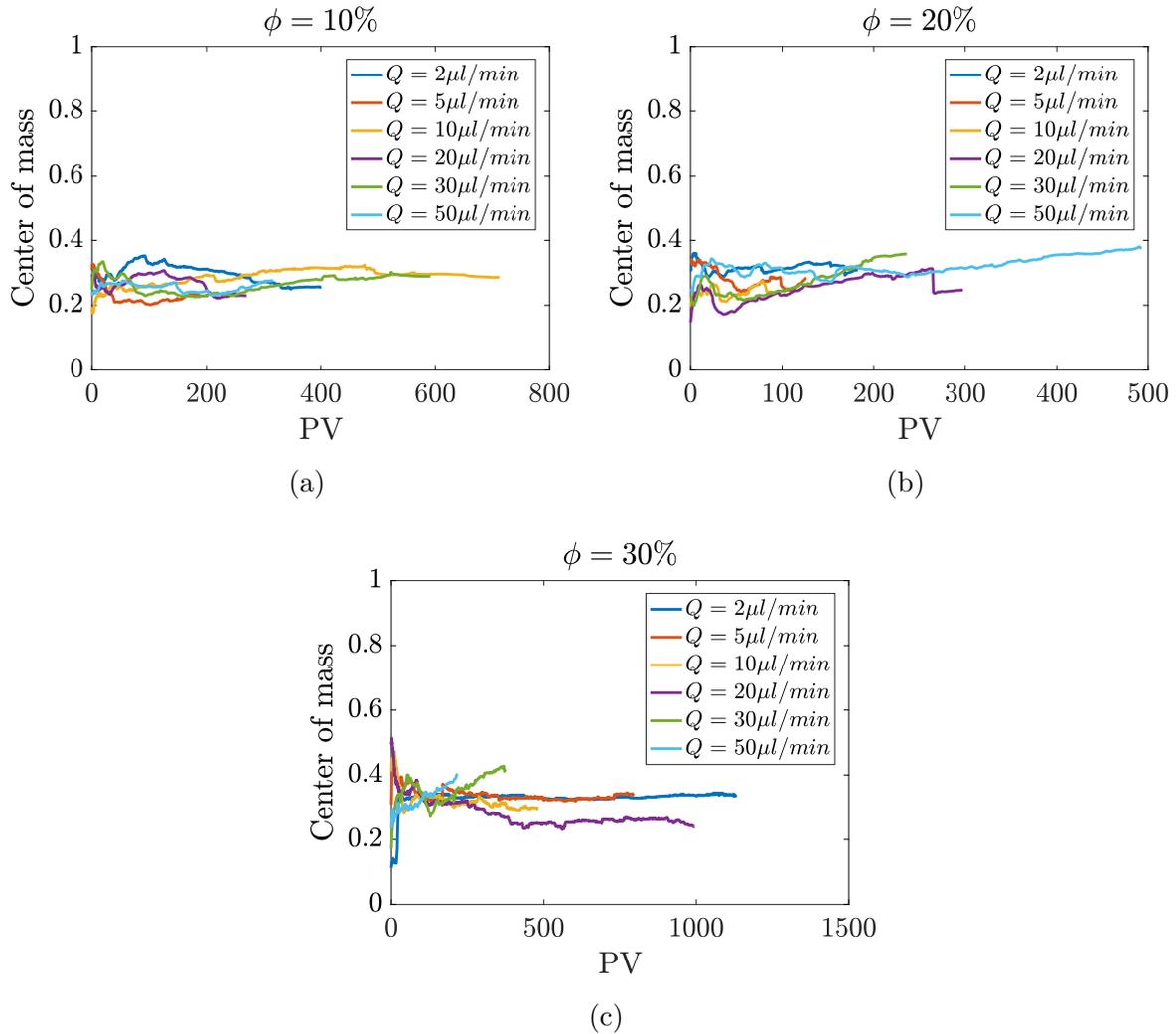


FIGURE 5.8 – a),b) et c) : Évolution des centres de masse des clusters en fonction de VP à différents débits pour une suspension de $6 \mu\text{m}$ à $\phi = 10\%$, 20% et 30% respectivement.

apercevons que le centre de masse ne dépend pas du débit par contre pour chaque fraction massique les courbes tendant à converger vers une valeur généralement située entre 0.2 et 0.4. Pour illustrer où est ce que la majorité des clusters est située et voir de près leur niveau de pénétration, nous reportons sur la figure 5.9 une séquence d'image d'un exemple d'une expérience réalisée à $\phi = 20\%$ et $Q = 30 \mu l/min$.

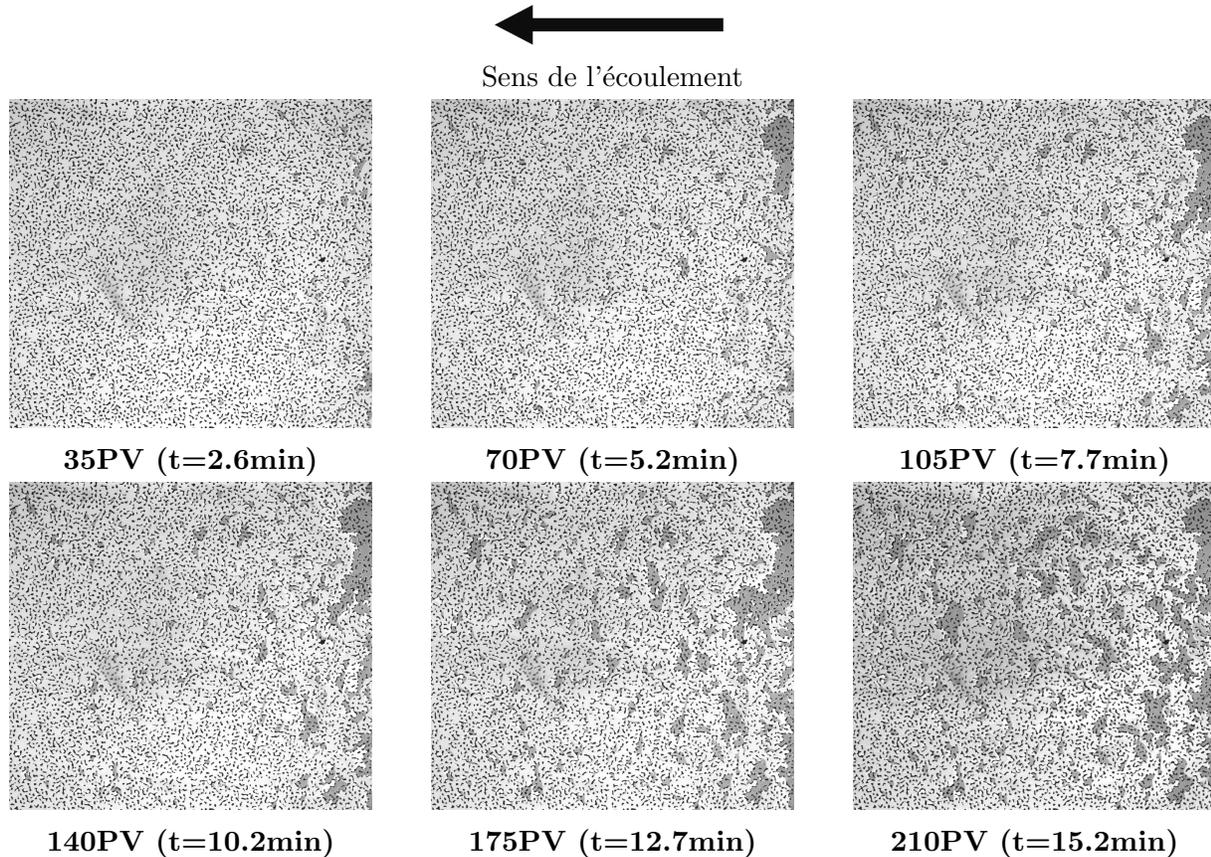


FIGURE 5.9 – Séquence d'images du milieu poreux lors de l'injection d'une suspension de particules bidisperses ($D_{par} = 6 \mu m$) à $\phi = 20\%$ et $Q = 30 \mu l/min$. Les images sont prises après l'injection de : 35 VP, 70VP, 105VP, 140VP, 175VP et 210VP.

Cet exemple confirme bien le fait que le centre de masse est situé au niveau du premier quart du milieu poreux et nous pouvons voir que la plupart des cluster se construisent près de l'entrée.

5.4 Comparaison avec la suspension monodisperse

Nous avons vu, sur les diagrammes de phase 5.1 que la présence d'une portion de 0.124% de grosses particules était suffisante pour conduire au colmatage du milieu de façon systématique.

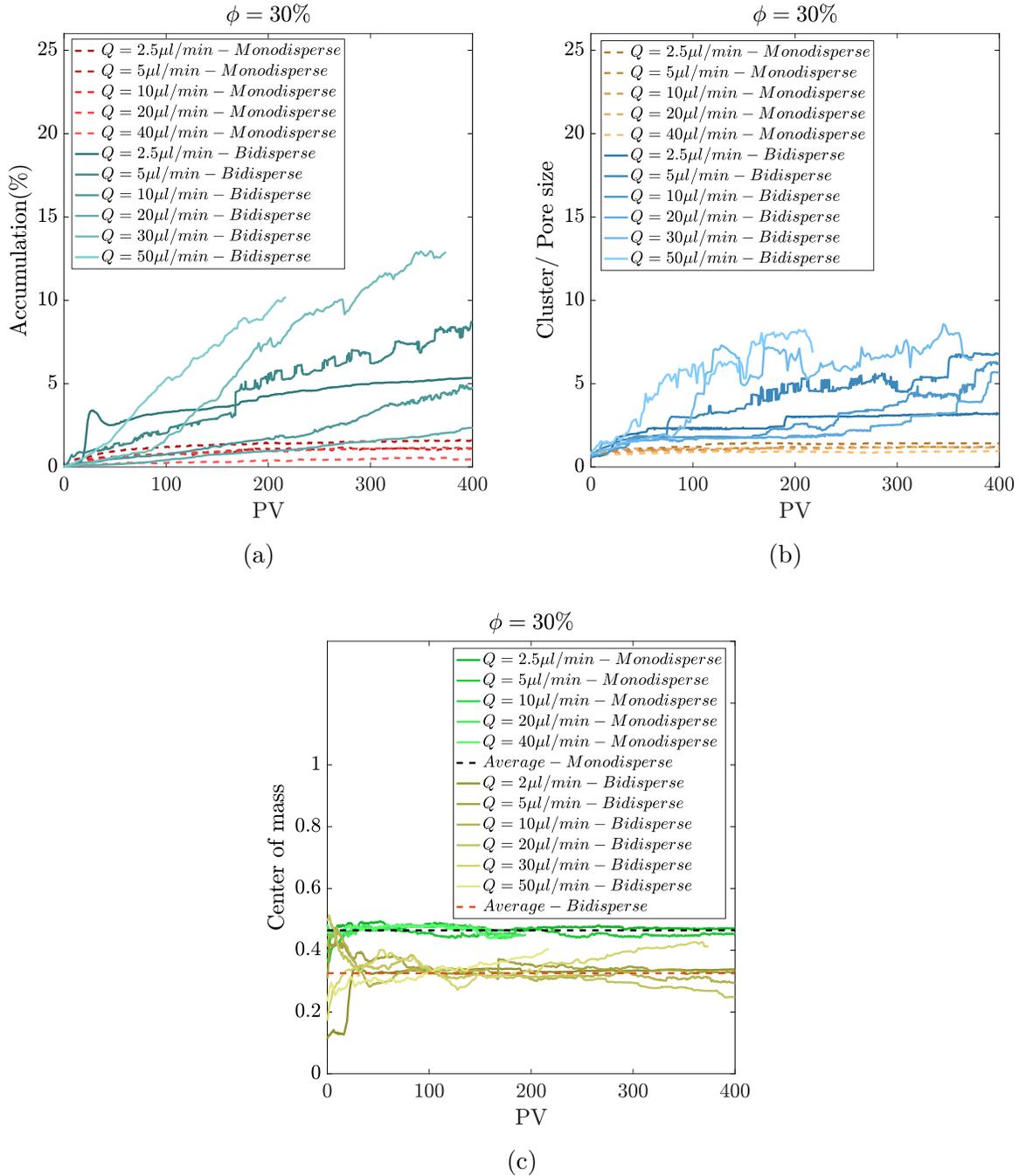


FIGURE 5.10 – Comparaison entre les écoulements de suspensions en particules monodisperses et bidisperses à $\phi = 30\%$. a) : évolution de l'accumulation, b) : évolution du rapport des tailles des clusters sur la taille moyenne des pores, c) : évolution des centres de masse en fonction de VP à différents débits.

