Etude des écoulements de mousse à effet bloquant en milieu de haute perméabilité, pour la remédiation des sols et nappes souterraines.

Romain Aranda

▶ **To cite this version:**

Romain Aranda. Etude des écoulements de mousse à effet bloquant en milieu de haute perméabilité, pour la remédiation des sols et nappes souterraines.. Mécanique [physics]. Université de Bordeaux, 2020. Français. NNT : 2020BORD0068 . tel-03651009

HAL Id: tel-03651009

https://theses.hal.science/tel-03651009

Submitted on 25 Apr 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.

École doctorale
Sciences physiques
et de l'ingénieur

université de BORDEAUX

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

Ecole Doctorale des sciences physiques et de l'ingénieur
Spécialité : Mécanique

Soutenue le 09 juillet 2020, par :

Romain ARANDA

Pour obtenir le grade de :

Docteur de l'Université de Bordeaux

Étude des écoulements de mousse à effet bloquant en milieu de haute perméabilité pour la remédiation des sols et nappes souterraines

---

Sous la direction de : **Henri BERTIN**

Devant le jury composé de :

Mme. Azita AHMADI Professeure des Universités, I2M - Université de Bordeaux	**Présidente**
M. Daniel BROSETA Professeur des Universités, Université de Pau et des Pays de l'Adour	**Rapporteur**
M. Yves MÉHEUST Maître de conférences, Géosciences Rennes - Université Rennes 1	**Rapporteur**
M. Abdelaziz OMARI Professeur des Universités, I2M - Université de Bordeaux	**Examinateur**
M. Hossein DAVARZANI Cadre scientifique des EPIC, BRGM	**Co-encadrant**
M. Henri BERTIN Directeur de recherche, I2M - Université de Bordeaux	**Directeur de thèse**
M. Fabien LAURENT Ingénieur de recherche, Solvay Centre de Recherche	**Invité**

Titre :

Etude des écoulements de mousse à effet bloquant en milieu de haute perméabilité pour la remédiation des sols et nappes souterraines.

Résumé :

Dans le domaine de la dépollution des sols en zone saturée, il est parfois nécessaire de confiner une source afin de pouvoir mener un traitement efficace *in situ*. Le confinement permet notamment d'augmenter le temps de contact entre les réactifs injectés et le polluant. Cette thèse présente l'étude de l'injection de mousse liquide en tant que fluide bloquant. Les travaux se focalisent en particulier sur l'étude de l'écoulement de mousse dans des milieux de haute perméabilité, le confinement étant particulièrement nécessaire dans ce type de milieu où les vitesses d'écoulement sont souvent élevées.

Les travaux ont d'abord consisté à étudier la moussabilité et la stabilité d'une sélection de tensioactifs. Puis, des travaux ont été menés pour étudier les écoulements de mousse dans les milieux de haute perméabilité ($> 4x10^{-10}$ m²). Ces expériences ont été menées dans des colonnes de 30 à 40 cm. Les résultats ont été obtenus par bilan de masse, mesure de la pression et observations visuelles. Ensuite, les écoulements de mousse ont été étudiés dans des bacs fin de 40 cm à 1 m de large. Lors de ces expériences, les écoulements de mousse étaient confrontés à un écoulement croisé d'eau pour simuler un écoulement souterrain. Les observations portaient en particulier sur la capacité de la mousse à détourner cet écoulement ainsi que sa stabilité dans le temps. Les résultats ont été obtenus par bilan de masse, mesure de pression et de saturation, et par une méthode d'analyse photographique développée spécifiquement pour cette étude. Enfin, un modèle numérique a été mis en point pour simuler les résultats expérimentaux et identifier les paramètres contrôlant l'écoulement et la stabilité de la mousse.

Les résultats montrent que le tensioactif alpha-olefine sulfonate est un très bon candidat pour générer des mousses à effet bloquant grâce à sa haute stabilité et moussabilité, couplé à une biodégradabilité rapide. La mousse se comporte comme un fluide très visqueux (> 1 Pa.s) dans les milieux de haute perméabilité si celle-ci est générée grâce à une technique de prégénération. Cette technique consiste à injecter le gaz et le liquide dans un milieu de faible perméabilité (sable fin, verre fritté) afin de créer une mousse fine pour ensuite l'injecter dans un milieu de haute perméabilité. Une injection directe de gaz et de liquide dans un milieu de haute perméabilité ne permet pas d'obtenir une mousse visqueuse. Le comportement rhéofluidifiant

de la mousse a été confirmé pour les milieux de haute perméabilité. La propriété bloquante de la mousse a été démontrée dans les bacs où l'intégralité de l'écoulement d'eau fut détournée pendant l'injection de la mousse. Après la fin de l'injection, la stabilité de la mousse est faible en présence d'un écoulement rapide (10 m/jour) car celui-ci diminue la concentration en tensioactif jusqu'à déstabilisation des lamelles de mousse. Il a été montré que la stabilité est corrélée à la vitesse de l'écoulement d'eau croisé. Après destruction de la mousse, les bulles de gaz piégées dans le milieu poreux contribuent néanmoins à réduire fortement la perméabilité relative à l'eau dans la zone où la mousse a été injectée. La modélisation a montré que le couplage d'un modèle d'écoulement diphasique en milieu poreux à un modèle de transport de soluté pour le tensioactif permettait de retrouver des résultats proches des résultats expérimentaux.

L'ensemble des résultats montrent que l'utilisation de mousse comme fluide bloquant dans le domaine de la dépollution des sols saturé de haute perméabilité est prometteur. Ce manuscrit donne des pistes concernant l'utilisation industrielles de ce fluide qui peut être difficile à maîtriser en milieu poreux.

Mots clés :

Mousse – Remédiation – Milieux poreux – Haute perméabilité

Unité de recherche :

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

Title:

Study of blocking foam flow in high permeability porous media for the remediation of soils and groundwater.

Abstract:

During soil remediation of saturated zones, it is sometimes necessary to confine a source in order to be able to carry out an effective treatment in situ. Confinement increases the contact time between the injected chemicals and the pollutant. This thesis presents the study of the injection of liquid foam as a blocking fluid. The work focuses especially on the study of foam flow in high permeability media, as containment is particularly necessary in this type of soils where flow rates are often high.

The first step consisted in studying the foamability and stability of a selection of surfactants. Then, we studied foam flows in high permeability media (> $4x10^{-10}$ m²). These experiments were carried out in columns 30 to 40 cm long. We used mass balance, pressure measurement and visual observations to obtain results. Then, we studied foam flow in thin tanks 40 cm to 1 m wide. In these experiments, there was a simultaneous water crossflow along a direction transverse to that of the foam flow to model a groundwater flow. The observations focused particularly on the ability of the foam to divert the water flow as well as its stability over time. To obtain results, we used mass balance, pressure and saturation measurement, and a photographic analysis method developed specifically for this study. Finally, we developed a numerical model to simulate the experimental results and to identify the parameters controlling the flow and stability of the foam.

The results show that alpha-olefin sulfonate surfactant is a very good candidate for generating blocking foams thanks to its high stability and foamability, and is readily biodegradable. The foam behaves like a very viscous fluid (> 1 Pa.s) in high permeability media if it is generated using a pre-generation technique. This technique consists in injecting the gas and the liquid into a low permeability medium (fine sand, sintered glass) to create a fine foam and then injecting it into a high permeability medium. Direct injection of gas and liquid into a high permeability medium does not generate a viscous foam. We confirmed the shear-thinning behavior of the foam in high permeability media. We demonstrated the blocking property of the foam in tanks where foam diverted the whole water flow during foam injection. After the end of the injection, the stability of the foam is poor in the presence of a fast crossflow (10 m/day) because the latter decreases the concentration of surfactant until it destroys foam lamella. We showed that

stability correlates with the speed of the water crossflow. After destruction of the foam, the gas bubbles trapped in the porous medium contribute to greatly reducing the relative permeability to water in the area where we injected foam. The modeling showed that the coupling of a two-phase flow model in porous media with a solute transport model for the surfactant gives results consistence with the experimental results.

All the results show that the use of foam as a blocking fluid in remediation of saturated soils is promising. This manuscript gives some hints concerning the industrial use of this fluid that can be difficult to control in porous media.

Keywords:

Foam – Remediation – Porous media – High permeability

Research Unit:

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

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier le BRGM, Rhodia Chimie et l'ADEME de m'avoir permis de réaliser cette thèse grâce à leur financement.

Je remercie les examinateurs, Azita Ahmadi et Abdelaziz Omari, d'avoir accepté de faire partie de mon jury et les rapporteurs, Daniel Broseta et Yves Méheust, de me faire l'honneur de prendre de leur temps pour évaluer ces travaux.

Je remercie chaleureusement mon directeur de thèse, Henri Bertin, d'avoir dirigé avec attention cette thèse, pour son soutien et pour sa positivité à toute épreuve. Ton encadrement scientifique et humain m'ont fait grandement évoluer au cours de ces trois années.

Je remercie mon encadrant, Hossein Davarzani, qui a endossé un rôle de co-directeur de thèse pendant mes travaux au BRGM. Merci de m'avoir sorti de nombreuses situations bloquantes grâce à tes précieux conseils et d'avoir fait de cette thèse ambitieuse une réalité.

Je remercie les membres du consortium FAMOUS pour leur professionnalisme et leur bienveillance qui ont permis à cette thèse d'avoir un cadre applicatif. Merci à Julien Maire et Nicolas Fatin-Rouge pour leurs échanges constructifs, Stéfan Colombano pour ses conseils judicieux, Mathias Broquaire pour sa gestion efficace et Antoine Joubert pour son expertise du terrain. Je remercie en particulier Fabien Laurent de m'avoir suivi de près et d'avoir apporté un regard extérieur et pertinent sur mes travaux.

Merci aux responsables d'unité et de laboratoire, Wahbi Jomaa du laboratoire TREFLE de l'I2M et Hubert Leprond de l'unité 3SP du BRGM, de m'avoir accueilli dans leurs équipes respectives. Merci aux personnes travaillant dans ces unités et laboratoires pour leur accueil.

Un grand merci à toutes les personnes qui ont pris de leur temps pour m'aider au cours de ma thèse : Audrey Duphil, Muriel Ezan-Bore, Catherine Crouzet, Dominique Breeze, Thibauld Conte, Benoit Henri, Julie Clarec, Michaelle Didier et bien d'autres.

Je suis très reconnaissant envers Fally, stagiaire avec qui j'ai eu le plaisir de travailler, et qui a grandement participé à la collecte des données expérimentales.

Merci à mes collègues qui ont permis à cette aventure de se dérouler dans un environnement convivial et qui sont devenus mes amis : Marie, Adrien, Aliénor, Romain, José, Dung, Yibiao, Ying Ying, Vincent, Bauka, Victor, Mira, Miguel, Marita, Natacha, Sofia, Safae, Chloé, Maxime B. et Clothilde. J'adresse des remerciements tout particuliers à Nicolas, Maxime C. et Sagyn pour nos nombreux débats scientifiques qui ont été décisifs.

Merci à toutes les personnes que j'ai rencontrées et qui m'ont enrichi de leur gentillesse ces trois dernières années. En particulier, merci aux Poozers : Marko, Pierre, Dorian et toute la bande de la rue Dulamon pour votre bonne humeur et votre soutien. Merci à Samy et William de m'avoir hébergé lors de mes premières semaines à Lyon et Bordeaux respectivement.

Un gigantesque merci à mes colocataires de la Cornerie : Arnaud, Baptiste, Cécile, Héloïse, Rémi, Bubulle et Oz. Vous êtes indissociables de l'accomplissement de cette thèse.

Merci Sahar pour tout ce que tu m'as apporté.

Enfin, je souhaite remercier ma famille qui m'a toujours soutenu et en particulier mes formidables parents qui ont fait de moi l'homme que je suis aujourd'hui.