Pour quantifier ceci, nous allons nous intéresser à la fraction massique $\phi = 30\%$ et comparer l'accumulation, la taille des clusters ainsi que les centres de masse entre l'écoulement des suspensions des particules monodisperses et bidisperses.

La figure 5.10c montre que les particules monodisperses pénètrent plus dans le milieu poreux. La valeur moyenne du centre de masse dans le cas monodisperse est 0.47, c'est presque le centre du milieu poreux alors que la valeur dans le cas bidisperse est de 0.33. Ce constat est intuitif vu que dans le cas bidisperse le mécanisme de tamisage (exclusion géométrique) se rajoute et augmente la probabilité d'empêcher les particules d'avancer vers la sortie du milieu poreux, et donc les clusters vont plutôt se construire près de l'entrée. En ce qui concerne l'accumulation et les tailles des clusters, nous pouvons clairement voir qu'elles ont des valeurs plus élevées dans le cas bidisperse tout d'abord parce qu'il s'agit d'un régime de colmatage, en plus les deux mécanismes (pontage et tamisage) se combinant augmentent la probabilité de former des bouchons et chaque fois qu'un blocage se produit dans un pore donné les particules s'accumulent pour former un cluster.

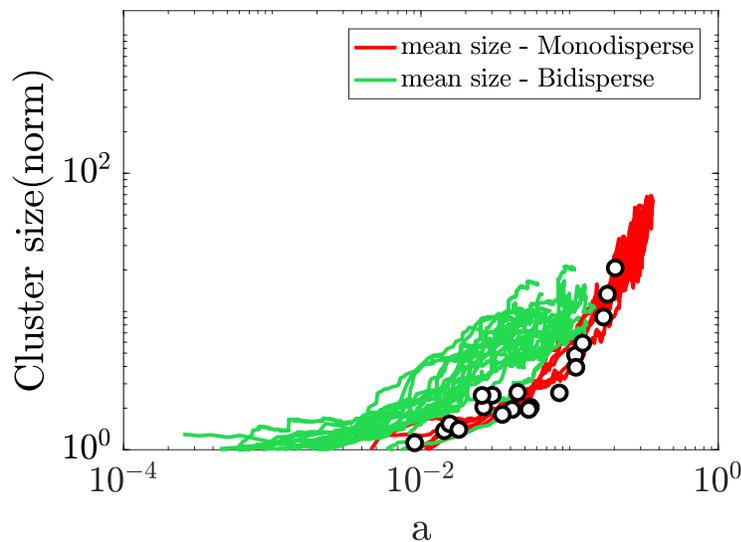


FIGURE 5.11 – Pour des conditions de colmatage (lignes continues) et pour des conditions sans colmatage (cercles, une valeur par expérience pendant l'état pseudo-stationnaire), taille de clusters en fonction de l'accumulation a . Les courbes rouges correspondent au cas monodisperse et les courbes vertes au cas bidisperse.

L'accumulation dans le cas bidisperse peut aller jusqu'à plus de 10% en moins de 400VP de suspension injectée alors que dans le cas monodisperse elle ne dépasse pas 3%. La même chose pour la taille des clusters : dans le cas bidisperse les clusters peuvent avoir une taille équivalente à 10 fois la taille moyenne des pores au bout de 400VP, cependant dans le cas monodisperse les clusters ne dépassent pas 3 fois la taille moyenne des pores. Pour finir, nous avons vu dans les expériences à débit imposé pour les suspensions mo-

nodisperses qu'il est possible de corrélérer de manière compréhensive (via la théorie de la percolation) la quantité de particules accumulées avec les caractéristiques morphologiques (taille notamment) des clusters. Pour voir si c'est le cas pour les suspensions bidisperses, nous comparons les courbes de taille des clusters de celles-ci (suspensions bidisperses) en fonction de l'accumulation a (pas en pourcentage) avec le cas monodisperse (cf figure 5.11).

Nous constatons que les courbes ne se superposent pas, ce qui veut dire que le coefficient de corrélation change. À la même valeur d'accumulation les clusters dans le cas bidisperse sont plus grandes.

5.5 Conclusion et discussion

Nous avons vu dans le troisième chapitre que le mécanisme principal qui pilote le colmatage dans notre milieu poreux modèle est le pontage. Dans ce chapitre nous avons rajouté un autre mécanisme qui est le tamisage ou l'exclusion géométrique mais nous sommes restés toujours dans le cadre du colmatage géométrique dans lequel les interactions physico-chimiques (interactions particule/particule ou particule/mur) ne sont pas mises en oeuvre. L'idée est de faire écouler des suspensions de particules bidisperses qui sont composées majoritairement (99.876%) de particules monodisperses de $6 \mu m$ qui, injectées seules, ne conduisent jamais au colmatage et d'un pourcentage de 0.124% de particules de taille $\sim 30 \mu m$ proche de la taille moyenne des pores. Bizarrement, ce pourcentage négligeable de grosses particules était suffisant pour conduire à un colmatage systématique alors qu'avec les particules monodisperses le colmatage n'a jamais eu lieu quelque soit les conditions d'injection. Les résultats ont montré qu'aucune des trois variables mesurés (accumulation, taille et centre de masse des clusters) ne dépend du débit, et ceci rejoint les résultats des autres chapitres dans lesquels nous avons montré que l'effet du débit est très faible. Par contre ce qui est différent de la partie des suspensions monodisperses c'est le fait que l'accumulation et la taille des clusters ne dépendent pas de la fraction massique. Dans le cas monodisperse, la dépendance de la fraction massique est liée à la dynamique des clusters et leur processus de construction/destruction vu que plus beaucoup de particules arrivent au même temps plus les clusters sont reconstruits rapidement. En revanche, la destruction ne dépend pas de la fraction massique mais plutôt des perturbations de l'écoulement qui déstabilisent les ponts, et donc le processus en entier dépendra de la concentration. Dans le cas bidisperse, cette dynamique est absente puisqu'une fois les grosses particules bouchent les pores ayant des tailles plus petites que leurs tailles, elles restent figées et les petites particules arrivent, se mettent derrière et construisent les clusters. Au fur et à mesure, il va y avoir de plus en plus de grosses particules qui vont boucher encore plus de pores jusqu'à ce que le milieu percole complètement. Dans l'analyse de l'impact de la présence de grosses particules dans la suspension que ce soit

sur le régime de colmatage ou sur les différentes variables sur lesquelles nous nous sommes basées dans notre étude du phénomène de colmatage (accumulation, taille des clusters), il faut distinguer entre les fractions massiques 10% et 20% d'un côté et 30% de l'autre côté. En effet, les résultats de 10% et 20% semblent cohérentes avec les explications données et correspondent bien à ce qui était attendu, entre autre le fait que la pente de l'accumulation soit proportionnelle au carré de la fraction massique. Cette proportionnalité est tout a fait normal vu qu'elle résulte de deux évènements : le premier est que la probabilité de boucher un pore par une grosse particule est proportionnel à la fraction massique et le deuxième est que le fait de construire un cluster de petites particules derrière la grosse est aussi proportionnel à ϕ .

En revanche lorsque nous passons à l'accumulation et la taille des clusters, les conclusions faites sur les suspensions à 10% et 20% ne sont pas du tout valables pour le cas de $\phi = 30\%$, c'est-à-dire qu'il y a des choses qui se passent pour cette fraction massique allant de la non reproductibilité des expériences et la variabilité des résultats. Avec ces résultats, nous ne serons pas capables d'aller plus loin que d'avoir une discussion hypothétique sur ce qui se passe à 30%. Les hypothèses que nous pouvons avancer sont les suivantes :

- l'utilisation des particules tel qu'elles sont fournies par le fabricant fait que la maîtrise de la quantité des grosses particules soit moins bonne malgré la caractérisation faite.
- peut être à $\phi = 30\%$ nous avons des effets de ségrégation dans l'injection qui commencent à être importante. Et là plusieurs questions se posent : Est ce que à 30% nous aurons autant de grosses particules ? Est ce que les grosses sont disposées de façon homogènes dans le pot fourni par le fabricant ?
- peut être à un moment donné nous retrouvons un peu des effets des suspensions monodisperses, c'est-à-dire pour une raison mal maîtrisée les clusters se cassent un peu à $\phi = 30\%$. Parce que depuis le début ce que nous avons avancé c'est que les grosses particules bouchent les pores puis les petites arrivent derrière pour construire les clusters, mais il pourrait y avoir quand même des situations où les pores sont bouchés par pontage. Ceci est possible lorsqu'une grosse particule arrive simultanément avec d'autres petites particules sur un seul pore et forme un arche.
- peut être il pourrait y avoir des effets de margination, à savoir la présence de petites particules relativement concentrées peuvent envoyer les grosses particules sur des lignes de courant où les taux de cisaillement sont plus faibles.
- l'aspect aléatoire du milieu rend les choses plus complexes dans le sens où il se trouve que des grosses particules aient la possibilité de pénétrer plus dans le milieu parce qu'elles n'ont pas rencontré des diamètres de pores inférieurs à leurs tailles, alors que d'autres sont bloquées dès l'entrée. Ce point a été observé dans plusieurs expériences. La figure 5.12 est un exemple illustrant la présence de grosses particules vers la sortie du milieu, ce qui montre que celles-ci ont pu, malgré leur taille,

parcourir une grande partie du milieu sans qu'elles soient bloquées. En parlant toujours de l'effet de la fraction massique, nous avons constaté qu'en terme de centre de masse cet effet est apparu de façon très claire. En fait, plus la fraction massique est importante plus les clusters pénètrent dans le milieu (la valeur du centre de masse est élevée), ce qui est tout à fait attendu vu que la probabilité de bloquer des pores augmentent avec la fraction massique, peu importe la cause du blocage (pontage ou tamisage ou les deux au même temps). Puis à la fin, nous avons comparé entre les résultats des trois grandeurs étudiées dans le cas monodisperse et bidisperse. Toutes les trois avaient des valeurs plus élevées dans le cas bidisperse. L'accumulation et la taille des clusters du cas bidisperse sont plus grandes au moins trois fois ($\times 3$) que celles du cas monodisperse. Le centre de masse est passé du tiers du milieu poreux (0.32) au centre (0.47). Pour conclure, nous avons vu que la présence des particules de taille équivalente ou un peu plus petit que la taille des pores, même avec une très faible proportion ($\leq 1\%$) peut changer complètement le régime et la dynamique de colmatage.

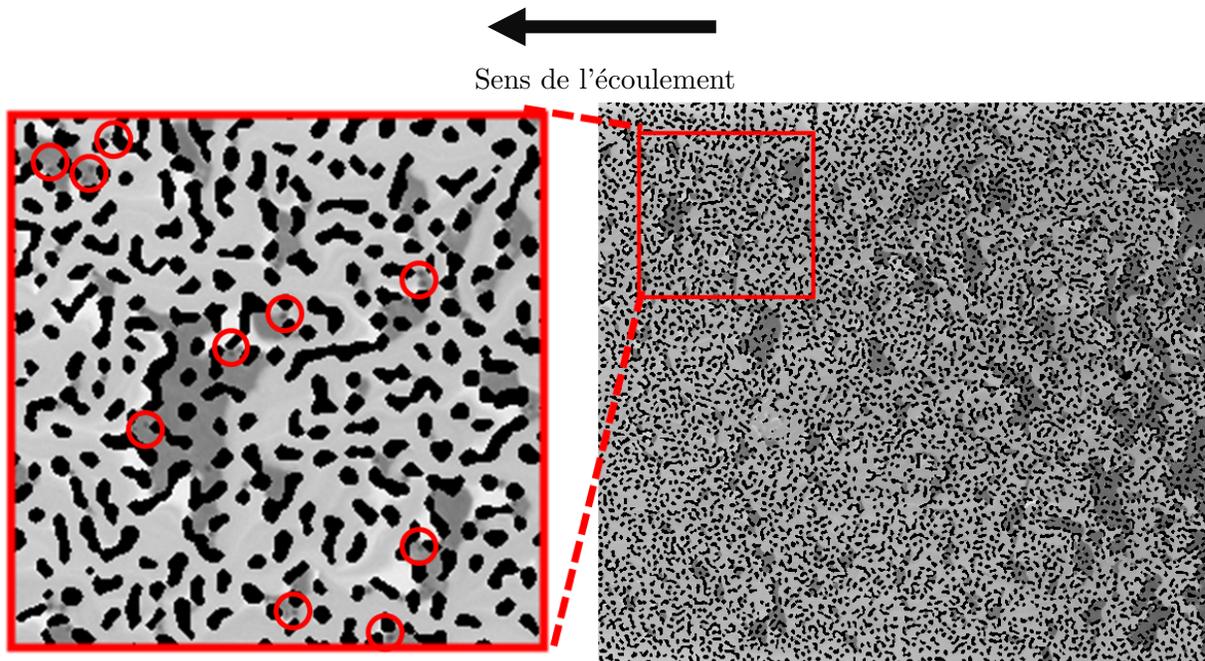


FIGURE 5.12 – Image du milieu poreux lors de l'écoulement d'une suspension de particules de $6 \mu m$. À gauche : focus sur des grosses particules dans le milieu poreux sur le carré en rouge.