Table des matières

Chapitre 1 – Introduction et Contexte 1

1. Introduction générale 2
   1.1. Les différents types de pollution 2
   1.2. Les techniques de dépollution 4
      1.2.1. Traitements *in situ* 4
      1.2.2. Traitements *ex situ* 5
      1.2.3. Traitements par confinement 5
2. Contexte de l'étude 6
   2.1. Le projet FAMOUS 6
   2.2. Contexte hydrogéologique du site d'étude 8
   2.3. Contexte de pollution 9
3. Plan de thèse 10

Chapitre 2 – Etat de l'art 11

1. Milieux poreux 12
   1.1. Définitions générales 12
   1.2. Loi de darcy monophasique 13
   1.3. Loi de Darcy multiphasique, perméabilité relative, pression capillaire 14
2. Mousse hors milieux poreux 17
   2.1. Les tensioactifs 17
   2.2. La mousse, définitions 18
   2.3. Mécanisme de destruction : Mûrissement d'Ostwald et coalescence 20
   2.4. Stabilité hors milieux poreux : dynamique de destruction 21
3. Mousse en milieu poreux 23
   3.1. Mécanismes de formation in situ 23
   3.2. Pression capillaire et pression de disjonction 25
   3.3. Resistance Factor 27
   3.4. Réduction de la mobilité 30
   3.5. Comportement non-Newtonien 30
   3.6. Mousse faible et mousse forte 31
   3.7. Stabilité de la mousse en présence d'une phase organique 32
   3.8. Mousse en milieux poreux de haute perméabilité 34

3.9. Mousse en milieux fracturés 34
4. Mousse et dépollution 35
4.1. Les différentes techniques d'utilisation de la mousse en dépollution 35
4.2. Exemple d'une application terrain 37
4.3. Objectif et verrous scientifiques 37

Chapitre 3 – Sélection des molécules d'étude 39
1. Choix des tensioactifs 40
1.1. Critères de sélection 40
1.1. Descriptions des tensioactifs 40
2. Mesure de la CMC 42
2.1. Méthode de la goutte pendante. 42
2.2. Résultats 44
3. Moussabilité et stabilité : Matériel et méthodes 45
3.1. Choix de la concentration en tensioactif 45
3.2. Test de moussabilité 45
3.3. Test de stabilité 46
4. Moussabilité et stabilité : Résultats 48
4.1. Moussabilité 48
a. Influence de la formulation 48
b. Influence de la concentration 48
4.2. Stabilité 49
a. Influence de la formulation 49
b. Influence de la concentration 52
5. Conclusions intermédiaires 54

Chapitre 4 – Etude expérimentale en colonnes 56
1. Matériel et méthodes 57
1.1. Matériel et fluides 57
1.1.1. Milieux poreux 57
1.1.2. Solutions de tensioactif 61
1.1.3. Gaz 61
1.2. Dispositif expérimental 61
1.3. Protocoles expérimentaux 63

1.3.1. Préparation des milieux poreux 63
1.3.2. Injection de la mousse 63
1.4. Analyse des données 65
2. Influence de la technique d'injection 66
2.1. Comparaison de la co-injection et de la prégénération 66
2.1.1. Régimes d'écoulement 66
2.1.2. Equilibre des forces 67
2.1.3. Taille des bulles 68
2.1.4. Ecoulement transitoire 69
2.2. Influence de la perméabilité du prégénérateur 71
3. Discussions complémentaires 74
3.1. Compressibilité de la mousse en milieu poreux 74
3.2. Temps de percée 75
3.3. Valeurs des saturations en liquide 77
4. Influence de la perméabilité et comportement non-Newtonien 78
5. Influence de la formulation de tensioactif 82
5.1. MELANGE 82
5.2. AOS avec gomme de Guar 82
6. Resistance de la mousse à un écoulement d'eau 84
7. Conclusions intermédiaires 86

Chapitre 5 – Etude expérimentale en bacs 88
1. Matériel et méthodes 89
1.1. Matériel et fluides 89
1.1.1. Solutions de tensioactif 89
1.1.2. Gaz 90
1.1.3. Pré-générateur 90
1.1.4. Milieux poreux 90
1.1.5. Bacs et circuits fluides 90
1.1.6. Sondes TDR et capteurs de pressions 92
1.1.7. Prise de photographie 96
1.2. Protocoles expérimentaux 98
1.2.1. Préparation des milieux poreux 98
1.2.2. Préparation du pré-générateur 98

1.2.3. Déroulement des expériences 98
1.2.4. Variation du type d'écoulement latéral 99
1.3. Analyse photographique 99
1.3.1. Passage en niveaux de gris 100
1.3.2. Maillage 100
1.3.3. Uniformisation 102
1.3.4. Variation entre les photographies 103
1.3.5. Calibration de la relation Intensité – Saturation 104
1.3.6. Visualisation 106
1.3.7. Validation de la méthode 106
1.4. Analyse des sondes TDR 108
1.4.1. Estimation de l'incertitude de mesure 109
2. Ecoulement et stabilité de la mousse 110
2.1. Propagation du front 110
2.1.1. Définition des paramètres géométriques descriptifs 110
2.1.2. Répétabilité des résultats 112
2.1.3. Observations générales 114
2.1.3.1. Evolution temporelle du rayon d'action 114
2.1.3.2. Circularité et rapport de forme 116
2.1.3.3. Mousse faible et gaz libre 116
2.2. Blocage de l'écoulement 118
2.3. Stabilité de la mousse en milieu poreux 119
2.4. Evolution des champs de pression et de saturation 123
2.4.1. Pression d'injection 123
2.4.2. Champs de pression 125
2.4.3. Champs de saturation 127
2.4.3.1. Comparaison entre mesures TDR et analyse photographique 132
3. Influence de l'écoulement latéral 135
3.1. Influence du type d'écoulement 135
3.1.1. Bac S 135
3.1.1.1. Influence sur la propagation du front 135
3.1.1.2. Influence sur la stabilité 137
3.1.2. Bac L 139
3.1.2.1. Influence sur la propagation du front 139
3.2. Influence de la vitesse de l'écoulement 141

3.2.1. Influence sur la propagation du front 141
3.2.2. Transport du tensioactif dû à l'écoulement latéral 143
3.2.3. Influence de la vitesse sur la stabilité de la mousse 144
4. Conclusions intermédiaires 146

Chapitre 6 – Modélisation numérique 148
1. Modélisation des écoulements diphasiques en milieu poreux 149
1.1. Equations de base 149
1.2. Formulation du modèle « pression-pression » 150
1.3. Formulation du « *mixture model* » 151
1.4. Formulation « *fractional flow* » 154
2. Modélisation de la mousse en milieu poreux 156
2.1. Modèles empiriques 156
2.2. Modèles mécanistiques 160
3. Approche utilisée dans cette étude 161
3.1. Ecoulements diphasiques en milieu poreux : Hypothèses et paramètres .. 161
3.2. Modèle de MRF 162
3.2.1. Comportement non-Newtonien 162
3.2.2. Influence de la concentration en tensioactif 164
3.2.3. Influence de la pression capillaire critique 165
3.2.4. Expression finale du MRF 165
3.3. Transport de soluté en milieu poreux : Hypothèses et paramètres 166
4. Intégration numérique 168
4.1. Géométrie et maillage 168
4.2. Equations, conditions limites et initiales 169
4.2.1. Ecoulement diphasique en milieu poreux 169
4.2.2. Transport de soluté en milieu poreux 171
5. Estimation des paramètres 172
5.1. Modèle « injection » 172
5.2. Modèle « stabilité » 173
6. Résultats 175
6.1. Modèle « injection » 175
6.1.1. Champ de saturation 175
6.1.2. Rayon d'action 177

6.1.3. Pression d'injection 178
6.1.4. Champs de pression 179
6.1.5. Champ de viscosité 180
6.2. Modèle « stabilité » 181
6.2.1. Rayons d'action 181
6.2.2. Champs de saturation 182
7. Conclusions intermédiaires 185

Chapitre 7 – Conclusions générales et perspectives 186
1. Conclusions générales 187
2. Perspectives 190
2.1. Perspectives expérimentales 190
2.2. Perspectives numériques 190
2.3. Perspectives d'application sur le terrain 191

Annexes 193
Bibliographie 209
Liste des figures 216
Liste des tableaux 221

Liste des symboles

Symbole	Description	Unité
A	Aire	m^2
A_b	Absorbance	-
AR	Rapport de forme	-
B	Coefficient de pontage	$N^2.m^{-2}$
Bo	Nombre de Bond	-
c	Concentration	$mol.m^{-3}$
C	Circularité	-
Ca	Nombre capillaire	-
$C_{p,w}$	Capacité spécifique de la phase mouillante	Pa^{-1}
OD	Profondeur optique	-
D_c	Diffusion capillaire	Pa.s
d_{50}	Diamètre médian	m
D_D	Tenseur de dispersion mécanique	$m^2.s^{-1}$
D_e	Tenseur de de diffusion effectif	$m^2.s^{-1}$
D_m	Coefficient de diffusion moléculaire	$m^2.s^{-1}$
d_{pore}	Diamètre de pore	m
D_T	Tenseur de dispersion total	$m^2.s^{-1}$
E	Coefficient d'entrée	$N.m^{-1}$
e	Epaisseur du milieu poreux en bac	m
f_g	Qualité de la mousse / Fraction volumique de gaz	-
f_w	Fraction volumique de liquide	-
g	Accélération de la pesanteur	$m.s^{-2}$
h	Epaisseur de la lamelle	m
	Hauteur du milieu poreux saturé en bac	m
H	Hauteur du milieu poreux en bac	m
h^*	Epaisseur critique de la lamelle	m
I	Intensité lumineuse	-
K_a	Permittivité relative	-
k_r	Perméabilité relative	-
L	Longueur	m
l	Longueur du milieu poreux en bac	m
	Longueur	m

Symbole	Description	Unité
m_{VG}	Paramètre de van Genuchten	-
M	Masse molaire	$kg.mol^{-1}$
m	Masse	kg
$\dot{m}$	Débit massique	$kg.s^{-1}$
$mesh$	Taille maximale de maille	m
MRF	Coefficient de réduction de la mobilité	-
n_{VG}	Paramètre de van Genuchten	-
n	Indice d'écoulement d'une loi puissance	-
	Nombre de bulles	-
n_p	Indice d'écoulement associé à la pression	-
p	Pression	Pa
P	Périmètre	m
p_c	Pression capillaire	Pa
p_c^*	Pression capillaire critique	Pa
Pe	Nombre de Peclet	-
q	Vitesse de Darcy	$m.s^{-1}$
Q	Débit	$m^3.s^{-1}$
R	Rayon de courbure	m
r	Taux de coalescence/ Taux de génération	s^{-1}
RF	Resistance Factor	-
ROI	Rayon d'action	m
S	Saturation	-
Se	Saturation effective	-
SP	Coefficient d'étalement	$N.m^{-1}$
S_r	Saturation résiduelle	-
S_s	Saturation maximale	-
S_w^*	Saturation critique en liquide	-
T	Température	K
t	Temps	s
V	Volume	m^3
v	Vitesse	$m.s^{-1}$
Wo	Nombre de Worthington	-

Liste des lettres grecques

Symbole	Description	Unité
α_L	Dispersivité longitudinale	m
α_T	Dispersivité transverse	m
α_{VG}	Paramètre de van Genuchten	m^{-1}
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement	s^{-1}
ε	Absorptivité	$m^2.mol^{-1}$
θ	Teneur en eau / Fraction volumique	-
κ_{int}	Perméabilité intrinsèque	m^2
λ	Mobilité de la phase	$Pa^{-1}.s^{-1}$
	Coefficient correcteur de l'intensité lumineuse	-
λ_r	Mobilité relative	-
μ	Viscosité dynamique	Pa.s
ν	Viscosité cinématique	$m^2.s^{-1}$
Π	Pression de disjonction	Pa
Π_A	Contribution attractive à la pression de disjonction	Pa
Π_R	Contribution répulsive à la pression de disjonction	Pa
Π_{max}	Pression de disjonction critique	Pa
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-3}$
σ	Tension de surface	$N.m^{-1}$
τ	Tortuosité	-
Φ	Flux énergétique	W
ϕ	Porosité	-

Liste des abréviations

Abréviation	Signification
AOI	Area Of Interest
AOS	Alpha Olefine Sulfonate
BTEX	Benzène, Toluène, Ethylbenzène et Xylènes
CAB	Cocamidopropyl Betaine
CMC	Concentration Micellaire Critique
COT	Carbone Organique Total
DNAPL	Dense Non Aqueous Phase Liquid
EOR	Enhanced Oil Recovery
ETD	Ethoxylated Tridecanol
HAP	Hydrocarbure Aromatique Polycyclique
HCH	Hexachlorocyclohexane
L	Large – Taille de bac
M	Medium – Taille de bac
MRF	Mobility Reduction Factor
PCB	Polychlorobiphényle
PCT	Polychloroterphényle
PVC	Polychlorure de Vinyle
RF	Resistance Factor
S	Small – Taille de bac
SAG	Surfactant-Alterning-Gas
SLSA	Sodium Lauryl Sulfoacetate
TCB	Trichlorobenzène
TCE	Trichloréthylène
TDR	Time Domain Reflectometer
VER	Volume Elémentaire Représentatif
VP	Volume de Pore

Chapitre 1

Introduction et Contexte

1. Introduction générale

Un sol est dit contaminé lorsqu'une substance qui n'est pas naturellement présente dans un sol est mesurée en quantité non négligeable. Si la substance présente un danger pour l'homme ou l'écosystème, le sol est dit pollué.

La pollution des sols provoquée par l'activité humaine est un problème sanitaire et environnemental majeur. Avec la prise de conscience de ce problème ces dernières décennies, les pouvoirs politiques ont pris des mesures pour limiter le nombre de nouvelles contaminations et pour procéder à la dépollution des sols. Dans cette optique, les ingénieurs et chercheurs ont mis au point des techniques de dépollution pour répondre aux besoins de chaque type de sol et chaque type de pollution. Bien que de nombreuses avancées aient été effectuées, la dépollution des sols apparaît toujours comme une entreprise complexe et certaines situations sont toujours en attente de la mise au point d'une technologie efficace. Ci-après sont présentés les différents types de pollution et les techniques existantes pour les traiter.

1.1. Les différents types de pollution

Les pollutions affectant les sols peuvent être classifiées selon la durée de la contamination :

- Pollution accidentelle : grande quantité de polluants déversée sur une courte durée de temps (exemple : renversement d'un camion-citerne) ;
- Pollution chronique : pollution déversée pendant des années voire des décennies (exemple : fuite d'une cuve de stockage).

Les types de pollution sont aussi classifiés selon leur étendue :

- Pollution locale : pollution dont la source est identifiée et contenue (exemple : rejets d'une usine) ;
- Pollution diffuse : source de pollution étendue et qui se transporte par infiltration et ruissellement (exemple : utilisation de pesticide dans une exploitation agricole).

Les pollutions peuvent être d'origines diverses. Trois grandes classifications sont retenues : industrielle, urbaine ou agricole.

La base de données française BASOL répertorie les sites et sols pollués ou potentiellement pollués en France. La base de données répertorie 7242 sites. Ces sites se trouvent sur l'ensemble du territoire et sont étroitement liés à l'histoire de chaque région. Les régions étant ou ayant été très industrialisées sont particulièrement touchées (Alsace, Auvergne, Lorraine, Champagne-Ardenne, Rhône-Alpes). En Tableau 1 sont présentés les types de polluants et leurs occurrences

associées sur la totalité des sites répertoriés sur BASOL. 48,91 % des sites ont un impact constaté à ce jour, parmi lesquels 72,66 % dans les eaux souterraines.

Tableau 1. Nature des principaux polluants et occurrence. Source : BASOL (au 10/04/2020).

Type de polluants	**Occurrence**
Eléments traces métalliques	28,89 %
Sulfates	0,10 %
Chlorures	0,07 %
Ammonium	0,23 %
BTEX	1,04 %
TCE	0,37 %
Hydrocarbures	11,53 %
H.A.P.	5,42 %
Cyanures	1,74 %
PCB-PCT	1,74 %
Solvants halogénés	4,25 %
Solvants non halogénés	1,18 %
Pesticides	0,45 %
Autres	42,99 %

Parmi ces polluants, certains d'entre eux peuvent être présents sous la forme de *Dense Non-Aqueous Phase Liquid* (DNAPL). Un DNAPL est un liquide non miscible avec l'eau et dense ce qui provoque, sous l'effet de la gravité, un déplacement vertical des polluants dans l'aquifère jusqu'à une éventuelle accumulation dans sa partie inférieure. En Figure 1 est représenté un schéma conceptuel de la migration d'un DNAPL dans le sol. Lors de cette migration, deux types de zones contaminées se distinguent : la source et le panache. La source est la zone où est piégée la phase pure du polluant. Cette phase étant plus dense que l'eau, elle est principalement retrouvée au fond des aquifères. Le panache s'étant sur une zone plus étendue en aval de la zone source. Il est composé d'un mélange d'eau et de particules polluantes déplacées par des mécanismes d'advection, dispersion ou diffusion. Ces particules s'adsorbent dans le sol et créent ainsi une contamination durable dans cette zone.

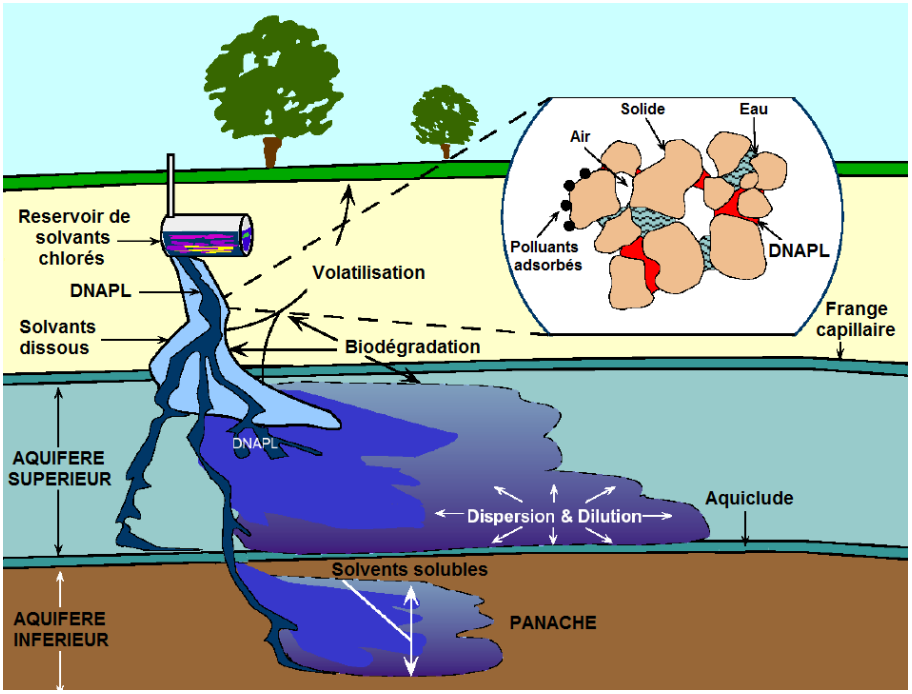


Figure 1. Schéma conceptuel de la migration du DNAPL (Estrada, 2014).

1.2. Les techniques de dépollution

Il existe différentes techniques pour traiter les sols et nappes souterraines polluées. Une revue récente sur ces techniques peut être trouvées dans les travaux de Ossai *et al.* (2020). Certaines d'entre elles sont brièvement discutées dans la suite de cette section.

1.2.1. Traitements *in situ*

Les traitements *in situ* sont réalisés directement dans le sol. Pour ces méthodes, il est possible d'injecter des réactifs chimiques pour transformer les polluants en composés non polluants, notamment par oxydation (Besha *et al.*, 2018). Certaines recherches ont également porté sur l'utilisation de bactéries accompagnées de nutriments qui utilisent les polluants comme source de carbone et dégradent ainsi ceux-ci (Fritsche and Hofrichter, 2000). Pour traiter des polluants volatiles, il est également possible d'utiliser la technique de « *venting* » en zone non-saturée ou « *sparging* » en zone saturée qui consiste à injecter du gaz pour vaporiser les polluants et les récupérer en surface (Toth and Mizsey, 2015). Une autre solution consiste à pomper la phase pure de la pollution ou à désorber la phase résiduelle à l'aide de tensioactif et pomper celle-ci, éventuellement avec un soutien thermique (Liu *et al.*, 2019). Similairement aux méthodes employées dans la récupération assistée du pétrole, les polluants peuvent être déplacés en injectant de l'eau, de la vapeur ou des fluides visqueux et être récupérés dans un puits de pompage. La phytorémédiation est également une technique de dépollution *in situ*. Cette technique utilise des végétaux pour extraire les polluants via les réseaux racinaires

(phytoextraction) ou permet de stabiliser la pollution pour éviter qu'elle ne migre (phytostabilisation) (Razzaq, 2017). Son domaine d'intervention étant limité à la profondeur du réseau racinaire, la phytorémédiation est particulièrement efficace pour les pollutions aux métaux dont la migration est limitée dans le sol. Ces techniques *in situ* sont les techniques les plus étudiées actuellement dans le domaine de la recherche et de l'ingénierie car elles permettent de traiter des sols sans les déplacer ou les dégrader. De plus, celles-ci peuvent se montrer relativement économique. Ces techniques sont en revanche très sensibles aux polluants ciblés, il est très difficile de développer une méthode générale *in situ* permettant de dépolluer un grand panel de polluants. De plus, ces techniques sont rarement efficaces à 100 % et ne permettent donc pas de supprimer l'entièreté de la pollution d'un site.

1.2.2. Traitements *ex situ*

Les traitements *ex situ* consistent à excaver les terres polluées pour les traiter a posteriori. Celles-ci peuvent être traitées directement sur le site (traitements « sur site ») ou envoyées dans un centre de traitement spécialisé (traitements « hors site »). Ces terres peuvent être lavées par des solvants (Murena and Gioia, 2009), stabilisées chimiquement (Banaszkiewicz and Marcinkowski, 2017), incinérées (Vidonish *et al.*, 2016) ou isolées pour éviter la dispersion des polluants. L'excavation et le traitement des terres excavées sont des processus qui ne peuvent être utilisés que sur des masses de sols limitées et à des profondeurs limitées. L'excavation est aussi inutilisable dans un environnement industriel dense ou dans des lotissements urbains. Néanmoins, cette technique reste très utilisée car elle est très efficace.

1.2.3. Traitements par confinement

Une dernière solution consiste à confiner la pollution là où elle se trouve dans le sol pour éviter de contaminer les sols et eaux souterraines environnantes (Rumer and Ryan, 1995). Cela peut se faire par exemple par l'injection d'argile ou de ciment autour de la source de pollution.

Une étude réalisée pour l'ADEME par Ernst & Young (Perez *et al.*, 2014), publiée en 2014 et se basant sur des données de 2012, dresse l'état du marché de la dépollution en France. Cette étude montre que 51 % en masse des sols traités sont effectués par des techniques *in situ*, et en grande majorité du « *venting* ». 33 % par excavation et traitement « hors site », majoritairement dans des installations de traitement biologique ou de stockage de déchets inertes. 15 % par excavation et traitement « sur site », majoritairement par biodégradation ou stabilisation chimique. Enfin, environ 1 % des sols traités le furent par confinement.

2. Contexte de l'étude

2.1. Le projet FAMOUS

Cette thèse s'inscrit dans un projet de recherche nommé « FAMOUS ». Ce projet est cofinancé par l'ADEME dans le cadre du programme GESIPOL. La bourse de thèse est financée par le département DEPA du BRGM et Rhodia Chimie®. Les autres partenaires du projet sont l'institut I2M de l'université de Bordeaux, l'institut UTINAM de l'université de Franche Comté et l'entreprise de dépollution Serpol®.