Conclusion

Bilan

L'objectif initial de cette thèse était d'étudier le colmatage d'un milieu poreux modèle par un écoulement de suspension de particules rigides. Les technologies de microfabrication ont permis de fabriquer un dispositif microfluidique composé d'un milieu poreux modèle 2D désordonné.

Le phénomène de colmatage a été l'objet de plusieurs études qui ont essayé de comprendre, à l'échelle de pore, les différents mécanismes qui empêchent le transport des particules dans les géométries confinées. Trois principaux mécanismes ont été identifiés : deux mécanismes géométriques, à savoir le tamisage et le pontage et un mécanisme non-géométrique lié aux interactions paroi/particule et particule/particule. Dans ce travail nous nous sommes intéressés aux mécanismes géométriques, et nous avons comme objectif d'évaluer comment ceux-ci peuvent s'étendre à une échelle plus large. Nous avons effectué une étude détaillée, dans laquelle nous avons varié les paramètres expérimentaux suivants : la taille de particules, la fraction massique et le débit. Nous avons observé deux régimes d'écoulement, à savoir un régime de non-colmatage dans lequel un pseudo-état d'équilibre, en terme de pression et d'accumulation, est atteint et un régime de colmatage dans lequel le milieu fini par percoler lorsque les particules s'accumulent à l'entrée du dispositif. Le régime obtenu dépend essentiellement du rapport taille particules/taille moyenne des pores. Nous avons pu retrouver les mêmes rapports qui permettent de passer d'un régime à autre à l'échelle de pores. Ainsi nous avons conclu que sur cet aspect de taille des particules les mécanismes de colmatage s'étendent à l'échelle du milieu poreux. Puis pour une certaine taille de particule, pour laquelle le mécanisme prépondérant est le pontage, nous constatons que le colmatage dépend également de la fraction massique. L'influence du débit quant à elle est très faible dans tous les cas. Pour quantifier ces résultats nous avons concentré toute notre étude sur les clusters. Nous avons mesuré quatre variables qui leurs sont associés, à savoir leur accumulation, leur taille, leur centre de masse et leur mobilité. Il s'est avéré que l'accumulation et la taille des clusters sont corrélées. Pour les conditions de non colmatage, les valeurs de ces deux variables augmentent rapidement avec le temps avant d'atteindre un régime où elles n'augmentent que

très lentement et pour les conditions de colmatage elles augmentent rapidement jusqu'à atteindre une valeur pour laquelle les clusters percolent à travers le milieu. Ces deux variables prennent des valeurs importantes dans la transition entre le régime de colmatage et non colmatage. En ce qui concerne le centre de masse, ce qui a été constaté c'est qu'à court terme, les clusters se développent à des endroits aléatoires dans le dispositif, mais vers la fin le centre de masse correspond au milieu du milieu poreux. La mobilité, elle, qui traduit la dynamique des clusters n'est jamais nulle, ce qui signifie que les clusters sont dynamiques dans n'importe quelle condition d'injection. Dans la zone de transition (passage du régime de non colmatage au régime de colmatage) les clusters sont beaucoup plus dynamiques qu'ailleurs. L'interprétation de tout ce que nous avons vu jusque là c'est qu'il y a une concurrence entre deux mécanismes : d'une part la formation de ponts qui dépend fortement de la fraction massique des particules car plus la concentration est élevée, plus la probabilité de construire une arche rapidement est grande et d'autre part la destruction des ponts due à la déstabilisation provoquée par les clusters derrière et à la perturbation des lignes de courant en amont de ceux-ci. Cette interprétation fait intervenir la fraction volumique des particules, ce qui est cohérent avec la forte influence de la fraction massique des particules.

Ensuite, vu le rôle important du mécanisme de formation/destruction des ponts et que la destruction est influencée par les perturbations de l'écoulement, nous avons choisi d'évaluer l'effet d'un écoulement non-stationnaire sur le colmatage. Pour ce faire nous avons appliqué des signaux carrés périodiques de pression et nous avons conclu que dans le régime de non colmatage la pression périodique permet de réduire jusqu'à 50% l'accumulation et la taille des clusters. Dans la transition près du colmatage, elle permet, au delà de la fréquence caractéristique qui correspond au temps mis par une particule pour traverser un cluster, d'éliminer de façon définitive le colmatage et de réduire également l'accumulation et la taille des clusters jusqu'à 80% par rapport aux expériences colmatées. Dans le régime de colmatage, la pression périodique permet de retarder le colmatage. Nous avons pu vérifier que l'accumulation et la taille diminuent avec l'amplitude et qu'elles atteignent des états stationnaires, ce qui va permettre d'avoir des états de colmatage robustes et reproductibles pour mener à bien des études de décolmatage par injection du fluide suspendant.

Enfin, Nous avons traité un autre aspect lié à la modification d'une des caractéristiques de la suspension. En fait, nous avons utilisé une suspension de particules bidisperses composée majoritairement (99.876%) de particules monodisperses de 6 μm qui, injectées seules, ne conduisent jamais au colmatage et d'un pourcentage de 0.124% de particules de taille $\sim 30 \mu\text{m}$ proche de la taille moyenne des pores. Nous constatons que ce pourcentage négligeable de grosses particules était suffisant pour conduire à un colmatage systématique. Une comparaison a été établie entre les suspensions monodisperses et bidisperses, et il a été vérifié que dans les deux cas l'effet du débit est quasiment absent,

quant à la fraction massique, elle, a un effet sur les suspensions monodisperses mais pas sur les bidisperses. En effet, dans le cas monodisperse, cette dépendance est liée à la dynamique des clusters et leur processus de construction/destruction, alors que dans le cas bidisperse, cette dynamique est absente puisqu'une fois les grosses particules bouchent les pores, elles restent figées et les petites particules construisent des clusters derrière. Nous avons effectué l'étude sur trois fractions massiques à différents débits et nous avons identifié deux comportements : le premier lié aux fractions 10% et 20% et le deuxième correspond à 30%. Les résultats de 10% et 20% semblent cohérentes avec les explications données et correspondent bien à ce qui était attendu, entre autre la proportionnalité de la pente de l'accumulation au carré de la fraction massique. Cette proportionnalité qui résulte de deux événements : le premier est que la probabilité de boucher un pore par une grosse particule est proportionnel à la fraction massique et le deuxième est que le fait de construire un cluster de petites particules derrière la grosse est aussi proportionnel à ϕ . En revanche, les résultats de 30%, ne sont pas cohérentes et présentent des comportements incompréhensibles traduits par la non reproductibilité et la variabilité assez importante des résultats. Nous avons proposé une discussion hypothétique axée essentiellement sur la possibilité de présence des effets de ségrégation dans l'injection, l'effet de la combinaison du pontage et du tamisage à la fois au lieu du tamisage uniquement, ou des effets de margination (les petites particules peuvent envoyer les grosses particules sur des lignes de courant où les taux de cisaillement sont plus faibles) etc...

Perspectives

Les perspectives de ce travail sont nombreuses. D'une part les résultats obtenus soulèvent de nombreuses questions et de nombreuses interprétations proposées à ce stade restent conjecturales. D'autres part, quelques extensions de ce travail nous semblent pertinentes à proposer. Dans les expériences à débit imposé, nous avons réussi à corrélérer de manière compréhensive (via la théorie de la percolation) la quantité de particules accumulées avec les caractéristiques morphologiques (taille notamment) des clusters. Mais cette corrélation ne permet d'interpréter directement la dépendance de ces quantités avec les paramètres expérimentaux que sont le débit et la fraction volumique. Le rôle important de la fraction volumique peut être interprété via un équilibre entre une dynamique de croissance et une dynamique de déstabilisation des clusters qui ne dépendraient pas de la même manière de la fraction volumique. Mais il pourrait aussi être interprété en faisant abstraction de cette dynamique via les propriétés rhéologiques de la suspension, et notamment leurs contraintes normales, qui dépendent très fortement de la fraction volumique. Il ne semble pas simple de proposer une approche expérimentale permettant de tester ces possibles interprétations basée sur un micromodèle désordonné comme celui étudié dans cette thèse. Des géométries plus simples devraient être envisagées, et pourraient permettre de caractériser plus directement les aspects dynamiques que nous avons mis en évidence, mais qui sont très complexes dans un micromodèle large et désordonné. Par une toute autres voie, des simulations numériques (de type CFD-DEM par exemple) pourraient encore mieux trancher entre les deux interprétations. Toutefois, pour ce type d'approche, il faudrait certainement réduire les dimensions du système et étudier une géométrie plus simple, dans la mesure où à la fois le nombre de particules ainsi que la quantité gigantesques de particules à injecter impliquerait en gardant la même géométrie des temps de calcul inabordables. Nos interprétations concernant le rôle du débit méritent elles aussi d'être mises à l'épreuve afin de pouvoir trancher. L'hypothèse séduisante qu'un coefficient de frottement entre particules décroissant avec la force normale appliquée pourrait être testé via des expériences d'AFM sur les particules que nous avons étudiées. Les autres hypothèses avancées, à savoir la (légère) déformabilité du PDMS, ainsi que des interactions pas tout à fait négligeables pourraient être testées d'une part en changeant les matériaux utilisés, que ce soit pour le dispositif microfluidique ou pour les particules. Par ailleurs, les contacts frictionnels entre particules jouent certainement un rôle prépondérant dans la croissance et la stabilité des clusters. Travailler avec un système sans frottements (particules répulsives, gouttes) et comparer les résultats apporterait certainement un éclairage intéressant sur cette question. Les expériences en instationnaire, où la pression imposée est périodique restent très mal comprises, bien que l'effet soit assez spectaculaire sur la prévention du colmatage. Ici encore, il est probable qu'une géométrie plus simple permettent d'en apprendre davantage, si toutefois il y est possible d'y reproduire

le phénomène. De même que pour les questions ouvertes précédentes, des simulations numériques paraissent prometteuses pour peu qu'il soit possible de les mener avec des temps de calcul raisonnables. Le régime que nous avons étudié est probablement assez spécifique aux particules monodisperses et sans interactions colloïdales. Nous avons vu que pour des suspensions bidisperses, l'accumulation et le colmatage se manifestaient très différemment. Ceci était finalement assez attendu pour le système considéré puisque les grosses particules étaient de l'ordre de grandeur des pores, voire plus grosses. Il nous semble qu'il serait intéressant de tester des suspensions légèrement polydisperses, afin de se rapprocher de cas plus concrets que le système idéal testé dans cette thèse. Enfin, une perspective intéressante de notre travail expérimental consisterait à faire varier dans le temps non pas la pression mais la fraction volumique des particules injectées. La première question dans ce sens à résoudre est de voir comment l'injection du liquide suspendant sans particules après une étape d'accumulation peut nettoyer le milieu. Des expériences préliminaires sur ce sujet ont déjà été réalisées, mais n'ont pas pu être retranscrites dans ce manuscrit. Nous avons observé qu'effectivement, la vidange du milieu était possible : l'accumulation diminue lorsque qu'on injecte au même débit ou à un débit différent le fluide suspendant sans particule. Toutefois, cette vidange n'est pas complète et des clusters de plus petite taille restent piégés. Un exemple est donnée sur la figure 5.13 :

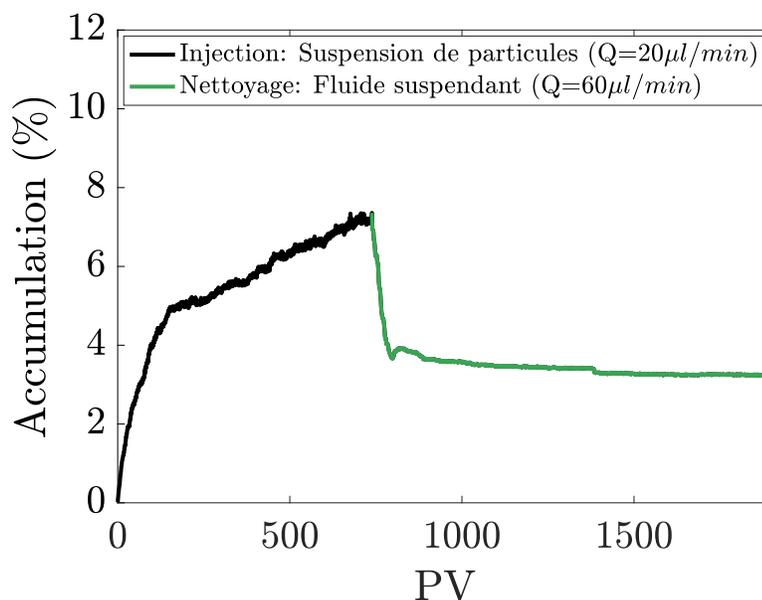


FIGURE 5.13 – Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP. Expérience du nettoyage du milieu poreux par un fluide suspendant : une suspension de particules de 15 μm de fraction massique $\phi = 20\%$ est injectée à un débit $Q = 20\ \mu\text{l}/\text{min}$ pendant environ 740 VP (courbe noire). Ensuite le fluide suspendant est injecté à un débit $Q = 60\ \mu\text{l}/\text{min}$ pendant environ 1150 VP.

Cette expérience est réalisée en injectant une suspension de particules de 15 μm de fraction massique $\phi = 20\%$ à un débit $Q = 20\ \mu\text{l}/\text{min}$ pendant environ 700 VP (courbe noire). Ensuite le fluide suspendant est injecté à un débit $Q = 60\ \mu\text{l}/\text{min}$ pendant environ 1100 VP. L'accumulation au bout de 740 VP atteint une valeur de 7.36% puis à la fin après avoir injecté 1150 VP de fluide suspendant l'accumulation diminue et atteint un pseudo-palier de 3.25%. L'accumulation sur cet exemple a diminué de plus de 65%.

Table des figures

1.1	Exemples de milieux poreux	19
1.2	Quelques structures de milieux poreux [4]	19
1.3	Exemple d'un micromodèle parfaitement régulier [14]	21
1.4	Exemple d'un micromodèle partiellement régulier [15]	22
1.5	Exemple d'un micromodèle présentant des motifs fractals [17]	22
1.6	Exemples des micromodèles présentant des motifs irréguliers [21]	23
1.7	Schéma d'une suspension de particule : le fluide suspendant en gris et les particules en blanc	25
1.8	Schéma simplifié des différents régimes caractérisant la rhéologie des sus- pensions iso-denses de particules rigides	27
1.9	Évolution de la viscosité réduite μ_s en fonction de la fraction solide [30]. Les points de données sans indication de μ_p sont issus de travaux expérimentaux et ceux avec la mention μ_p sont issus de travaux numériques.	28
1.10	Représentation schématique du profil d'interaction de type DLVO [41]	30
1.11	Deux branches de la viscosité : inférieure (lubrifiée, avec un coefficient de friction $\mu_{friction} = 0$) et supérieure (frictionnelle, avec $\mu_{friction} = 1$), avec une flèche indiquant la transition entre la courbe inférieure et la courbe supérieure avec l'augmentation du taux de cisaillement. [44]	31

1.12 a)(respectivement c)) Schémas du processus impliqué dans le premier (respectivement le deuxième) régime d'amincissement par cisaillement. b) La diminution de la fraction volumique effective ϕ_{eff} vers la fraction solide pour les sphères dures ϕ conduit à une augmentation de la distance de la fraction d'emballage proche aléatoire ϕ_{RCP} à laquelle la viscosité diverge pour les particules sans friction, et donc à une diminution de la viscosité de la suspension. d) La diminution du coefficient de frottement microscopique $\mu_{friction}$ conduit à une augmentation de la fraction volumique critique $\phi_m(\mu_{friction})$ à laquelle la viscosité diverge pour la sphère de frottement vers la fraction d'emballage proche aléatoire ϕ_{RCP} . La distance croissante entre la fraction volumique de la suspension ϕ et $\phi_m(\mu_{friction})$ avec l'augmentation de la pression conduit à une diminution de la viscosité de la suspension. [45]	32
1.13 Exemple de schéma d'injection d'une suspension à travers une colonne poreuse horizontale [59]	34
1.14 Schéma explicatif des différents mécanismes se produisant au sein d'un milieu poreux traversé par une suspension de particule [65]	35
1.15 Profils de réduction de perméabilité en fonction du temps, à différents points d'une colonne poreuse pour une condition ionique donnée [65]	35
1.16 Représentation tridimensionnelle d'un volume interne de colonne de dimension $0,6 \times 0,6 \times 1,2$ mm montrant les sphères de verre (bleu) et les dépôts de zircon (rouge) [66]	36
1.17 Schémas représentatifs des différents mécanismes qui induisent au colmatage des canaux à l'échelle de pore. a) Agrégation, b) pontage, c) tamisage	37
1.18 a) Schéma d'installation expérimentale : suspension colloïdale injectée à travers des microcanaux parallèles ($w_c = l_c = 50 \mu m$, $w_s = 10 \mu m$ et $l_s = 20 \mu m$). b) bouchon formé lorsqu'un gros contaminant obstrue un microcanal à l'entrée. c) bouchon formé plus loin à l'intérieur d'un microcanal. [84] . .	38
1.19 a) Vues 3D de particules de polystyrène bloquées entre les grains de verre (milieu poreux). (b) Coupe 2D xy du système : grains en blanc, particules en gris clair.[86]	39
1.20 a)Ponts formés par des grains de 3 mm sur un tamis carré de 5 mm. Un nombre moyen de particules impliquées par pont $n = 2,34$ [87]. b)Pourcentage de blocages par pontage des microcanaux en fonction du rapport $D_{particules}/D_{pore}$ [88].	40

1.21 Séquence d'images d'un canal contenant un col (forme d'un sablier) lors de l'injection d'une suspension dense de particules ($D_{par} = 6 \mu m$) à $Q = 50 \mu l/min$. Les images sont prises après : 4s, 24s, 48s, 96s de l'injection. La largeur du canal est $60 \mu m$ et son épaisseur est de $100 \mu m$ et la largeur de la section au niveau de laquelle l'arche est construite est de $36 \mu m$ 41

1.22 a) Photographie d'une arche formée au-dessus de l'exutoire. R est la longueur (taille) de la sortie et h est la distance entre le bas de l'obstacle et la sortie. Les particules formant l'arche sont indiquées par des croix et les particules formant la base de l'arc sont indiquées par des cercles [95].
 b) Écoulement de moutons à travers un goulot d'étranglement : photo prise près de la porte lors d'un essai réalisé en plaçant un obstacle devant celle-ci [71]. 42

1.23 Illustration schématique de l'appareil de colmatage, représenté en coupe verticale. La trémie (en gris) est cylindrique et suspendue à une balance numérique (en noir). Un orifice de diamètre réglable, D, s'insère dans une dépression de la plaque de fond. Les parois et la plaque de fond sont en polycarbonate, respectivement de 6 et 13 mm d'épaisseur. Les grains en écoulement sont indiqués par un ombrage brunâtre. Le cas sec est identique, sauf que le fluide (bleu clair) est absent. Notez que le sommet de la trémie est ouvert, de sorte qu'il n'y a pas de reflux d'air ou d'eau dans la trémie lorsque les grains sortent.[96] 42

1.24 a) Observation de la capture des particules après un conditionnement du microséparateur avec de l'eau ultrapure (conditions hydrophobes). L'image A a été prise à $t_0 + 1$ min, l'image B à $t_0 + 20$ min, l'image C à $t_0 + 45$ min et l'image D à $t_0 + 90$ min. b) Observation des premières étapes de la capture des particules dans les conditions hydrophobes (image prise 30s après le début de l'expérience de filtration)[99]. 43

1.25 a) Observation de la capture des particules après un conditionnement du microséparateur avec une solution de KCl (conditions hydrophiles). L'image A a été prise à $t_0 + 1$ min (à t_0 , la suspension commence à s'écouler dans les microcanaux), l'image B à $t_0 + 20$ min, l'image C à $t_0 + 45$ min et l'image D à $t_0 + 90$ min. b) Observation des premières étapes de la capture des particules dans les conditions hydrophiles (image prise 60s après le début de l'expérience de filtration)[99]. 44

- 1.26 Images successives du colmatage d'un pore court par des particules de 4 μm . Les images correspondent aux temps suivants : 4, 9, 12, 16, 22,5, 24 min. Chaque minute, 6.8×10^4 particules passent à travers le pore. Les lignes bleues pointillées en c et d correspondent au milieu du pore. a, b Dépôt des premières particules à l'entrée du pore dans les coins. c, d Croissance de deux agrégats sur les côtés opposés du pore, à l'entrée de la moitié du pore. Ces agrégats croissent jusqu'à ce qu'ils fusionnent et bouchent le pore (e, f). Nous avons imposé une pression afin d'obtenir un débit au début de l'expérience égal à 1.6 $\mu\text{l}/\text{min}$. [102] 45
- 1.27 Dépendance de la pression appliquée : Le rapport des canaux bouchés en fonction du temps à différentes pressions appliquées. $\Delta p=2$ psi diamants rouges, $\Delta p=4$ psi cercles bleus. Encart : tracé des mêmes données avec le temps normalisé par la différence de pression relative $\Delta p/\Delta p_0$ ($\Delta p_0=2$ psi). [69] 46
- 1.28 Variation de N^* (le nombre total de particules qui passent à travers un pore avant qu'il ne soit bouché) en fonction de la pression appliquée. Écoulement d'une suspension de particules de 3 μm à travers des pores de taille 21.5 $\mu\text{m} \times 21.5 \mu\text{m}$. [102] 46
- 1.29 Schéma explicatif des forces appliquées sur les particules dans le cas des interactions et sans interactions 47
- 1.30 a) Évolution du temps moyen de colmatage en fonction de la différence de pression à travers le dispositif pour $\phi=0.2\%$. La ligne en pointillés a une pente proportionnelle à $1/\Delta p$. b) Évolution du temps moyen de colmatage en fonction de la fraction volumique des particules ϕ pour $\Delta p=13,8$ kPa où la ligne en pointillés a une pente proportionnelle à $1=\phi$ [84] 48
- 1.31 Colmatage dépendant versus indépendant. (a) Définition du colmatage dépendant. (b) Rapports cumulés de colmatage dépendant et indépendant pour des particules de verre à un débit $Q=40 \mu\text{l}/\text{min}$. Le rapport de colmatage est $\sum \Delta N/N_{ava}$ où ΔN est le nombre incrémental de constriction de pores colmatées et N_{ava} est le nombre de constriction de pores ouvertes. 50
- 1.32 (a) Vue de dessus d'un cluster à la fin de la simulation numérique. Les petites particules en rouge sont les particules piégées. (b) Variation de la proportion de particules en interaction et de particules piégées en fonction de ϕ pour un coefficient de friction de 0.3. 51
- 1.33 Profil de la fraction volumique des particules dans un écoulement de Poiseuille 51
- 1.34 Viscosités normales issues d'expériences de cisaillement simple en fonction de ϕ/ϕ_m [111] 52

2.1	Masque du milieu poreux modèle utilisé. En blanc sont représentées les zones de circulations du fluide et des particules. En noir sont représentés les murs et les plots	56
2.2	a) Histogramme des piliers. b) Histogramme des pores.	56
2.3	Évolution du front d'injection lors de la pénétration du fluide dans le milieu poreux	57
2.4	a) Réseau d'injection : pattes arborescentes en 2^p . b) Masque entier comprenant huit milieux poreux modèles. En blanc sont représentées les zones de circulations du fluide et des particules. En noir sont représentées les murs et les plots	57
2.5	Schéma du procédé de fabrication d'un moule par photolithographie : a) préparation du wafer, b) dépôt d'une couche de résine sur le wafer, c) pré-bake de la résine pour évaporer le solvant d) insolation, e) développement et traitement hydrophobe	58
2.6	Image du moule. a) Moule fabriqué par photolithographie sur un wafer de silicium de 4 pouces de diamètre et $500 \mu m$ d'épaisseur. b) Focus sur une partie du moule (surface des trous) utilisant un objectif $\times 20$,	59
2.7	Procédé de fabrication de la puce microfluidique à partir d'un moule	59
2.8	Puce microfluidique fabriquée	60
2.9	Image en lumière blanche d'une suspension en particule de $6 \mu m$ non iso-indice de réfraction en écoulement à travers le milieu. L'image est capturée à la fin de l'expérience après colmatage. En noir, sont représentés les clusters. Le sens de l'écoulement est de la droite vers la gauche.	61
2.10	Illustration du principe d'observation de la suspension. a) Image fluorescente d'une portion d'un milieu poreux dans lequel est injecté une suspension de particules de $6 \mu m$ de diamètre. En noir Les plots sont en noir, la suspension en gris clair et les clusters en gris foncé. b) La même image que celle de gauche, en lumière blanche.	62
2.11	Colmatage par filtration de grosses particules. a) Image d'une partie de l'entrée du milieu poreux lors de l'écoulement d'une suspension de particules de $6 \mu m$ de diamètre théorique avant tamisage. b) Focus sur des grosses particules dans le milieu poreux sur le carré en rouge de la figure a)	63
2.12	a) Image microscope d'un ensemble de particules de PMMA non tamisées de $15 \mu m$ de diamètre sur une lame de verre avec un objectif de grossissement de $\times 15$, en jaune quatre grosses particules détectées. b) Focus sur le carré en rouge de la figure a) à gauche; c) image résultante du traitement de la figure b) en bleu les contours définissant les particules détectées pour calculer leur nombre.	64