Ce projet vise à développer un traitement *in situ* de composés organiques persistants dans des nappes phréatiques hétérogènes à forte vélocité. Les techniques de vectorisation (transport de réactifs vers la zone contaminée) sont peu efficaces dans les milieux très hétérogènes car les fluides s'écoulent uniquement dans les couches les plus perméables. Ces dernières présentant régulièrement des concentrations en polluants plus faibles que les zones de plus faibles perméabilité, il en résulte un traitement non homogène. De plus, lors de ce type de traitement *in situ* dans une nappe à forte vélocité, les réactifs sont déplacés par l'écoulement et ainsi le temps de contact est réduit et peut devenir insuffisant pour garantir l'efficacité de la technique. L'objectif est de développer conjointement une technique de dépollution *in situ* par apport de réactifs et un technique de confinement pour répondre à cette problématique.

L'utilisation d'un fluide très visqueux est une approche intéressante pour dépasser ces limites. Une forte viscosité permet au fluide de s'écouler de manière homogène dans des milieux hétérogènes. Ceci est intéressant pour vectoriser des réactifs vers la zone contaminée et appliquer un traitement de façon homogène. De plus, l'écart de viscosité entre le fluide et l'eau de la nappe permet de détourner les écoulements souterrains et ainsi d'augmenter le temps de contact du traitement *in situ*.

La mousse liquide est une dispersion de bulles de gaz dans une phase liquide qui se comporte comme un fluide très visqueux en milieu poreux. Cette propriété fondamentale en fait un choix prometteur pour répondre aux problématiques posées. L'injection de mousse permet également d'utiliser des tensioactifs biodégradables ce qui permet de réduire l'impact du traitement une fois celui-ci terminé. De plus, la mousse étant composée principalement de gaz, sa production est peu onéreuse. Ce choix est également motivé par des travaux antérieurs montrant en laboratoire ses propriétés en tant qu'aide à la vectorisation de réactifs (Zhong *et al.*, 2011) et moyen d'améliorer le balayage d'une zone (Tang and Kovscek, 2006), entre autres. L'injection de mousse en tant que technique de dépollution a également été expérimentée sur le terrain (Hirasaki *et al.*, 1997; Portois, Essouayed, *et al.*, 2018).

Ainsi, l'étude de l'injection de mousses en milieu poreux de haute perméabilité afin de les utiliser comme technique de dépollution est au cœur du projet FAMOUS. Les travaux de recherche pourront être mis en application sur le terrain lors d'un essai pilote sur un site d'étude qui présente l'ensemble des caractéristiques requises (nappe phréatique à forte vélocité, sol hétérogène et de haute perméabilité). Les caractéristiques hydrogéologiques du site d'étude sont présentées en Partie 2.2.

Deux grandes familles de mousses seront étudiées dans ce projet :

- Les mousses à effet bloquant. L'injection de ces mousses sera utilisée comme technique de confinement pour diminuer la circulation d'eau dans la zone contaminée. Elles seront donc injectées en amont de la zone contaminée. L'étude est axée sur leur viscosité et leur stabilité dans des aquifères de haute perméabilité, en présence d'un écoulement d'eau de forte vélocité. Un schéma conceptuel de l'utilisation de ce type de mousse est présenté en Figure 2.
- Les mousses de désorption et vectorisation. L'injection de ces mousses directement dans la zone contaminée a deux objectifs. Le premier est de désorber les polluants grâce aux propriétés tensio-actives de la mousse. Le second est d'être le vecteur de réactifs permettant de transformer les polluants en composés peu ou pas toxiques. Ces mousses doivent donc avoir une bonne compatibilité chimique avec les réactifs, les polluants et la matrice poreuse et doivent également pouvoir s'écouler de manière homogène dans le milieu pour apporter les réactifs à l'intégralité de la zone contaminée. La réduction de la circulation d'eau par les mousses à effet bloquant est primordiale pour garantir l'efficacité de ce traitement par les mousses de désorption et vectorisation.

L'objectif de cette thèse, au sein du projet FAMOUS, est d'étudier spécifiquement les mousses à effet bloquant. Les principaux défis sont de :

- Développer une formulation de mousses stabilisées dans des aquifères de perméabilités importantes, mais également respectueuse de l'environnement ;
- Etudier expérimentalement la viscosité et la stabilité de ce type de mousse en laboratoire ;
- Modéliser ces fluides complexes à une échelle macroscopique ;
- Faire face au peu de connaissances scientifiques acquises dans ce domaine d'application.

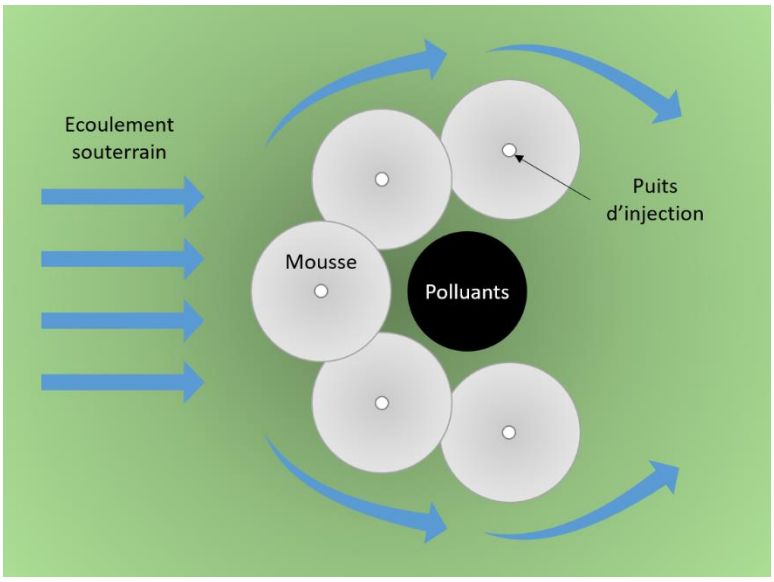


Figure 2. Schéma conceptuel de l'utilisation de mousse à effet bloquant pour confiner une zone polluée. Vue du dessus.

2.2. Contexte hydrogéologique du site d'étude

Une coupe schématique du contexte géologique est présentée en Figure 3. Les sols sont composés d'une fine couche de limon argileux entre 1,5 et 2 m de profondeur, d'alluvions fluvio-glaciaires entre 2 et 77 m et d'argiles noires imperméables à 77 m. Les alluvions sont extrêmement hétérogènes, allant du sable aux galets pluri-centimétriques. La granulométrie des sols s'affine avec la profondeur. Le toit de la nappe se situe à 10 m de profondeur, avec une amplitude de battement de 1 m environ. Les perméabilités mesurées sont généralement comprises entre 10^{-11} et 10^{-9} m² avec des maximums proches de 10^{-8} m². Ces valeurs montrent à la fois l'hétérogénéité du milieu poreux ainsi que sa très grande perméabilité. La porosité moyenne est d'environ 0,40. La vitesse moyenne apparente de la nappe est de 10 m/jour, ce qui est un ordre de grandeur au-dessus des valeurs classiquement mesurées pour les écoulements de nappes phréatiques.

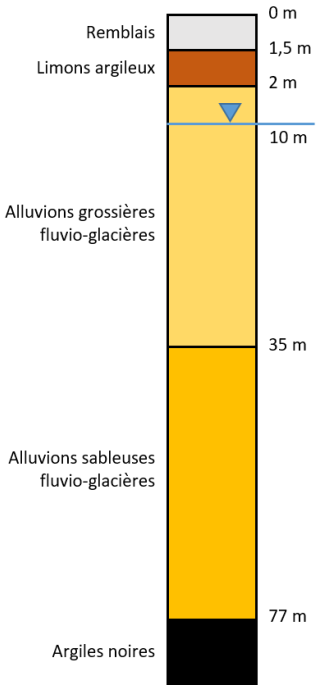


Figure 3. Coupe schématique du site d'étude. Le triangle inversé indique le niveau de la nappe.

Ce site propose donc des caractéristiques hydrogéologiques particulières. Le sol est très perméable, très hétérogène, et la vitesse de nappe est remarquablement élevée. Les caractéristiques hydrogéologiques décrites ci-dessus serviront de base à la conception des études développées dans cette thèse.

2.3. Contexte de pollution

La pollution sur ce site est d'origine historique. Celui-ci fut utilisé pendant des décennies pour la production et le stockage de trichlorobenzènes (TCB) et d'hexachlorocyclohexanes (HCH), notamment le lindane (γ-HCH). Ces polluants peuvent être classifiés comme DNAPL car leur densité est supérieure à celle de l'eau. Les prélèvements effectués sur le site montrent une contamination dans les eaux souterraines. Les polluants sont adsorbés et il n'y a pas de phase pure. Les zones contaminées se situent à une profondeur de 12 à 15 mètres, soit 2 à 5 mètres sous le niveau de la nappe. Celles-ci sont composées d'alluvions grossières fluvio-glaciaires.

3. Plan de thèse

Pour répondre aux problématiques précédemment émises, cette thèse s'articulera autour de cinq chapitres décrits ci-après.

Un état de l'art sera effectué pour comprendre les mécanismes propres à la mousse hors milieu poreux et en milieu poreux. Cet état de l'art sera axé sur les propriétés hydrodynamiques de la mousse, sa génération et sa destruction.

Une procédure de sélection de la formulation du tensioactif à la base de la mousse sera effectuée par une étude expérimentale de moussabilité et de stabilité hors milieu poreux. Les tensioactifs, précédemment sélectionnés pour leurs propriétés moussantes et leur éco-compatibilité avec l'application recherchée, seront comparés sur leurs performances lors de ces tests.

Une fois les tensioactifs sélectionnés, une première étude expérimentale de la mousse dans des milieux poreux de forte perméabilité sera effectuée dans des colonnes pluri-décimétriques. Le déplacement de l'eau par la mousse et sa viscosité seront particulièrement étudiés. Différentes méthodes d'injection de la mousse en milieu poreux seront également expérimentées pour obtenir les propriétés bloquantes les plus optimales.

Après que le comportement de la mousse en milieu poreux de forte perméabilité et l'influence de la technique d'injection ont été compris, une étude expérimentale sera menée dans des bacs pluri-décimétriques à métriques. Dans ces bacs, l'écoulement de mousse sera mis en concurrence avec un écoulement d'eau latéral pour simuler une injection dans une nappe souterraine. Cette étude permettra d'évaluer particulièrement les propriétés bloquantes de la mousse et sa stabilité dans le temps en présence d'un écoulement d'eau.

Ces résultats expérimentaux seront ensuite modélisés numériquement afin de mettre en évidence les mécanismes physiques dominants lors de l'écoulement et de la stabilité de la mousse en milieu poreux de haute perméabilité.

Enfin, les conclusions de ces études seront synthétisées et un ensemble de paramètres pour une application de cette technique de confinement sur le site d'étude sera proposé.

Chapitre 2

Etat de l'art

1. Milieux poreux

1.1. Définitions générales

Un milieu est considéré comme poreux lorsqu'il contient des espaces vides appelés pores. On distingue deux types de milieux poreux en fonction de la structure de la matrice solide. Le milieu peut être consolidé comme la plupart des roches (calcaire, grès) ou non consolidé comme le sable ou les billes de verre. La structure d'une matrice non consolidée peut se modifier si la pression dans les pores est trop élevée. Une matrice consolidée se fracturera de façon irréversible si la pression est trop élevée. En génie pétrolier, on rencontre généralement des milieux consolidés ; cependant, dans la plupart des applications de dépollution, les sols sont plus souvent composés de milieux non consolidés (argiles, sable, graviers, etc.).

Un milieu poreux peut être étudié à différentes échelles : échelle du pore, échelle de Darcy (macroscopique) et échelle du terrain.

A l'échelle des pores, la longueur caractéristique est la taille du pore. Les mouvements des fluides sont décrits par les équations de Navier-Stokes. Une étude à cette échelle est très précise car elle prend en compte chaque phénomène et l'ensemble de la complexité géométrique du milieu. Cependant, la caractérisation d'un sol à cette échelle est difficile et peu efficace dans le cadre d'applications industrielles comme la dépollution des sols.