2.13	a) Tamis en nylon (Nytal) d'un diamètre de maille faisant $20 \mu m$. b) Image microscope d'un tamis en nylon ; focus sur quelques mailles de $16 \mu m$ de diamètre	65
2.14	Agitateur Vortex utilisé dans le processus de tamisage	65
2.15	a) Image microscope d'un ensemble de particules de PMMA tamisées de $15 \mu m$ de diamètre sur une lame de verre avec un objectif de grossissement de $\times 30$, b) Résultat du traitement effectué pour détecter les diamètres des particules sur la figure a) à gauche ; en rouge les contours définissant les diamètres pour effectuer la distribution de taille.	66
2.16	Distribution de taille des particules de PMMA de $15 \mu m$ de diamètre, pour un échantillon tamisé	66
2.17	Viscosité de la suspension en fonction de la concentration des particules à $25^\circ C$. La courbe rouge représente les mesures expérimentales de viscosité pour un taux de cisaillement de $30 s^{-1}$. La courbe bleue représente la viscosité d'une suspension se comportant comme un fluide, comme il a été décrit par Zarraga et al [34] dans l'équation 2.2.	70
2.18	Calibration : Rapport entre l'intensité lumineuse et le temps d'exposition en fonction de la concentration massique des particules, pour un ensemble d'images capturées en lumière en blanche pour des suspensions de particules injectées dans un canal droit.	71
2.19	Images de suspensions de particules de $6 \mu m$ dans l'eau injectées dans un canal droit pour la calibration en lumière blanche. a) $\phi = 5\%$, b) $\phi = 10\%$, c) $\phi = 15\%$, d) $\phi = 20\%$, e) $\phi = 25\%$	72
2.20	Système optique d'un microscope à fluorescence : la lumière provenant de la source traverse d'abord le filtre d'excitation qui ne laisse passer que les longueurs d'ondes de la bande d'absorption. Ensuite, le faisceau est réfléchi grâce au miroir dichroïque vers l'échantillon à exciter qui émet de la fluorescence. Cette dernière traverse le miroir vers le filtre d'émission qui sélectionne les longueurs d'ondes cibles vers le détecteur.	73
2.21	a) Spectre d'absorption (de la lumière incidente) de la rhodamine-B. b) Spectre d'émission de fluorescence [122]	74
2.22	Transmission en fonction des longueurs d'ondes pour le spectre d'excitation (en bleu), d'émission (en rouge) et du miroir dichroïque (en vert) qui correspondent au cube porte-filtres U-FGNA [123]	75
2.23	Calibration : Rapport entre l'intensité lumineuse et le temps d'exposition en fonction de la concentration massique des particules, pour un ensemble d'images capturées en fluorescence pour des suspensions de particules injectées dans un canal droit.	75

2.24	images microscope des particules de PMMA de $15 \mu m$ marquées en fluorescence avec de la rhodamine-B moyennant le protocole de marquage de Carpentier et al [121]. a), b), c) et d) sont capturées de différents endroits de l'échantillon et avec différents focus	77
2.25	Image réelle d'une suspension de particules de $20 \mu m$ de diamètre ($\phi = 10 \%$ et $Q = 10 \mu l/min$) injectée dans un milieu poreux après avoir été colmaté, prise par un microscope numérique de haute résolution (VHX-7000 de la société Keyence). Le rose foncé correspond aux clusters et le rose clair correspond à la suspension	78
2.26	Photo du montage expérimental de l'injection à débit imposé. L'écoulement à travers le milieu poreux est observé sous microscope à fluorescence (OLYMPUS CKX53) et enregistré par une caméra rapide (Hamamatsu ORCA-Flash4.0 V3). L'injection de la suspension est assurée par un pousse-seringue Cetoni Nemesys	79
2.27	Schéma d'injection - (1) : seringue de la suspension, (2) : seringue du fluide suspendant, (3) : vanne 2 voies, (4) : capteur de pression, (5) : bac d'évacuation.	80
2.28	Photo du montage expérimental de l'injection à pression imposée. L'écoulement à travers le milieu poreux est observé sous microscope à fluorescence (OLYMPUS CKX53) et enregistré par une caméra rapide (Hamamatsu ORCA-Flash4.0 V3). L'injection de la suspension est assurée par un contrôleur de pression Fluigent MFCS TM -EZ	80
2.29	Schéma d'injection - (1) : contrôleur de pression, (2) : seringue du fluide suspendant, (3) : seringue de dosage (sans piston) contenant la suspension, (4) : vanne 2 voies, (5) : capteur de pression, (6) : débitmètre, (7) : bac d'évacuation.	81
2.30	a) Photo d'un débitmètre Fluigent FLU-L-D . b) Principe du fonctionnement du débitmètre Fluigent FLU-L-D [124]	81
2.31	a) Courbe de calibration du capteur de débit, en utilisant le fluide suspendant (en bleu) et la suspension à 20 % (en rouge). b) Courbe de l'écart relatif entre les deux courbes d'ajustement (suspension et fluide suspendant 2.31a) en fonction du débit.	82
2.32	Photo du capteur de pression HONEYWELL	83
2.33	Courbe de calibration du capteur de pression	84
2.34	Schéma des différentes singularités et longueurs droites dans les canaux et les tubes d'alimentation en amont du milieu poreux.	85
2.35	a) Pertes de charges (mbar) dans les tubes, en fonction du débit pour les concentrations utilisées . b) Pertes de charges (mbar) dans les pattes, en fonction du débit pour les concentrations [utilisées]	85

2.36	a) Différence de pression entre l'entrée et la sortie du milieu poreux en fonction de nombre d'images pour différents débits. b) Intensité lumineuse (16 bits) à l'entrée, au milieu et à la sortie du milieu poreux en fonction du nombre d'images.	86
2.37	Les positions de mesure d'intensité lumineuse lors de l'injection du fluide suspendant pour évaluer la déformation du milieu poreux	86
2.38	Caractérisation de la déformation de dispositif en PDMS par la pression. a) Intensité lumineuse (16 bits) à l'entrée, au milieu et à la sortie du milieu poreux en fonction de la pression. b) Gonflement du milieu poreux en fonction de la pression, à l'entrée, au milieu et à la sortie du milieu poreux.	87
2.39	a) Perméabilité du milieu poreux en fonction de la pression en considérant une section constante. b) Perméabilité du milieu poreux en fonction de la pression avant et après correction de la surface de la section.	89
2.40	Schéma résumant les différentes étapes de traitement d'images	90
2.41	Correction des défauts d'illumination et création du masque des plots. a) Image de fond moyen. b) Histogramme d'intensité lumineuse (en 16bit) de l'image de fond. c) Image avec plots supprimés. d) Image de fond extrapolée. e) Image de fond normalisée par l'image extrapolée. f) Masque des plots.	91
2.42	Courbe du niveau de gris en fonction de la distance le long d'un plot du milieu poreux. En jaune, est le segment sur lequel la mesure a été réalisée.	92
2.43	a) image de fond moyen. b) histogramme d'intensité lumineuse (en 16bit) de l'image de fond. c) image avec plots supprimés. d) image de fond extrapolée. e) image de fond normalisée par l'image extrapolée.	93
2.44	a) Niveau de gris moyen au niveau des plots en fonction des numéros d'images avant et après correction de la variation temporelle de l'intensité entre les images. b) Courbe d'accumulation de nombre de pixels de l'image en fonction du seuil de la variation pour la binarisation	94
2.45	Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour une suspension de $\phi = 15\%$. La même expérience répétée 10 fois pour l'étude de reproductibilité	96
2.46	a) Image acquise par la caméra représentant un exemple de l'état du milieu poreux à travers lequel une suspension dense s'écoule. b) Cartographie de concentration suivant une loi linéaire (1 correspond à la concentration maximale de particules et 0 correspond la concentration minimale de particules).	97

3.1 Experimental procedure. a) A syringe filled with the suspending fluid (1) and one filled with the suspension (2) are connected to the model porous media through a switch valve (3). A pressure sensor (4) measures the pressure at the entrance. The exit is connected to a reservoir (5) opened at ambient pressure. b) Zoom in the random porous media. c) Distribution of the pore throats width. The red scale bars are 1 mm. 103

3.2 Suspension viscosity at different particle volume fractions at 25°C and a shear rate of 30 s⁻¹, and comparison with Zaragga’s relation (equation 3.1). In the inset, suspension viscosity as a function of shear rate for different volume fractions indicated in the legend. 105

3.3 Illustration of the image analysis procedure used to isolate the dense clusters of arrested particles from the flowing suspension, and the dynamics of cluster growth (white) and erosion (black). The red scale bars is 1 mm. . . 107

3.4 *Top left* : Pressure drop as function of injected pore volume (here and in the following, the injected pore volume is a reduced time, defined by $P_v = Qt/V$, where Q is the flow rate and V the total void volume of the porous domain). A few examples are shown for non-clogging (solid lines) and clogging (dashed lines) conditions. These data were obtained using the 15µm particles, at volume fraction and flow rate that are indicated in the legend ($\phi X - QY$ stands for a volume fraction of X% and a flow rate of YµL/min, etc...). *Top middle* : size of the biggest arrested cluster identified, in the transverse direction to the main flow. It is normalized by the width of the porous medium. *Top right* : position along the flow direction of the center of mass of the arrested clusters, x_m . It is normalized by the length of the porous medium. Dashed lines correspond to clogging conditions, solid line to non-clogging ones. Data from 28 different experimental conditions are shown. *Bottom* Examples of binary images of the arrested clusters (in white) at the end of the experiment. The two first images correspond to non-clogging conditions ($\phi = 5$ and 15% at 10µL/min/. The three others to clogging ones ($\phi = 20\%$ at flow rates of 10, 2.5 and 40 µL/min). 109

3.5 Phase diagrams of clogging/non-clogging conditions. Left : suspensions of 15µm particles. Right : phase diagram highlighting the influence of the particle size which was varied from 6 to 20 µm. In the figure, the particle size is normalized by the pore size (46µ m). For the 6 and 10µm particles, volume fraction was kept constant at 30% and the flow rate was varied from 5 to 40 µL/min. For the 20 µm particles, the flow rate was kept constant and equal to 10 µL/min. 110

- 3.6 *Left* : Evolution of the accumulation with the injected volume of the suspension expressed in pore volume (PV). Solid line : without clogging. Dashed line : with clogging. *Right* : Accumulation after the injection of 600 PV for non-clogging conditions. *Bottom right* : dashed lines are the best linear fits to the data. 110
- 3.7 *Left* : Evolution of the cluster size with the injected volume of the suspension expressed in pore volume (PV). Solid line : without clogging. Dashed line : with clogging. *Right* : Cluster size after the injection of 600 PV for non-clogging conditions. 112
- 3.8 Cumulative distribution functions f of the cluster size (area weighted). CLuster size is the square-root of the cluster area and is normalized by the mean pore size W_d . *Left* : non-clogging conditions ($15\mu\text{m}$ -particles, $Q = 10\mu\text{L}/\text{min}$, $\phi = 5, 10, 15\%$), during steady state at $\text{PV}=600$. Dashed-line are the best log-normal fit to the data. *Middle* : Clogging conditions ($15\mu\text{m}$ -particles, $Q = 10\mu\text{L}/\text{min}$, $\phi = 17.5\%$). Line colors stand for the injected pore volume, from 0 (brightest) to 58.6 (darkest) at which clogging occurred. *Right* : For clogging conditions (solid lines) and for non-clogging conditions (circles, one value per experiment during the pseudo steady state), cluster size versus $|a - a_c|$, where a is the accumulation and a_c its critical value ($1/2$ is 2D). Dashed lines are guides for the eyes showing predicted power laws from percolation theory (2D). Data from all conditions (various flow rates and volume fractions) are gathered. 113
- 3.9 Local cluster probability. During pseudo steady state, the local presence of a cluster is averaged over time. Same conditions as in Figure 3.4 bottom. . 114
- 3.10 For some locations highlighted by red circles on the arrested clusters probability map (left), the size of the local cluster is plotted as a function of the injected pore volume (PV). Experimental parameters : $15\text{-}\mu\text{m}$ particles, $2.5\ \mu\text{L}/\text{min}$, $\phi = 15\%$. Cluster sizes are defined the square-root of the cluster area, and are normalized by the mean pore throat width W_p . The corresponding movie is available as supplemental material 114
- 3.11 Cluster mobility as a function of time (see section 3.2.3 for detailed definition). *Left* : Mobility is displayed as a function of the injected pore volume for both non-clogging (solid lines) and clogging (dashed lines) conditions. *Right* : Mobility rate (i.e. the slope of the linear increment of the mobility with respect to PV) is plotted as a function of particle volume fraction for various flow rates. Circles stand for non-clogging conditions, stars for clogging ones. 115