L'échelle macroscopique, ou échelle de Darcy, introduit le concept de volume élémentaire représentatif (VER). Le VER est le volume minimum permettant d'obtenir les caractéristiques effectives représentatives du milieu. Cependant, cette échelle est limitée par les hétérogénéités macroscopiques qui peuvent apparaître dans un milieu composé de différents matériaux. Cette description permet d'introduire des paramètres pertinents comme la porosité qui est définie comme suit :

$$\phi = \frac{V_V}{V_T} \qquad (1)$$

avec V_T le volume total du VER (m^3) et V_V le volume de vide (m^3) (ou volume de pores) dans ce VER. Il est utile d'introduire la notion de porosité effective qui n'inclut pas le volume des pores isolés dans le calcul du volume de vide, car les fluides ne peuvent pas s'y écouler. La porosité effective est plus pertinente que la porosité pour décrire le mouvement des fluides. Cependant, cette étude traite de milieux poreux granulaires (sables, billes de verre, etc.) de haute perméabilité dans lesquels il n'y a pas de pores isolés. La porosité et la porosité effective sont égales dans ce type de milieu.

La Figure 4 qui représente l'évolution de la porosité en fonction de la longueur caractéristique d'un volume élémentaire représentatif (VER) permet de distinguer les différentes échelles d'intérêt. L'échelle de Darcy correspond à une longueur caractéristique du VER comprise entre L, longueur caractéristique du VER où l'hétérogénéité microscopique disparait, et L^*, longueur caractéristique à partir de laquelle on commence à observer l'impact des variations macroscopique (milieux poreux à couche de porosités différentes par exemple). Ces valeurs dépendent du milieu poreux et de ses hétérogénéités microscopiques et macroscopiques, mais L est généralement estimé comme correspondant à la longueur de plusieurs (dizaines de) fois la taille caractéristique d'un pore. A l'échelle du terrain on utilise également les concepts de porosité, de perméabilité et de loi de Darcy, cependant les dimensions caractéristiques peuvent différer de celles du VER.

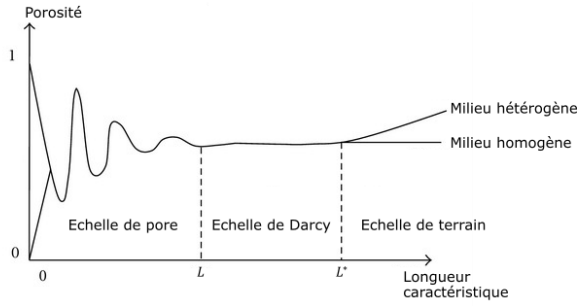


Figure 4. Définitions des différentes échelles, adapté de Bear (1972).

La perméabilité κ_{int} (m^2) est une propriété intrinsèque qui représente la capacité du milieu poreux à laisser s'écouler les fluides. Elle est sensible à la taille et à la géométrie des pores.

1.2. Loi de darcy monophasique

A l'échelle de Darcy, le mouvement des fluides est décrit par la loi de Darcy qui a été découverte expérimentalement par Henri Darcy (1856).

$$\boldsymbol{q} = -\frac{\boldsymbol{\kappa_{int}}}{\mu}(\boldsymbol{\nabla} p - \rho \boldsymbol{g}) \qquad (2)$$

avec $\boldsymbol{q}$ la vecteur vitesse de Darcy (m.s^{-1}), $\boldsymbol{\kappa_{int}}$ le tenseur de la perméabilité intrinsèque du sol (m^2), μ la viscosité dynamique (Pa.s), p la pression (Pa), ρ la densité du fluide (kg.m^{-3}) et $\boldsymbol{g}$ le vecteur accélération de la gravité (m.s^{-2}). La vitesse de Darcy $\boldsymbol{q}$ est la vitesse théorique du fluide si celui-ci s'écoulait dans le domaine vide, sans matrice poreuse. Cependant, comme le fluide ne s'écoule que dans les pores, une évaluation correcte de la vitesse apparente $\boldsymbol{v}$ du fluide à l'échelle de Darcy (également appelée vitesse interstitielle) est :

$$\boldsymbol{v} = \frac{\boldsymbol{q}}{\phi} \quad (3)$$

1.3. Loi de Darcy multiphasique, perméabilité relative, pression capillaire

L'enjeu de cette étude est de modéliser l'injection de mousse en milieu poreux saturé. Pour décrire l'écoulement multiphasique de fluides immiscibles , on utilise la loi de Darcy généralisée (Muskat and Meres, 1936) :

$$\boldsymbol{q_i} = -\frac{\boldsymbol{\kappa_{int}} k_{r,i}}{\mu_i}(\boldsymbol{\nabla} p_i + \rho_i \boldsymbol{g}) \quad (4)$$

avec $\boldsymbol{q_i}$ la vitesse de Darcy de la phase i (m.s^{-1}), $\boldsymbol{\kappa_{int}}$ le tenseur de la perméabilité intrinsèque du sol (m^2), $k_{r,i}$ la perméabilité relative (-), μ_i la viscosité dynamique (Pa.s), p_i la pression (Pa), ρ_i la densité (kg.m^{-3}) de la phase i et $\boldsymbol{g}$ le vecteur accélération de la gravité (m.s^{-2}). La phase mouillante (eau, solution de tensioactif) est désignée par l'indice *w* et une phase non-mouillante (gaz, huile) est désignée par l'indice *nw*.

L'équation de bilan de masse dans un milieu poreux homogène et isotrope s'écrit :

$$\phi \frac{\partial(\rho_i S_i)}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla} \cdot (\rho_i \boldsymbol{q_i}) = 0 \quad (5)$$

avec ϕ la porosité (-) et S_i la saturation de la phase i (-).

La saturation d'une phase est définie comme :

$$S_i = \frac{V_i}{V_V} \quad (6)$$

Avec

$$S_{nw} + S_w = 1 \quad (7)$$

Avec V_i est le volume occupé par la phase i (m^3). Dans certain cas, il peut être plus pratique d'utiliser la fraction volumique θ_i au lieu de la saturation.

$$\theta_i = \frac{V_i}{V_T} = \phi S_i \quad (8)$$

Lors d'un écoulement à deux phases immiscibles, on définit une phase mouillante (eau, solution de tensioactif) désignée par l'indice *w* et une phase non-mouillante (gaz, huile) désignée par l'indice *nw*. La mouillabilité traduit l'aptitude d'un fluide à s'étaler à la surface d'un solide et est notamment quantifiée par sa tension superficielle. On définit également la saturation effective de la phase mouillante Se_w.

$$Se_w = \frac{S_w - S_{r,w}}{S_{s,w} - S_{r,w}} \quad (9)$$

$$Se_w + Se_{nw} = 1 \quad (10)$$

Avec $S_{r,w}$ la saturation résiduelle de la phase mouillante (-) et $S_{s,w}$ la saturation maximale de la phase mouillante (-). La saturation effective varie de 0 à 1 et simplifie la modélisation.

Les pressions des deux phases sont liées par la formulation suivante, définissant la pression capillaire p_c :

$$p_{nw} - p_w = p_c \quad (11)$$

La pression capillaire est définie à l'échelle du pore telle que :

$$p_c = \frac{2\sigma}{R} \quad (12)$$

Avec σ la tension de surface entre les deux phase (N.m^{-1}) et R le rayon de courbure de l'interface entre les deux phases (m).

Pour résoudre la loi de Darcy multiphasique, il faut définir les perméabilités relatives $k_{r,i}$ et la relation entre Se_w et p_c. Chen, Hopmans et Grismer (1999) ont publié une revue des modèles disponibles pour ces expressions et ont testé leur performances en fonction des données expérimentales. Un résumé des différents modèles disponibles est présenté dans l'Annexe A. Les résultats ont montré que la combinaison de la relation pression capillaire – saturation de van Genuchten (Genuchten, 1980) et de la relation perméabilités relatives de Mualem (Mualem, 1976), appelée modèle VGM, est un modèle très utilisé pour modéliser un écoulement diphasique en milieu poreux.

Le modèle de van Genuchten donne une relation empirique entre la saturation effective et la pression capillaire :

$$Se_w = (1 + (\alpha_{VG} p_c)^{n_{VG}})^{-m_{VG}} \quad (13)$$

avec α_{VG} (m^{-1}), n_{VG} (-) et m_{VG} (-) trois paramètres caractéristiques du milieu poreux et la relation :

$$m_{VG} = 1 - \frac{1}{n_{VG}} \quad (14)$$

Ces deux paramètres décrivent la courbe de saturation $Se_w = f(p_c)$ (Figure 5) et doivent être déterminés expérimentalement.

La relation entre S_w et p_c est différente selon l'écoulement ayant lieu dans le milieu poreux. Lorsqu'il s'agit du drainage primaire, c'est-à-dire de l'injection d'une phase non-mouillante dans un sol saturé par une phase mouillante, la saturation de la phase mouillante diminue de 1 à la saturation résiduelle $S_{r,w}$. Lors de l'imbibition primaire, c'est-à-dire de la réinjection de la phase mouillante dans le milieu poreux, la saturation augmente jusqu'à la saturation maximale de la phase mouillante, correspondant à la saturation résiduelle de la phase non-mouillante (voir Figure 5). Ces volumes piégés dans le milieu sont dus à plusieurs phénomènes tel que le by-pass ou le snap-off (Dullien, 1992). Un modèle complet de ces phénomènes a été développé par Parker, Lenhard et Kuppusamy (1987). Plusieurs cycles de drainages et imbibitions sont généralement nécessaire pour atteindre les valeurs finales des saturations résiduelles et maximales.

De plus, il existe un phénomène d'hystérésis dans la relation entre Se_w et p_c entre le drainage et l'imbibition (Bear, 1972). Cela est dû à la modification de l'angle de contact dynamique lors des écoulements. Ce phénomène implique l'existence de deux relations $Se_w = f(p_c)$ en fonction de la nature de l'écoulement.

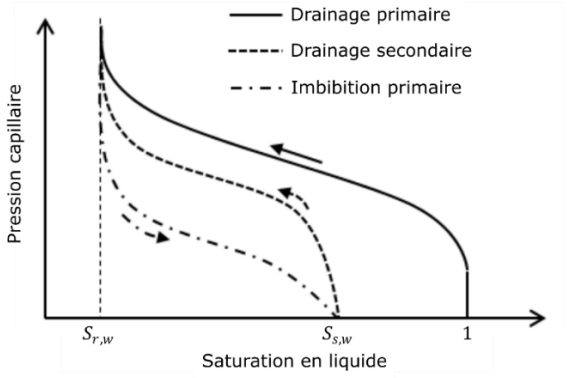


Figure 5. Relation pression capillaire – saturation, adapté de Kantzas, Bryan et Taheri (2012).

Le modèle des perméabilités relatives de Mualem définit une relation entre la perméabilité relative d'une phase et sa saturation effective.

$$k_r = \sqrt{Se}\left(\frac{\int_0^{Se}\frac{dSe}{p_c}}{\int_0^1\frac{dSe}{p_c}}\right)^2 \quad (15)$$

L'introduction du modèle de van Genuchten dans celui de Mualem donne :

$$k_{r,w} = \sqrt{Se_w}\left(1-\left(1-Se_w{}^{1/m}\right)^m\right)^2 \quad (16)$$

$$k_{r,nw} = \sqrt{1 - Se_w}\left(1 - {Se_w}^{1/m}\right)^{2m} \quad (17)$$

2. Mousse hors milieux poreux

2.1. Les tensioactifs

Les tensioactifs sont des molécules organiques constituées de deux parties : une tête hydrophile et une queue hydrophobe. La queue est une longue chaîne hydrocarbonée et la tête est constituée d'un ou plusieurs composés polaires, éventuellement ionisés.

Ces molécules s'adsorbent à l'interface entre un milieu polaire et apolaire (respectivement de l'eau et du gaz dans cette étude), et diminuent la tension de surface entre ces deux milieux. Au-delà d'une certaine concentration, les molécules de tensioactifs forment spontanément des agrégats appelés « micelles ». Cette concentration est appelée Concentration Micellaire Critique (CMC) et correspond à une interface saturée en molécules de tensioactif et à une tension de surface minimale (voir Figure 6).

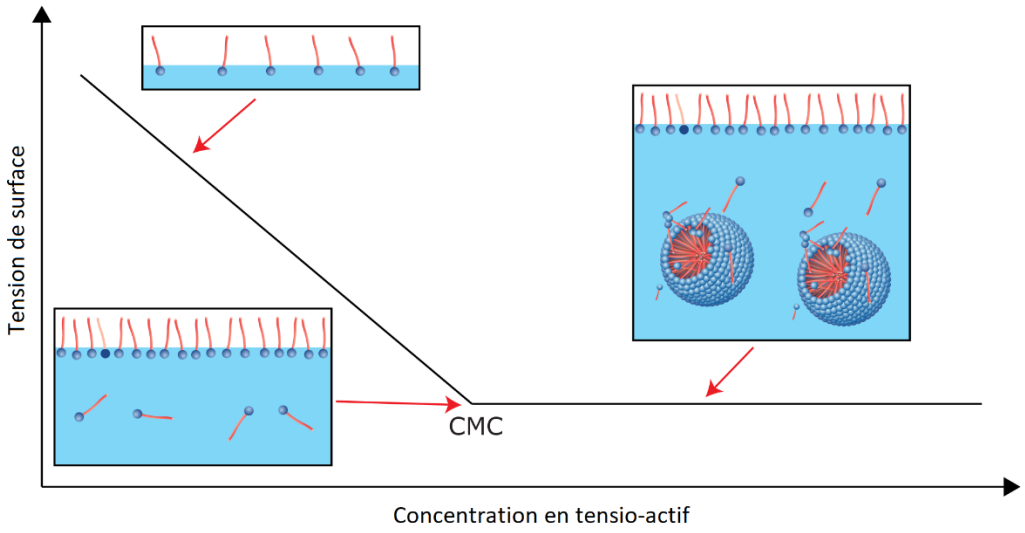


Figure 6. Influence de la concentration de tensioactif sur la tension de surface, adapté de *dataphysics-instruments.com*.

Les tensioactifs peuvent être catégorisés selon la charge électrique présente au niveau de leur tête polaire. Les tensioactifs anioniques disposent d'une charge négative. Cette propriété leur permet de se lier facilement à des composés chargés positivement comme certaines huiles. Ils sont ainsi largement utilisés comme détergent et présentent généralement la capacité de générer beaucoup de mousse. Les tensioactifs cationiques sont chargés positivement. Cette propriété leur permet d'être de bon agent antistatique. Les tensioactifs zwitterionniques, ou amphotères, disposent d'une charge négative et d'une charge positive, ce qui donne une charge de la molécule

neutre. Ces tensioactifs ont des propriétés dépendantes du pH de la solution dans laquelle ils se trouvent. Dans un milieu acide, ils se comportent comme des tensioactifs cationiques, et en milieu basique, ils se comportent comme des tensioactifs anioniques. Enfin, les tensioactifs non-ioniques ne possèdent pas de charge électrique. Ils permettent de réaliser facilement des émulsions avec de l'huile et sont ainsi très utilisés dans les produits d'entretien. Selon les formulations, ils peuvent être plus ou moins moussant. Les tensioactifs non-ioniques peuvent également être facilement associés à d'autres types de tensioactif pour créer une formulation synergique.

2.2. La mousse, définitions

La mousse est composée d'une phase gazeuse dispersée et d'une phase liquide ou solide continue. Dans cette étude ne seront considérées que les mousses liquides. La continuité de la phase liquide est assurée par des films minces qui séparent les bulles de gaz, appelés lamelles. Ces lamelles se rejoignent en des canaux appelés « Bords de Plateau » (voir Figure 7).

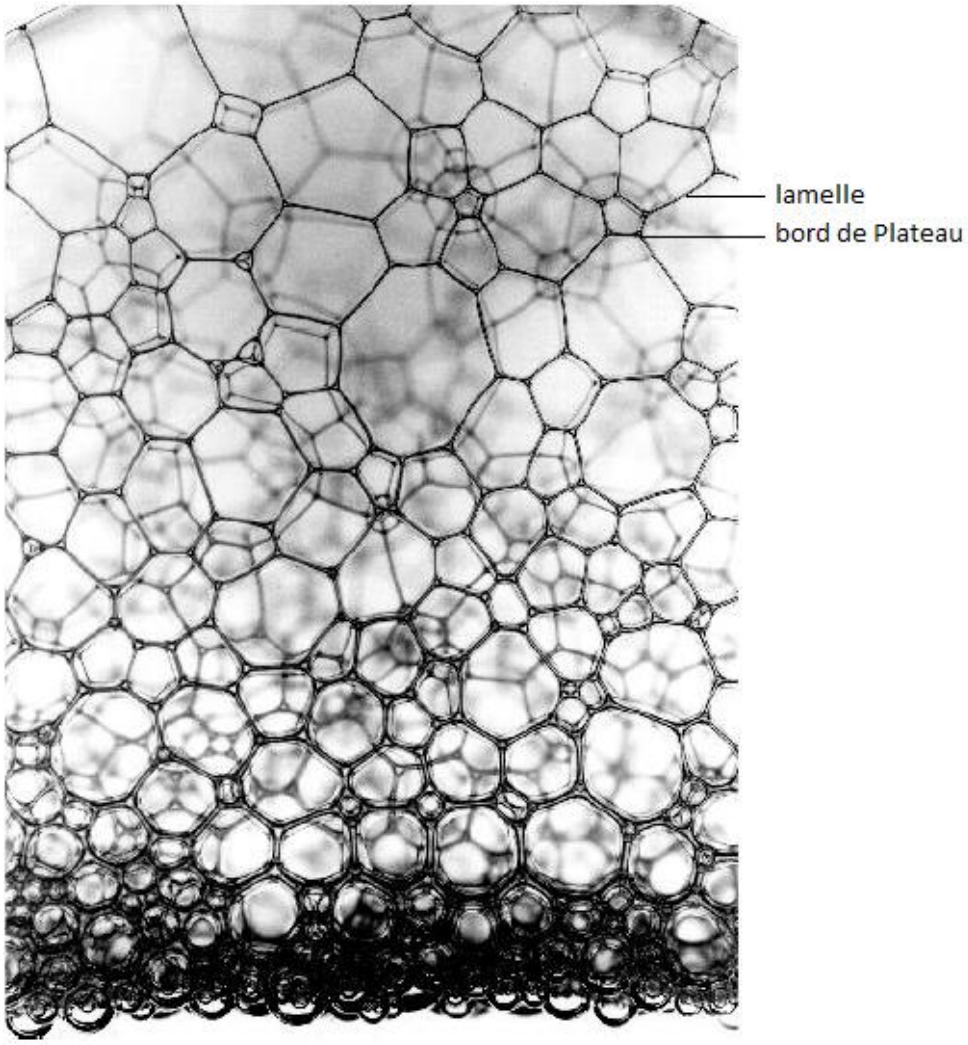


Figure 7. Structure d'une mousse : mousse humide en bas de l'image (bulles sphériques) ; mousse

sèche en haut de l'image (billes polyédriques), adapté de physics.ucla.edu.

Les mousses peuvent être divisées en deux catégories en fonction de la fraction volumique du liquide (Del Campo Estrada, 2014) :

• Les mousses humides, possédant une fraction volumique en liquide élevée (généralement supérieure à 5%), dont les bulles sont sphériques.

• Les mousses sèches, possédant une fraction volumique en liquide faible (généralement inférieure à 5%), dont les bulles sont polyédriques.

La "qualité" d'une mousse désigne sa teneur en gaz, dont la définition est donnée comme suit :

$$f_g = \frac{V_g}{V_{tot}} \quad (18)$$

Avec f_g la qualité (-), comprise entre 0 et 1, V_g le volume de gaz dans une mousse (m^3), V_{tot} le volume total de la mousse (m^3).

Une mousse humide sera de basse qualité et une mousse sèche de haute qualité. Cependant il n'existe pas de lien entre cette notion de qualité et les "performances" que pourraient avoir une mousse.

La moussabilité (volume de mousse créé pour un volume donné de gaz et de liquide) et la stabilité (temps caractéristique de destruction de la mousse) sont deux propriétés importantes d'une mousse liquide. Ces deux caractéristiques sont fortement liées à la nature et à la concentration en tensioactif dans la solution. En effet, quand une déformation de l'interface se produit sur une lamelle, sa surface augmente. Ainsi la concentration locale en tensio-actif diminue et la tension de surface augmente. Le gradient de tension de surface sur la lamelle génère un écoulement vers la zone de haute tension de surface : c'est l'effet Gibbs-Marangoni (voir Figure 8). Dans ce cas, il est important que la concentration soit supérieure à la CMC pour que la tension de surface reste à son minimum grâce au "réservoir" de molécules de tensioactif non-adsorbées et de micelles présentes dans la lamelle permettant à la bulle de ne pas être détruite. Une concentration supérieure à la CMC permet donc de garantir une moussabilité et une stabilité maximales.

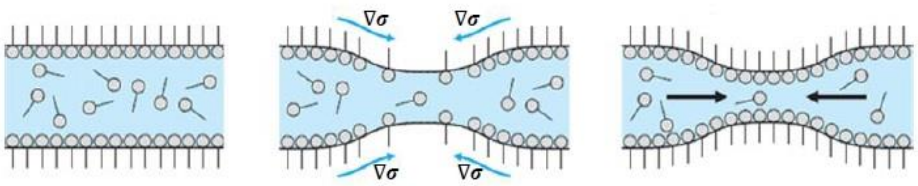


Figure 8. L'effet Gibbs-Marangoni sur une lamelle de mousse, adapté de Salager and Choplin (2008).

2.3. Mécanisme de destruction : Mûrissement d'Ostwald et coalescence

Il existe deux principaux mécanismes de destruction de mousse, la coalescence et le mûrissement :

- La coalescence correspond à la rupture d'une lamelle dans une mousse. Il s'agit d'un phénomène complexe lié à la pression de disjonction, dont il est présenté quelques éléments dans la Partie 3.2 de ce chapitre.

  La coalescence a lieu lorsque l'épaisseur de la lamelle devient insuffisante pour garantir l'équilibre entre les forces d'attraction et de répulsion mises en jeu dans une lamelle. Les variations d'épaisseur peuvent être générées par :

  - l'assèchement de la lamelle (évaporation ou drainage gravitaire du liquide) ;
  - une variation de température ;
  - une variation de concentration ;
  - une perturbation mécanique.

  Ce phénomène étant brutal, la coalescence d'une lamelle génère des perturbations mécaniques aux lamelles voisines qui pouvent s'effondrer à leur tour. La coalescence est donc souvent caractérisée par une distribution inégale de la taille des bulles et des phénomènes d'*avalanche*.

- Le mûrissement d'Ostwald est contrôlé par la loi de Laplace qui définit la pression dans une bulle par l'équation suivante :

$$P_b = \frac{2\sigma}{r} + P_0 \qquad (19)$$

  Avec P_b la pression dans la bulle (Pa); P_0 la pression du milieu environnant (Pa); σ la tension de surface entre le gaz et le milieu environnent ($N.m^{-1}$); r le rayon de la bulle (m).

  D'après cette loi, la pression dans une bulle de plus petit rayon sera supérieure à celle présente dans une bulle de plus grand rayon (voir Figure 9).

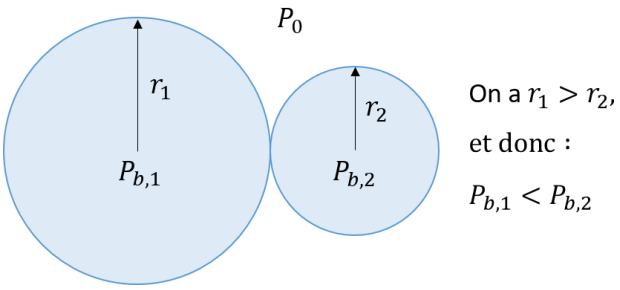


Figure 9. Schématisation de la loi de Laplace.

Cette différence de pression génère un écoulement de gaz entre deux bulles voisines de rayon différent à travers la lamelle qui les sépare. Plus la différence de rayon est importante, plus la diffusion sera élevée. Ce phénomène fait donc disparaître les bulles de petite taille au profit des autres bulles et, contrairement à la coalescence, tend à homogénéiser la distribution de la taille des bulles dans la mousse. Afin de limiter ce phénomène de diffusion, on peut utiliser un gaz ayant une faible solubilité dans l'eau. C'est pourquoi nous avons choisi d'utiliser le diazote comme gaz pour générer les mousses. Toutes les expérimentations présentées dans ce travail ont été effectuées avec du diazote.