4.1	Procédure expérimentale. a) Un réservoir (3) (rempli de la suspension et contrôlé en pression via le contrôleur de pression (1)) et une seringue remplie du fluide suspendant (2) sont reliés au milieu poreux par une vanne (5). Un capteur de pression (4) permet de mesurer la pression à l'entrée. La sortie est reliée à un débitmètre (6) puis à un réservoir (7) ouvert (pression ambiante). b) Zoom sur le milieu poreux aléatoire. c) Distribution de la largeur des pores. Les barres d'échelle vertes représentent 1 mm.	122
4.2	a) Diagramme de phase de colmatage dans les conditions à débit imposé. b) Diagramme de phase de colmatage dans les conditions à pression imposée.	123
4.3	a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 50mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).	124
4.4	a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 100mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).	124
4.5	a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 250mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).	125
4.6	a) Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP pour différentes concentrations à 300mbar. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a).	125
4.7	Évolution de l'accumulation à 100 VP en fonction de la concentration pour différentes pressions d'injection	126
4.8	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP à $\phi = 5\%$. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a) en fonction de VP	126
4.9	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP à $\phi = 10\%$. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a) en fonction de VP	127
4.10	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP à $\phi = 15\%$. b) Évolution des débits mesurés correspondant à a) en fonction de VP	127
4.11	Évolution de l'accumulation à 100 VP en fonction du débit à $\phi = 5\%$ dans le cas de l'injection à pression et à débit imposés	128
4.12	a) Évolution de la pression en fonction du nombre de VP sur le tronçon [100VP, 102VP]. Une consigne de pression de 100 mbar est donné par le contrôleur. b) La mesure de débit, en fonction du nombre VP, correspondant à la consigne de pression.	128
4.13	Évolution de l'accumulation (axe de gauche) et du débit correspondant (axe de droite) en fonction de VP pour deux expériences similaires réalisées à $\phi = 15\%$ en utilisant des pressions périodiques de valeur minimale 100 mbar pendant 100s et de valeur maximale 400 mbar pendant 10s.	129

4.14	a) Évolution de la pression en fonction du nombre de VP sur le tronçon [100VP, 102VP] . Trois consignes de pression : deux pressions constantes (75mbar et 125mbar) et une pression variable (signal carré variant entre 87.5mbar et 112.5mbar). b) La mesure de débit, en fonction du nombre VP, correspondant à chaque consigne de pression.	130
4.15	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de particules de diamètres $15 \mu m$ et une fraction volumique $\phi = 10\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP.	132
4.16	Histogramme de l'accumulation moyenne à différentes fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 10 \%$	132
4.17	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP (sur la légende C : signifie colmaté(clogged) et NC : signifie non colmaté(non-clogged)).	133
4.18	À gauche : Histogramme de l'accumulation moyenne. À droite : Pourcentage des expériences colmatées, à différentes fréquences et $\phi = 15 \%$	134
4.19	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 20\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP.	134
4.20	Histogramme de nombre de volumes de pores injectés avant d'arriver au colmatage du milieu, à différentes fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 20 \%$	135
4.21	a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différents fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 10 \%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.	136
4.22	Histogramme de la taille des clusters moyenne à différents fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 10 \%$	136
4.23	a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.	137
4.24	Histogramme de la taille des clusters moyenne à différents fréquences pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15 \%$	137

4.25	a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différentes fréquences (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 20\%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.	138
4.26	Évolution de l'accumulation en fonction de VP. Comparaison des entre les résultats dans un dispositif en PDMS et un dispositif en verre. Une suspension de $\phi = 15\%$ est injectée sous le signal carré périodique de pression suivant : 75 mbar (2.5s) - 125 mbar (2.5s)	139
4.27	a) Évolution de l'accumulation en fonction de VP pour différents amplitudes (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de la moyenne des courbes d'accumulation en fonction de VP.	141
4.28	a) Histogramme de l'accumulation moyenne à différents amplitudes pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de l'accumulation moyenne en fonction de l'amplitude.	141
4.29	a) Évolution de la taille des clusters en fonction de VP pour différents amplitudes (chaque expérience est répétée plusieurs fois) pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de la moyenne des courbes de la taille des clusters en fonction de VP.	142
4.30	a) Histogramme de la taille des clusters moyenne à différents amplitudes pour une suspension de $15 \mu m$ à $\phi = 15 \%$. b) Évolution de la taille des clusters moyenne en fonction de l'amplitude.	142
4.31	Schéma résumant l'effet des signaux périodiques de pression sur chaque régime de colmatage	144
5.1	Diagrammes de phase du colmatage . a) : Particules bidisperses ($6 \mu m$ (99.876%) et $30 \mu m$ (0.124%)) et b) : Particules monodisperses ($6 \mu m$). . .	148
5.2	a),b) et c) : Évolution de l'accumulation en fonction de VP à différents débits pour une suspension de $6 \mu m$ à $\phi = 10\%$, $\phi = 20\%$ et $\phi = 30\%$ respectivement.	149
5.3	a) Temps de colmatage en PV en fonction du débit à différentes fractions massiques. b) Temps de colmatage en PV en fonction de la fraction massique à différents débits.	150
5.4	a) Évolution de l'accumulation finale en fonction du débit à différentes fractions massiques pour une suspension de $6 \mu m$. b) Évolution de l'accumulation finale en fonction de la fraction massique à différents débits pour une suspension de $6 \mu m$	150
5.5	a) Pente des courbes d'accumulations en (% par PV) en fonction du carré de la fraction massique ϕ^2 . b) Évolution de l'accumulation en fonction de $PV \times \phi^2$ (toutes les expériences sont reportées sur ce graphe).	151

5.6	a),b) et c) : Évolution du rapport des tailles des clusters sur la taille moyenne des pores en fonction de VP à différents débits pour une suspension de $6 \mu m$ à $\phi = 10\%$, $\phi = 20\%$ et $\phi = 30\%$ respectivement.	152
5.7	a) Aire du plus grand cluster en mm^2 en fonction du nombre de PV pour une suspension de particule injectée à $\phi = 10\%$ et $Q = 30 \mu l/min$. b) Évolution de la taille des clusters en fonction du débit à différentes fractions massiques pour une suspension de $6 \mu m$	153
5.8	a),b) et c) : Évolution des centres de masse des clusters en fonction de VP à différents débits pour une suspension de $6 \mu m$ à $\phi = 10\%$, 20% et 30% respectivement.	154
5.9	Séquence d'images du milieu poreux lors de l'injection d'une suspension de particules bidisperses ($D_{par} = 6 \mu m$) à $\phi = 20\%$ et $Q = 30 \mu l/min$. Les images sont prises après l'injection de : 35 VP, 70VP, 105VP, 140VP, 175VP et 210VP.	155
5.10	Comparaison entre les écoulements de suspensions en particules monodisperses et bidisperses à $\phi = 30\%$. a) : évolution de l'accumulation, b) : évolution du rapport des tailles des clusters sur la taille moyenne des pores, c) : évolution des centres de masse en fonction de VP à différents débits.	156
5.11	Pour des conditions de colmatage (lignes continues) et pour des conditions sans colmatage (cercles, une valeur par expérience pendant l'état pseudo-stationnaire), taille de clusters en fonction de l'accumulation a . Les courbes rouges correspondent au cas monodisperse et les courbes vertes au cas bidisperse.	157
5.12	Image du milieu poreux lors de l'écoulement d'une suspension de particules de $6 \mu m$. À gauche : focus sur des grosses particules dans le milieu poreux sur le carré en rouge.	160
5.13	Évolution de l'accumulation en fonction de nombre de VP. Expérience du nettoyage du milieu poreux par un fluide suspendant : une suspension de particules de $15 \mu m$ de fraction massique $\phi = 20 \%$ est injectée à un débit $Q = 20 \mu l/min$ pendant environ 740 VP (courbe noire). Ensuite le fluide suspendant est injecté à un débit $Q = 60 \mu l/min$ pendant environ 1150 VP.	165

Liste des tableaux

1.1	porosité de quelques matériaux [5]	19
1.2	Exemples de perméabilité de quelques matériaux [5]	20
2.1	Caractéristiques des particules de PMMA	63
2.2	Concentration massique de chacun des fluides à 25 C°	67
2.3	Indice de réfraction et masse volumique de chacun des fluides à 25 C°	68
2.4	Viscosité et masse volumique du mélange en fonction de la température	69
2.5	Données expérimentales du dispositif poreux et du fluide suspendant	88
3.1	Suspending liquid composition and physical quantities of the solution and its components.	104
4.1	Caractéristiques de l'étude de l'effet de la fréquence du signal de pression sur le colmatage	131
4.2	Caractéristiques de l'étude de l'effet de l'amplitude du signal de pression sur le colmatage	140
5.1	Caractéristiques de la suspension de particules bidisperses	146
5.2	Caractéristiques de l'étude l'écoulement des suspensions bidisperses	147

Bibliographie

- [1] <https://planet-terre.ens-lyon.fr/planetterre/objets/Images/Img350/350-petrole-roche-magasin-11.jpg>.
- [2] https://medias.pourlascience.fr/api/v1/images/view/5a82ab728fe56f4a497d74b5/wide_1300/image.jpg.
- [3] <https://www.tissages-carret.fr/images/metiers/tissus-filtration.jpg>.
- [4] <https://image3.slideserve.com/5659103/slide11-n.jpg>.
- [5] Olivier Bonnefoy. *Influence des cristaux d'hydrates de gaz ou de glace sur la perméabilité d'un milieu poreux*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2005.
- [6] https://fr.wikipedia.org/wiki/Porosit%C3%A9#Type_de_porosit%C3%A9.
- [7] [https://fr.wikipedia.org/wiki/Perm%C3%A9abilit%C3%A9_\(fluide\)#:~:text=La%20perm%C3%A9abilit%C3%A9%20d'un%20milieu,s'appelle%20l'imperm%C3%A9abilit%C3%A9](https://fr.wikipedia.org/wiki/Perm%C3%A9abilit%C3%A9_(fluide)#:~:text=La%20perm%C3%A9abilit%C3%A9%20d'un%20milieu,s'appelle%20l'imperm%C3%A9abilit%C3%A9).
- [8] NK Karadimitriou and SM Hassanizadeh. A review of micromodels and their use in two-phase flow studies. *Vadose Zone Journal*, 11(3) :vzj2011-0072, 2012.
- [9] Carlo D Montemagno and William G Gray. Photoluminescent volumetric imaging : A technique for the exploration of multiphase flow and transport in porous media. *Geophysical research letters*, 22(4) :425-428, 1995.
- [10] DG Avraam and AC Payatakes. Flow mechanisms, relative permeabilities, and coupling effects in steady-state two-phase flow through porous media. the case of strong wettability. *Industrial & engineering chemistry research*, 38(3) :778-786, 1999.
- [11] Alfred Chatenever and John C Calhoun. Visual examinations of fluid behavior in porous media-part i. *Journal of Petroleum Technology*, 4(06) :149-156, 1952.
- [12] WF Nuss and RL Whiting. Technique for reproducing rock pore space. *AAPG Bulletin*, 31(11) :2044-2049, 1947.
- [13] Jing-Den Chen and David Wilkinson. Pore-scale viscous fingering in porous media. *Physical review letters*, 55(18) :1892, 1985.