La différence entre deux mousses principalement affectées par l'un ou l'autre de ces phénomènes est présentée en Figure 10.

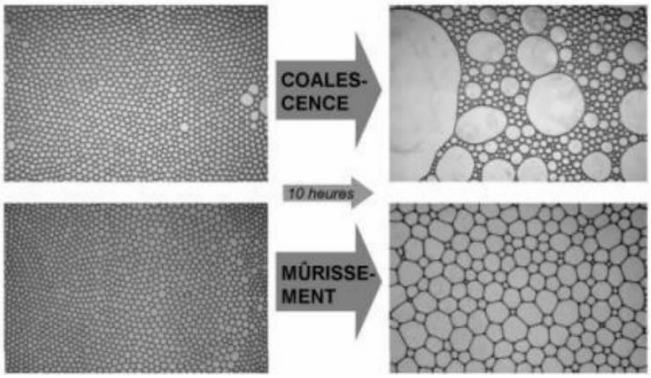


Figure 10. Mise en évidence de la coalescence et du mûrissement, adapté de Pierre *et al.* (2015).

2.4. Stabilité hors milieux poreux : dynamique de destruction

Simjoo, Dong, *et al.* (2013) ont identifié expérimentalement deux étapes lors de la destruction d'une mousse hors milieu poreux :

1) Une rapide diminution du volume de mousse par éclatement des bulles a lieu durant quelques dizaines de minutes avant de se stabiliser ;
2) Après cette période de stabilisation, la destruction reprend de façon plus lente.

La première étape correspond à du drainage gravitaire, où le liquide qui s'était élevé dans la mousse pendant sa génération s'écoule vers le bas par effet de gravité. La seconde étape est en revanche contrôlée par les mécanismes de coalescence et de maturation d'Ostwald.

Les auteurs ont également étudié l'effet de la concentration sur la stabilité en utilisant des solutions de 25, 125 et 250 fois la CMC. Il a été montré qu'une concentration élevée implique une plus grande moussabilité et une plus grande fraction volumique de liquide dans la mousse. Cela étant dû à une texture plus fine. Cependant, le temps de demi-vie n'est pas affecté par la concentration.

Del Campo Estrada (2014) a identifié deux types de régimes de destruction de mousse :

- Le premier est un phénomène d'*avalanche* où la mousse reste stable pendant un moment avant qu'un certain volume de mousse s'effondre brutalement, le phénomène se répétant. Ce phénomène est aléatoire et on ne peux pas savoir avec précision quand l'avalanche aura lieu et combien de volume de mousse sera détruit ;
- Le second régime est une destruction de mousse constante dans le temps. Le régime de destruction dépend du tensioactif utilisé. Il n'a pas été observé de différence dans le temps de demi-vie pour des concentration de 5 à 20 fois la CMC pour du Triton X-100 et du Sucrose Laurate. En revanche, pour du Rhamnolipid JBR425, il a pu être observé un temps de demi-vie deux fois plus long à 10 fois la CMC qu'à 5 fois la CMC.

Il a été montré par Jones *et al.* (2016) qu'il existe une corrélation positive entre la stabilité de la mousse hors milieu poreux, représentée par le temps de demi-vie, et la Resistance Factor de la mousse en milieu poreux (voir Partie 3.3), en l'absence d'huile.

3. Mousse en milieu poreux

Cette partie décrit les principaux mécanismes entrant en jeu lors de l'écoulement de mousse en milieux poreux. Quelques notions sont également définies et expliquées pour permettre une meilleure compréhension et interprétations des résultats expérimentaux obtenus par la suite.

3.1. Mécanismes de formation in situ

Il existe trois principaux mécanismes de formation de mousse en milieu poreux :

- Le "*snap-off*" est le principal mécanisme de formation de la mousse en milieu poreux (Kovscek, Tang and Radke, 2007). Lorsqu'un écoulement de gaz entre dans un pore, il génère une forte pression capillaire au niveau de l'étranglement car le rayon de courbure est faible. Sur la Figure 11 représentant schmétiquement ce phénomène, la pression capillaire en ① est plus élevée qu'en ②. En considérant la pression dans la phase gazeuse constante, cet écart de pression capillaire dû à la géométrie du milieu poreux génère un gradient de pression dans la phase liquide. Ainsi, un écoulement de liquide opposé au sens de l'écoulement du gaz est généré. Ce flux de masse va séparer la phase gazeuse au niveau de l'étranglement, créant une lamelle et une bulle de gaz. Au cours de ce processus, la bulle générée a une taille de l'ordre de grandeur de la taille du pore où celle-ci a été créée. Le *snap-off* étant responsable de la majorité des bulles générées, il est généralement considéré que la taille moyenne des bulles d'une mousse est de l'ordre de grandeur de la taille des pores du milieu poreux dans lequel elle a été générée.

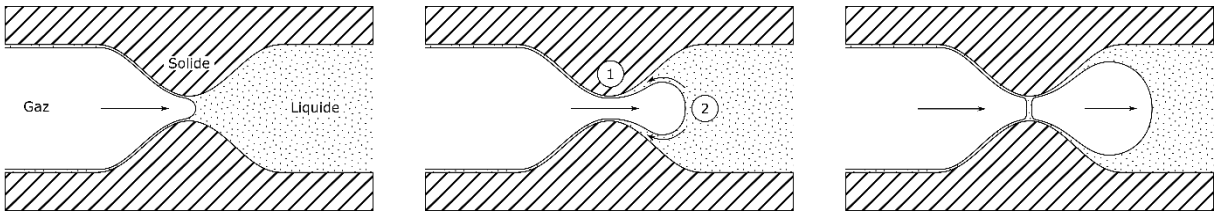


Figure 11. Mécanisme de "*snap-off*", adapté de Ransohoff and Radke (1988).

- Le "*leave behind*" est un mécanisme secondaire de génération, il conduit à générer une lamelle lorsque du gaz s'écoule simultanément à travers deux pores connectés. Le liquide se retrouve mécaniquement emprisonné dans l'espace entre les deux pores, générant une lamelle dans le sens parallèle à l'écoulement (voir Figure 12). Pour qu'une bulle soit réellement créée, il faut que des lamelles soit générées dans le sens perpendiculaire à l'écoulement grâce au *snap-off*. Le *leave behind* complète donc le snap-off lorsque les pores sont connectés entre eux.

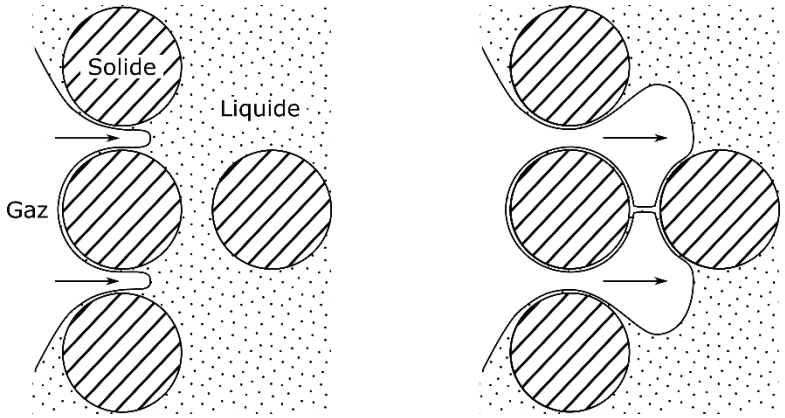


Figure 12. Mécanisme de "*leave behind*", adapté de Ransohoff and Radke (1988).

- Le "*lamella division*" est semblable au « *leave behind* » à la différence près que la phase gazeuse est d'ores et déjà sous la forme d'une bulle. L'écoulement de cette bulle dans deux pores va séparer mécaniquement la bulle et générer deux petites bulles. C'est le seul mécanisme permettant de générer des bulles d'une taille inférieure à celle des pores du milieu poreux.

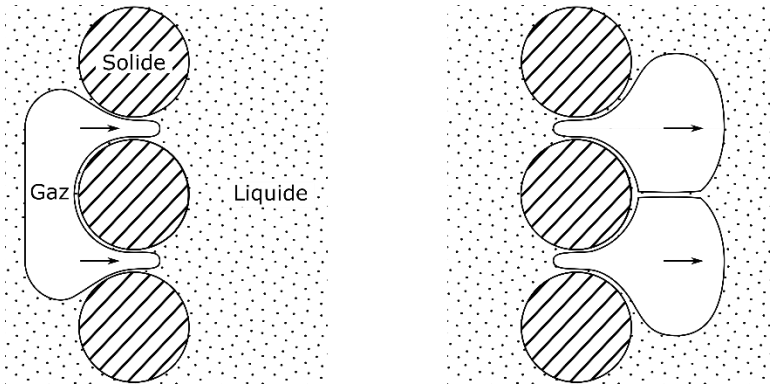


Figure 13. Mécanisme de "*lamella division*", adapté de Ransohoff and Radke (1988).

- Le « *pinch-off* » a été introduit récemment par Liontas et al. sur des micromodèles. Le « *pinch-off* » est similaire au snap-off sauf qu'ici une bulle est pincée entre la paroi du pore et une autre bulle (*neighbor-wall pinch-off*) ou entre deux bulles (*neighbor-neighbor pinch-off*) (Liontas *et al.*, 2013). Ce pincement génère une seconde bulle par le principe d'écoulement retour énoncé dans le paragraphe décrivant le « *snap-off* ». Ce mécanisme intervient donc dans un écoulement où la mousse est déjà formée et va participer à la rendre plus fine et plus visqueuse. Trois exemples du mécanisme de « *neighbor-wall pinch-off* » sont présentés en Figure 14.

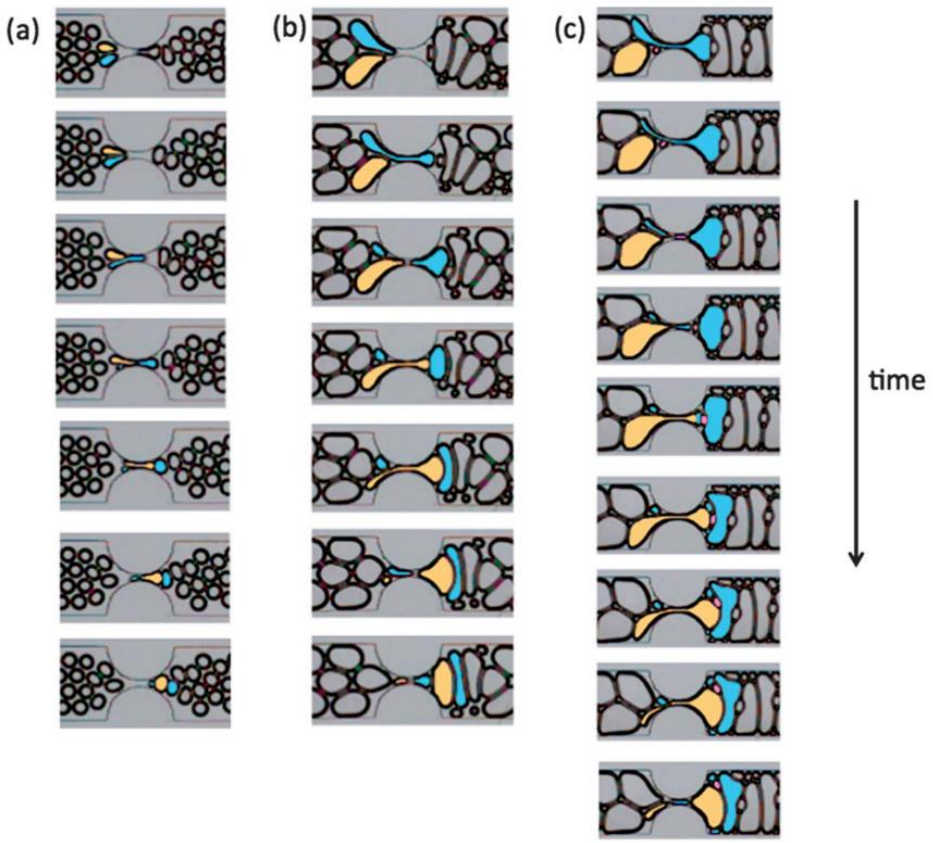


Figure 14. Série de photographies montrant le phénomène de « *neighbor-wall pinch-off* » dans des conditions expérimentales variées. Les bulles sont colorées en post-traitement pour être facilement identifiable (Liontas *et al.*, 2013).