- [14] Yavuz M Corapcioglu, Sabina Chowdhury, and Sharon E Roosevelt. Micromodel visualization and quantification of solute transport in porous media. *Water resources research*, 33(11) :2547–2558, 1997.
- [15] CD Tsakiroglou and DG Avraam. Publication : Journal of materials science pub date : 2002.
- [16] Mauro Sbragaglia and Andrea Prosperetti. A note on the effective slip properties for microchannel flows with ultrahydrophobic surfaces. *Physics of Fluids*, 19(4) :043603, 2007.
- [17] J-T Cheng, Laura J Pyrak-Nolte, David D Nolte, and Nicholas J Giordano. Linking pressure and saturation through interfacial areas in porous media. *Geophysical Research Letters*, 31(8), 2004.
- [18] DD Nolte and LJ Pyrak-Nolte. Stratified continuum percolation : Scaling geometry of hierarchical cascades. *Physical Review A*, 44(10) :6320, 1991.
- [19] DD Nolte, LJ Pyrak-Nolte, and NGW Cook. The fractal geometry of flow paths in natural fractures in rock and the approach to percolation. *Pure and Applied Geophysics*, 131(1) :111–138, 1989.
- [20] Laura J Pyrak-Nolte, Neville GW Cook, and David D Nolte. Fluid percolation through single fractures. *Geophysical Research Letters*, 15(11) :1247–1250, 1988.
- [21] Bjornar Sandnes, HA Knudsen, KJ Måløy, and EG Flekkøy. Labyrinth patterns in confined granular-fluid systems. *Physical review letters*, 99(3) :038001, 2007.
- [22] AA Helba, Muhammad Sahimi, LE Scriven, and HT Davis. Percolation theory of two-phase relative permeability. *SPE Reservoir Engineering*, 7(01) :123–132, 1992.
- [23] M Blunt and P King. Relative permeabilities from two-and three-dimensional pore-scale network modelling transp. *Porous Media*, 6 :407–433, 1991.
- [24] Philip Crosbie Carman. Fluid flow through granular beds. *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 15 :150–166, 1937.
- [25] Sebastiano Foti, Carlo G Lai, and Renato Lancellotta. Porosity of fluid-saturated porous media from measured seismic wave velocities. *Géotechnique*, 52(5) :359–373, 2002.
- [26] Adam Szymkiewicz. *Modelling water flow in unsaturated porous media*. Springer, 2013.
- [27] Peter Constantin and Ciprian Foias. *Navier-stokes equations*. University of Chicago Press, 1988.
- [28] François Boyer, Élisabeth Guazzelli, and Olivier Pouliquen. Unifying suspension and granular rheology. *Physical review letters*, 107(18) :188301, 2011.
- [29] C Cassar, M Nicolas, and O Pouliquen. Submarine granular flows down inclined planes. *Physics of fluids*, 17(10) :103301, 2005.

- [30] Élisabeth Guazzelli and Olivier Pouliquen. Rheology of dense granular suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 852, 2018.
- [31] Albert Einstein et al. On the motion of small particles suspended in liquids at rest required by the molecular-kinetic theory of heat. *Annalen der physik*, 17(549-560) :208, 1905.
- [32] C Bonnoit, T Darnige, E Clement, and A Lindner. Inclined plane rheometry of a dense granular suspension. *Journal of Rheology*, 54(1) :65–79, 2010.
- [33] Talib Dbouk, Laurent Lobry, and Elisabeth Lemaire. Normal stresses in concentrated non-brownian suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 715 :239–272, 2013.
- [34] Isidro E Zarraga, Davide A Hill, and David T Leighton Jr. The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in newtonian fluids. *Journal of Rheology*, 44(2) :185–220, 2000.
- [35] Guillaume Ovarlez, François Bertrand, and Stéphane Rodts. Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging. *Journal of rheology*, 50(3) :259–292, 2006.
- [36] Asimina Sierou and John F Brady. Rheology and microstructure in concentrated noncolloidal suspensions. *Journal of Rheology*, 46(5) :1031–1056, 2002.
- [37] Romain Mari, Ryohei Seto, Jeffrey F Morris, and Morton M Denn. Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 58(6) :1693–1724, 2014.
- [38] Stany Gallier, Elisabeth Lemaire, François Peters, and Laurent Lobry. Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 757 :514–549, 2014.
- [39] Isidro E. Zarraga, Davide A. Hill, and David T. Leighton. The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids. *Journal of Rheology*, 44(2) :185–220, 2000.
- [40] P Coussot and Ch Ancey. Rheophysical classification of concentrated suspensions and granular pastes. *Physical Review E*, 59(4) :4445, 1999.
- [41] David Taresté. *Liaisons par chélation et liaisons hydrogène : une mesure directe*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2002.
- [42] Boris Derjaguin and Lev Landau. Theory of the stability of strongly charged lyophobic sols and of the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes. *Progress in Surface Science*, 43(1-4) :30–59, 1993.
- [43] Evert Johannes Willem Verwey. Theory of the stability of lyophobic colloids. *The Journal of Physical Chemistry*, 51(3) :631–636, 1947.

- [44] Jeffrey F Morris. Shear thickening of concentrated suspensions : Recent developments and relation to other phenomena. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 52 :121–144, 2020.
- [45] Guillaume Chatté, Jean Comtet, Antoine Niguès, Lydéric Bocquet, Alessandro Siria, Guylaine Ducouret, François Lequeux, Nicolas Lenoir, Guillaume Ovarlez, and Annie Colin. Shear thinning in non-brownian suspensions. *Soft matter*, 14(6) :879–893, 2018.
- [46] William Chèvremont, Bruno Chareyre, and Hugues Bodiguel. Quantitative study of the rheology of frictional suspensions : Influence of friction coefficient in a large range of viscous numbers. *Physical Review Fluids*, 4(6) :064302, 2019.
- [47] James L Sherard, Lorn P Dunnigan, and James R Talbot. Basic properties of sand and gravel filters. *Journal of Geotechnical Engineering*, 110(6) :684–700, 1984.
- [48] Somalee Datta and S Redner. Gradient clogging in depth filtration. *Physical Review E*, 58(2) :R1203, 1998.
- [49] S Laurie Sanderson, Angela Y Cheer, Jennifer S Goodrich, Jenny D Graziano, and W Todd Callan. Crossflow filtration in suspension-feeding fishes. *Nature*, 412(6845) :439–441, 2001.
- [50] E Papamichos, I Vardoulakis, J Tronvoll, and A Skjaerstein. Volumetric sand production model and experiment. *International journal for numerical and analytical methods in geomechanics*, 25(8) :789–808, 2001.
- [51] Euripides Papamichos. Sand production : Physical and experimental evidence. *Revue europeenne de genie civil*, 10(6-7) :803–816, 2006.
- [52] Sundar Balasubramanian, James D Allen, Akanksha Kanitkar, and Dorin Boldor. Oil extraction from *scenedesmus obliquus* using a continuous microwave system—design, optimization, and quality characterization. *Bioresource technology*, 102(3) :3396–3403, 2011.
- [53] Paula Mercer and Roberto E Armenta. Developments in oil extraction from microalgae. *European journal of lipid science and technology*, 113(5) :539–547, 2011.
- [54] JW Jung, Jaewon Jang, Juan Carlos Santamarina, C Tsouris, TJ Phelps, and CJ Rawn. Gas production from hydrate-bearing sediments : the role of fine particles. *Energy & fuels*, 26(1) :480–487, 2012.
- [55] Tushar Kanti Sen and Kartic C Khilar. Review on subsurface colloids and colloid-associated contaminant transport in saturated porous media. *Advances in colloid and interface science*, 119(2-3) :71–96, 2006.
- [56] Tushar Kanti Sen, SP Mahajan, and Kartic C Khilar. Colloid-associated contaminant transport in porous media : 1. experimental studies. *AIChE Journal*, 48(10) :2366–2374, 2002.

- [57] Stéphane Bonelli, Olivier Brivois, Roland Borghi, and Nadia Benahmed. On the modelling of piping erosion. *Comptes Rendus Mécanique*, 334(8-9) :555–559, 2006.
- [58] Walid Al-Fares. Contribution of the geophysical methods in characterizing the water leakage in afamia b dam, syria. *Journal of Applied Geophysics*, 75(3) :464–471, 2011.
- [59] Ahmed Hammadi. *Transport et dépôt de particules en suspension dans un milieu poreux saturé : effets du milieu et de la polydispersivité des particules*. PhD thesis, Université du Havre, 2016.
- [60] Constantinos V Chrysikopoulos and Vasiliki I Syngouna. Effect of gravity on colloid transport through water-saturated columns packed with glass beads : Modeling and experiments. *Environmental science & technology*, 48(12) :6805–6813, 2014.
- [61] David C Mays and James R Hunt. Hydrodynamic aspects of particle clogging in porous media. *Environmental science & technology*, 39(2) :577–584, 2005.
- [62] Venkatachalam Ramachandran and H Scott Fogler. Plugging by hydrodynamic bridging during flow of stable colloidal particles within cylindrical pores. *Journal of Fluid Mechanics*, 385 :129–156, 1999.
- [63] John Gregory and A James Wishart. Deposition of latex particles on alumina fibers. *Colloids and Surfaces*, 1(3-4) :313–334, 1980.
- [64] Xiqing Li, Pengfei Zhang, CL Lin, and William P Johnson. Role of hydrodynamic drag on microsphere deposition and re-entrainment in porous media under unfavorable conditions. *Environmental science & technology*, 39(11) :4012–4020, 2005.
- [65] Xueyan Ye, Ruijuan Cui, Xinqiang Du, Sijia Ma, Jingtong Zhao, Ying Lu, and Yuyu Wan. Mechanism of suspended kaolinite particle clogging in porous media during managed aquifer recharge. *Groundwater*, 57(5) :764–771, 2019.
- [66] Jean-François Gaillard, Cheng Chen, Susa H Stonedahl, Boris LT Lau, Denis T Keane, and Aaron I Packman. Imaging of colloidal deposits in granular porous media by x-ray difference micro-tomography. *Geophysical Research Letters*, 34(18), 2007.
- [67] W Zhang, XY Tang, N Weisbrod, and Z Guan. A review of colloid transport in fractured rocks. *j mt sci* 9 (6) : 770–787, 2012.
- [68] RGM Van der Sman. Simulations of confined suspension flow at multiple length scales. *Soft Matter*, 5(22) :4376–4387, 2009.
- [69] Hans M Wyss, Daniel L Blair, Jeffrey F Morris, Howard A Stone, and David A Weitz. Mechanism for clogging of microchannels. *Physical Review E*, pages 1–4, 2006.
- [70] Francis P Bretherton. The motion of rigid particles in a shear flow at low reynolds number. *Journal of Fluid Mechanics*, 14(2) :284–304, 1962.

- [71] Iker Zuriguel, Daniel Ricardo Parisi, Raúl Cruz Hidalgo, Celia Lozano, Alvaro Janda, Paula Alejandra Gago, Juan Pablo Peralta, Luis Miguel Ferrer, Luis Ariel Pugnali, Eric Clément, et al. Clogging transition of many-particle systems flowing through bottlenecks. *Scientific reports*, 4(1) :1–8, 2014.
- [72] XL Wu, Knut Jørgen Måløy, Alex Hansen, Madani Ammi, and Daniel Bideau. Why hour glasses tick. *Physical review letters*, 71(9) :1363, 1993.
- [73] Sandeep D Kulkarni, Bloen Metzger, and Jeffrey F Morris. Particle-pressure-induced self-filtration in concentrated suspensions. *Physical Review E*, 82(1) :010402, 2010.
- [74] Wim A Beverloo, Hendrik Antonie Leniger, and J Van de Velde. The flow of granular solids through orifices. *Chemical engineering science*, 15(3-4) :260–269, 1961.
- [75] Kiwing To, Pik-Yin Lai, and HK Pak. Jamming of granular flow in a two-dimensional hopper. *Physical review letters*, 86(1) :71, 2001.
- [76] P Sajeesh and Ashis Kumar Sen. Particle separation and sorting in microfluidic devices : a review. *Microfluidics and nanofluidics*, 17(1) :1–52, 2014.
- [77] Huibin Wei, Bor-han Chueh, Huiling Wu, Eric W Hall, Cheuk-wing Li, Romana Schirhagl, Jin-Ming Lin, and Richard N Zare. Particle sorting using a porous membrane in a microfluidic device. *Lab on a chip*, 11(2) :238–245, 2011.
- [78] Hubiao Huang, Yulong Ying, and Xinsheng Peng. Graphene oxide nanosheet : an emerging star material for novel separation membranes. *Journal of Materials Chemistry A*, 2(34) :13772–13782, 2014.
- [79] Nicholas P Cheremisinoff. *Liquid filtration*. Elsevier, 1998.
- [80] Chi Tien and Bandaru V Ramarao. *Granular filtration of aerosols and hydrosols*. Elsevier, 2011.
- [81] Patrice Bacchin, Pierre Aimar, and Victor Sanchez. Model for colloidal fouling of membranes. *AIChE journal*, 41(2) :368–376, 1995.
- [82] AW Zularisam, AF Ismail, and Razman Salim. Behaviours of natural organic matter in membrane filtration for surface water treatment—a review. *Desalination*, 194(1-3) :211–231, 2006.
- [83] Hans M Wyss, Daniel L Blair, Jeffrey F Morris, Howard A Stone, and David A Weitz. Mechanism for clogging of microchannels. *Physical review E*, 74(6) :061402, 2006.
- [84] Alban Sauret, Erin C. Barney, Adeline Perro, Emmanuel Villermaux, Howard A. Stone, and Emilie Dressaire. Clogging by sieving in microchannels : Application to the detection of contaminants in colloidal suspensions. *Applied Physics Letters*, 105(7), 2014.
- [85] Emilie Dressaire and Alban Sauret. Clogging of microfluidic systems. *Soft Matter*, 13 :37–48, 2017.

- [86] G. Gerber, S. Rodts, P. Aïmedieu, P. Faure, and P. Coussot. Particle-Size-Exclusion Clogging Regimes in Porous Media. *Physical Review Letters*, 120(14) :148001, 2018.
- [87] N Roussel, Thi Lien Huong Nguyen, and P Coussot. General probabilistic approach to the filtration process. *Physical review letters*, 98(11) :114502, 2007.
- [88] KV Sharp and RJ Adrian. On flow-blocking particle structures in microtubes. *Microfluidics and Nanofluidics*, 1(4) :376–380, 2005.
- [89] Sharp V Kendra and Ronald J Adrian. Shear-induced arching of particle-laden flows in microtubes. In *CD-ROM Proceedings International Mechanical Engineering Congress and Exposition. November*, pages 11–16, 2001.
- [90] K. V. Sharp and R. J. Adrian. On flow-blocking particle structures in microtubes. *Microfluidics and Nanofluidics*, 1(4) :376–380, 2005.
- [91] Martin van Hecke. Jamming of soft particles : geometry, mechanics, scaling and isostaticity. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 22(3) :033101, 2009.
- [92] ME Cates, JP Wittmer, J-P Bouchaud, and Ph Claudin. Jamming, force chains, and fragile matter. *Physical review letters*, 81(9) :1841, 1998.
- [93] Venkatachalam Ramachandran and H. Scott Fogler. Plugging by hydrodynamic bridging during flow of stable colloidal particles within cylindrical pores. *Journal of Fluid Mechanics*, 385 :129–156, 1999.
- [94] Kendra Vail Sharp. *Experimental investigation of liquid and particle-laden flows in microtubes*. University of Illinois at Urbana-Champaign, 2001.
- [95] Celia Lozano, Alvaro Janda, Angel Garcimartin, Diego Maza, and Iker Zuriguel. Flow and clogging in a silo with an obstacle above the orifice. *Physical Review E*, 86(3) :031306, 2012.
- [96] Juha Koivisto and Douglas J. Durian. Effect of interstitial fluid on the fraction of flow microstates that precede clogging in granular hoppers. *Physical Review E*, 95(3) :1–6, 2017.
- [97] Andrew I Campbell and Mark D Haw. Jamming and unjamming of concentrated colloidal dispersions in channel flows. *Soft Matter*, 6(19) :4688–4693, 2010.
- [98] Juha Koivisto and Douglas J Durian. Effect of interstitial fluid on the fraction of flow microstates that precede clogging in granular hoppers. *Physical Review E*, 95(3) :032904, 2017.
- [99] Patrice Bacchin, Aurélie Marty, Paul Duru, Martine Meireles, and Pierre Aimar. Colloidal surface interactions and membrane fouling : Investigations at pore scale. *Advances in colloid and interface science*, 164(1-2) :2–11, 2011.
- [100] Benjamin Dersoir, Matthieu Robert, De Saint Vincent, and Manouk Abkarian. Clogging of a single pore by colloidal particles. *Microfluidics and Nanofluidics*, 19(4) :953–961, 2015.

- [101] Venkatachalam Ramachandran and H Scott Fogler. Multilayer deposition of stable colloidal particles during flow within cylindrical pores. *Langmuir*, 14(16) :4435–4444, 1998.
- [102] Benjamin Dersoir, Matthieu Robert de Saint Vincent, Manouk Abkarian, and Hervé Tabuteau. Clogging of a single pore by colloidal particles. *Microfluidics and Nanofluidics*, 19(4) :953–961, 2015.
- [103] Wenxiang Zhang, Jianquan Luo, Luhui Ding, and Michel Y Jaffrin. A review on flux decline control strategies in pressure-driven membrane processes. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 54(11) :2843–2861, 2015.
- [104] Wenshan Guo, Huu-Hao Ngo, and Jianxin Li. A mini-review on membrane fouling. *Bioresource technology*, 122 :27–34, 2012.
- [105] Gbedo Constant Agbangla, Éric Climent, and Patrice Bacchin. Experimental investigation of pore clogging by microparticles : Evidence for a critical flux density of particle yielding arches and deposits. *Separation and Purification Technology*, 101 :42–48, 2012.
- [106] Vishal B Pandya, S Bhuniya, and Kartic C Khilar. Existence of a critical particle concentration in plugging of a packed bed. *American Institute of Chemical Engineers. AIChE Journal*, 44(4) :978, 1998.
- [107] Jongwon Jung, Shuang Cindy Cao, Young-Ho Shin, Riyadh I Al-Raoush, Khalid Alshibli, and Jin-Woo Choi. A microfluidic pore model to study the migration of fine particles in single-phase and multi-phase flows in porous media. *Microsystem Technologies*, 24(2) :1071–1080, 2018.
- [108] Qi Liu, Budi Zhao, and JC Santamarina. Particle migration and clogging in porous media : A convergent flow microfluidics study. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 124(9) :9495–9504, 2019.
- [109] HN Unni and C Yang. Brownian dynamics simulation and experimental study of colloidal particle deposition in a microchannel flow. *Journal of colloid and interface science*, 291(1) :28–36, 2005.
- [110] S Remond. Dem simulation of small particles clogging in the packing of large beads. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 389(21) :4485–4496, 2010.
- [111] William Chèvremont, Bruno Chareyre, and Hugues Bodiguel. PHYSICAL REVIEW FLUIDS 4 , 064302 (2019) Quantitative study of the rheology of frictional suspensions : Influence of friction coefficient in a large range of viscous numbers. 064302 :1–17, 2019.
- [112] Younan Xia and George M Whitesides. Soft lithography. *Annual review of materials science*, 28(1) :153–184, 1998.

- [113] David C Duffy, J Cooper McDonald, Olivier JA Schueller, and George M Whitesides. Rapid prototyping of microfluidic systems in poly (dimethylsiloxane). *Analytical chemistry*, 70(23) :4974–4984, 1998.
- [114] Rémi Courson, Sébastien Cargou, Véronique Conédéra, Marc Fouet, Marie-Charline Blatché, CL Serpentine, and Anne Marie Gué. Low-cost multilevel microchannel lab on chip : Df-1000 series dry film photoresist as a promising enabler. *RSC Advances*, 4(97) :54847–54853, 2014.
- [115] Antoine Naillon. *Écoulements liquide-gaz, évaporation, cristallisation dans les milieux micro et nanoporeux. Études à partir de systèmes modèles micro et nanofluidiques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2016.
- [116] <https://www.fluorence.com/pdfs/spheromers-tds-architectural.pdf>.
- [117] Sébastien Wiederseiner, Nicolas Andreini, Gaël Epely-Chauvin, and Christophe Ancey. Refractive-index and density matching in concentrated particle suspensions : a review. *Experiments in fluids*, 50(5) :1183–1206, 2011.
- [118] Kunlun Bai and Joseph Katz. On the refractive index of sodium iodide solutions for index matching in piv. *Experiments in fluids*, 55(4) :1–6, 2014.
- [119] Colin B Holmes, Matthias Fuchs, and Michael E Cates. Jamming transitions in a schematic model of suspension rheology. *EPL (Europhysics Letters)*, 63(2) :240, 2003.
- [120] Jeffrey F Morris. A review of microstructure in concentrated suspensions and its implications for rheology and bulk flow. *Rheologica acta*, 48(8) :909–923, 2009.
- [121] Chantal Esther Carpentier et al. *Three-dimensional visualization of contact networks in granular material*. Universiteit van Amsterdam [Host], 2013.
- [122] <http://www.snv.jussieu.fr/bmedia/Microscopie/fluo/fluorange.htm>.
- [123] [https://www.olympus-lifescience.com/fr/optics/mirror-units/#!cms\[focus\]=cmsContent6353&cms\[tab\]=undefined](https://www.olympus-lifescience.com/fr/optics/mirror-units/#!cms[focus]=cmsContent6353&cms[tab]=undefined).
- [124] <https://www.fluigent.com/product/microfluidic-components-3/frp-flow-rate-platform/>.
- [125] <https://www.fluigent.com/resources/microfluidic-expertise/microfluidic-accessories/technologies-for-flow-control-and-flow-measurement/>.
- [126] John D’Errico. https://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/4551-inpaint_nans.
- [127] Sawyer B. Fuller, Eric J. Wilhelm, and Joseph M. Jacobson. Ink-jet printed nanoparticle microelectromechanical systems. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 11(1) :54–60, 2002.
- [128] A. L. Lim and Renbi Bai. Membrane fouling and cleaning in microfiltration of activated sludge wastewater. *Journal of Membrane Science*, 216(1-2) :279–290, 2003.

- [129] Kartic C. Khilar and H. Scott Fogler. Water Sensitivity of Sandstones. *Society of Petroleum Engineers Journal*, 23 :55–64, 1983.
- [130] Marc Fouet, Maud-Alix Mader, Sabri Iraïñ, Antoine Naillon, Zineb Yanha, Sébastien Cargou, Anne Marie Gue, and Pierre Joseph. Filter-less submicron hydrodynamic size sorting. *Lab Chip*, 16 :720–733, 2016.
- [131] Long Pang, Shaofei Shen, Chao Ma, Tongtong Ma, Rui Zhang, Chang Tian, Lei Zhao, Wenming Liu, and Jinyi Wang. Deformability and size-based cancer cell separation using an integrated microfluidic device. *Analyst*, 140(21) :7335–7346, 2015.
- [132] Sophie Roman, Adlan Merlo, Paul Duru, Frédéric Risso, and Sylvie Lorthois. Going beyond 20 μm -sized channels for studying red blood cell phase separation in microfluidic bifurcations. *Biomicrofluidics*, 10(3), 2016.
- [133] Wei Zhang, Xiangyu Tang, Noam Weisbrod, and Zhuo Guan. A review of colloid transport in fractured rocks. *Journal of Mountain Science*, 9(6) :770–787, 2012.
- [134] Wenshan Guo, Huu Hao Ngo, and Jianxin Li. A mini-review on membrane fouling. *Bioresource Technology*, 122 :27–34, 2012.
- [135] George M. Whitesides. The origins and the future of microfluidics. *Nature*, 442(7101) :368–373, 2006.
- [136] Alvaro Marin, Henri Lhuissier, Massimiliano Rossi, and Christian Kähler. Clogging in constricted suspension flows. *Physical Review E*, 97(2) :21102, 2018.
- [137] Mathieu Souzy, Iker Zuriguel, and Alvaro Marin. Transition from clogging to continuous flow in constricted particle suspensions. *Physical Review E*, 101(6) :1–6, 2020.
- [138] Olivier Liot, Akash Singh, Patrice Bacchin, Paul Duru, Jeffrey F. Morris, and Pierre Joseph. Pore cross-talk in colloidal filtration. *Scientific Reports*, 8(1) :1–7, 2018.
- [139] Alban Sauret, Katarzyna Somszor, Emmanuel Villermaux, and Emilie Dressaire. Growth of clogs in parallel microchannels. *Physical Review Fluids*, 3(10) :1–18, 2018.
- [140] Q. Liu, B. Zhao, and J. C. Santamarina. Particle Migration and Clogging in Porous Media : A Convergent Flow Microfluidics Study. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 124(9) :9495–9504, 2019.
- [141] Sandeep D. Kulkarni, Bloen Metzger, and Jeffrey F. Morris. Particle-pressure-induced self-filtration in concentrated suspensions. *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, 82(1) :1–4, 2010.
- [142] Alexis Mauray, Max Chabert, and Hugues Bodiguel. Yield stress fluid behavior of foam in porous media. *Physical Review Fluids*, 5(9) :094004, 2020.

- [143] R. Courson, S. Cargou, V. Conedera, M. Fouet, M. C. Blatche, C. L. Serpentine, and A. M. Gue. Low-cost multilevel microchannel lab on chip : DF-1000 series dry film photoresist as a promising enabler. *RSC Advances*, 4(97) :54847–54853, 2014.
- [144] Sébastien Wiederseiner, Nicolas Andreini, Gaël Epely-Chauvin, and Christophe Ancey. Refractive-index and density matching in concentrated particle suspensions : A review. *Experiments in Fluids*, 50(5) :1183–1206, 2011.
- [145] Xinqiang Du, Xueyan Ye, and Xiaowan Zhang. Clogging of saturated porous media by silt-sized suspended solids under varying physical conditions during managed aquifer recharge. *Hydrological Processes*, 32(14) :2254–2262, 2018.
- [146] N Roussel, Thi Lien Huong Nguyen, and P Coussot. General probabilistic approach to the filtration process. *Physical review letters*, 98(11) :114502, 2007.
- [147] C Kaiser. A directed percolation model for clogging in a porous medium with small inhomogeneities. *Transport in porous media*, 26(2) :133–146, 1997.
- [148] Laurent Lobry, Elisabeth Lemaire, Frédéric Blanc, Stany Gallier, and François Peters. Shear thinning in non-brownian suspensions explained by variable friction between particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 860 :682–710, 2019.