Ces mécanismes montrent que la texture d'une mousse (c'est à dire la distribution de la taille de ses bulles) et très dépendante du milieu poreux dans lequel cette mousse est générée et du milieu dans lequel elle s'écoule.

3.2. Pression capillaire et pression de disjonction

La pression de disjonction Π est la somme des pressions induites par les forces qui s'exercent entre les deux interfaces liquide-gaz qui constituent la lamelle. La Figure 15 représente l'évolution de la pression de disjonction en fonction de l'épaisseur d'une lamelle. Ces forces sont les forces d'attraction qui sont les forces de van der Waals (représentées par une pression négative Π_A) et les forces de répulsion (représentéses par une pression positive Π_R) composées des forces électrostatiques à longue portée issues de l'interaction entre les charges electriques des molécules de tensioactif, et les forces stériques à très courte portée. Ces forces évoluant selon l'épaisseur de la lamelle, la pression de disjonction atteint un maximum local Π_{max} en h^*.

Dans une lamelle, la pression capillaire est nulle en son centre (rayon de courbure infini) et maximale aux bords de Plateau (rayon de courbure faible). La pression de disjonction est en

revanche nulle aux bords de Plateau car l'épaisseur de la lamelle est trop importante, mais significative au centre de la lamelle (voir Figure 16). Ainsi, dans une lamelle stable, la pression capillaire et la pression de disjonction sont à l'équilibre.

Les lamelles peuvent uniquement exister si le couple (h, Π) correspond à une partie décroissante de la courbe $\Pi = f(h)$ (Chambers and Radke, 1990). Pour chaque valeur d'équilibre de la pression, il est donc possible d'obtenir deux épaisseurs de lamelles. Si $h \leq h^*$, les lamelles sont appelées « *Common black films* ». Si $h > h^*$, les lamelles sont appelées « *Newton black films* ». La formation de ces lamelles est rendue possible par les forces stériques de répulsions mais celles-ci sont très instables. Ce type de lamelle ne sera pas considéré dans la suite de ces travaux.

Si la pression capillaire dépassent la pression de disjonction maximale Π_{max}, une lamelle « *Common black film* » n'est plus stable et se rompt. Cette valeur correspond ainsi à une pression capillaire critique p_c^* au-delà de laquelle la mousse n'est plus stable et des phénomènes de coalescence apparaissent (voir Partie 2.3).

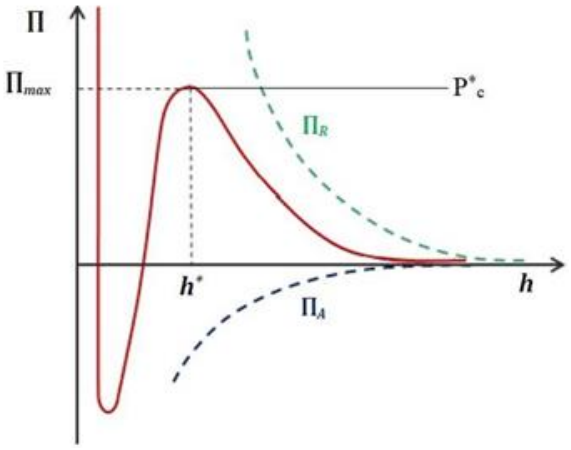


Figure 15. Evolution de la pression de disjonction en fonction de l'épaisseur de la lamelle, adapté de Chambers and Radke (1990).

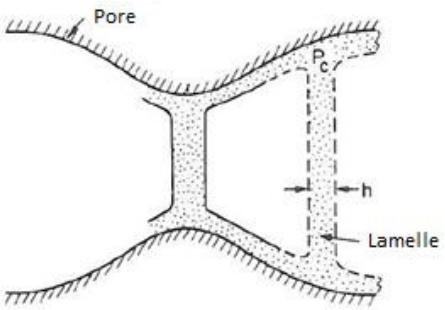


Figure 16. Schéma d'une mousse à l'échelle du pore, adapté de Chambers and Radke (1990), avec h l'épaisseur de la lamelle et p_c est la pression capillaire.

La pression capillaire évoluant de façon monotone avec la saturation en eau, il est possible de faire correspondre la pression capillaire critique à une saturation en eau critique S_w^* (voir Figure 17).

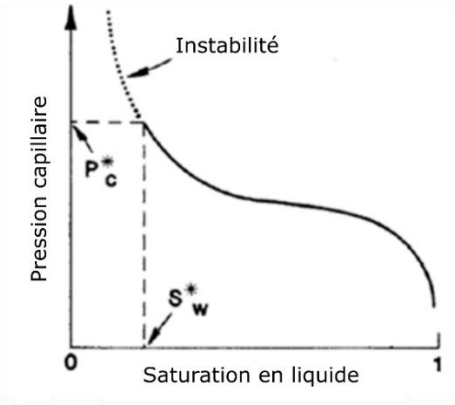


Figure 17. Pression capillaire en fonction de la saturation, adapté de Khatib, Hirasaki et Falls (1988).

Ces différentes notions contrôlent la stabilité des mousses en milieux poreux et sont très importantes pour développer des modèles théoriques. Ces paramètres dépendent principalement de la formulation de la solution de tensioactif et du milieu poreux.

3.3. Resistance Factor

Le Resistance Factor "RF" est une caractéristique essentielle pour évaluer les performances d'un écoulement de moussse en milieu poreux, particulièrement pour les mousses à effet bloquant. Le RF représente la capacité d'une mousse à résister à un écoulement et est défini par :

$$RF = \frac{\Delta p_{foam}}{\Delta p_w}|_{Q=const} \quad (20)$$

Avec RF (-) ; Δp_{foam} la pression différentielle générée par un écoulement de mousse (Pa) ; Δp_w la pression différentielle générée par un écoulement d'eau (Pa) ; Q le débit volumique, constant ($m^3.s^{-1}$).

Le RF représente donc le rapport entre la pression générée par un écoulement de mousse par rapport à un écoulement d'eau au même débit volumique total. Dans cette étude, l'objectif premier consiste à maximiser le RF des mousses étudiées.

Wang *et al.* (2012) ont étudié expérimentalement l'influence de la concentration en tensioactif, de la qualité et de la perméabilité du milieu poreux et de la température sur le RF. Ces études ont été effectuées avec et sans huile brute (pétrole) présente dans le milieu poreux. La méthode d'injection de la mousse utilisée est la prégénération. Le RF augmente avec la concentration en tensioactif dans la solution puis se stabilise lorsque l'on atteint la CMC (voir Figure 18). En effet,

au-delà de la CMC, la concentration en tensioactif ne permet pas d'améliorer la stabilité de la mousse car l'interface est saturée en molécules de tensioactif. Utiliser une concentration supérieure à la CMC peut néanmoins être nécessaire si le tensioactif s'adsorbe sur le milieu poreux afin de garantir une concentration supérieure à la CMC après que l'adsorption est satisfaite.

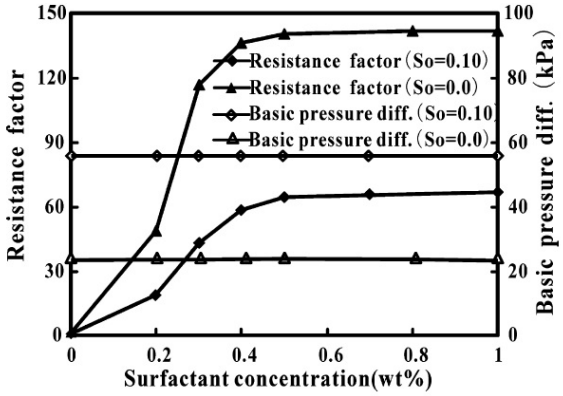


Figure 18. RF et pression différentielle en fonction de la concentration en tensioactif, S_o est la saturation en huile (Wang *et al.*, 2012).

L'influence de la qualité de la mousse sur le RF est plus complexe. Pour une mousse de basse qualité, il y a peu de bulles et l'écoulement ne génère guère plus de résistance qu'un écoulement d'eau. En revanche, si la qualité est trop élevée, les lamelles deviennent trop fines et la stabilité de la mousse est compromise, faisant chuter le RF. Ainsi, la qualité de mousse pour laquelle RF est maximum dépend de la formulation, de la perméabilité du milieu poreux et des débits d'injection. On retrouve régulièrement dans la littérature des valeurs de RF maximales pour des qualités comprises entre 60 et 95 % (voir Figure 19). Une telle valeur de la qualité est appelée « qualité critique ». Pour les qualités inférieures celle-ci, on parle du régime de basse qualité. Pour les qualités supérieures, on parle de régime de haute qualité.

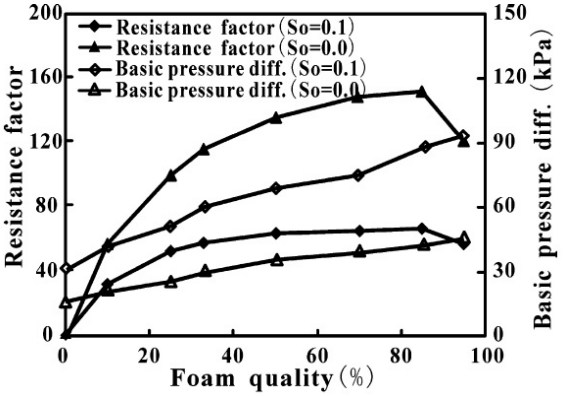


Figure 19. RF et pression différentielle en fonction de la qualité (Wang *et al.*, 2012).

Wang *et al.* (2012) ont également étudié l'influence de la perméabilité du milieu poreux sur le *RF*. Sur des milieux dont la perméabilité est comprise entre 5×10^{-13} et 2×10^{-11} m², l'étude montre une augmentation du *RF* avec la perméabilité (voir Figure 20). Néanmoins, les perméabilités étudiées sont nettement inférieures à celle étudiées dans cette thèse (comprises entre 10^{-10} et 10^{-8} m²). Ces travaux vont donc être poursuivis pour déterminer l'influence de la perméabilité sur le *RF* pour une gamme de perméabilités beaucoup plus élevées.

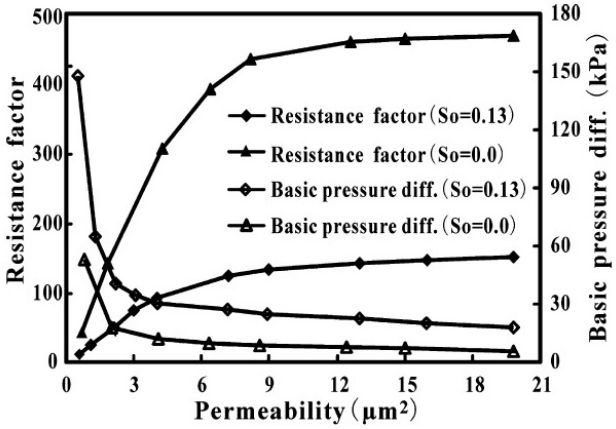


Figure 20. *RF* et pression différentielle en fonction de la perméabilité (Wang *et al.*, 2012).

Enfin, les résultats expérimentaux sur l'effet de la température montrent une chute du *RF* avec la température. En effet, l'augmentation de température assèche les lamelles ce qui provoque leur rupture. De plus, une température élevée dégrade le tensioactif et diminue l'adsorption des molécules actives à l'interface des lamelles. Dans le cadre de l'application des travaux de cette thèse, la température des sols est généralement stable et avoisine les 12 °C. L'étude des écoulements de mousse à une température ambiante d'environ 20 °C ne modifiera donc pas significativement les résultats.

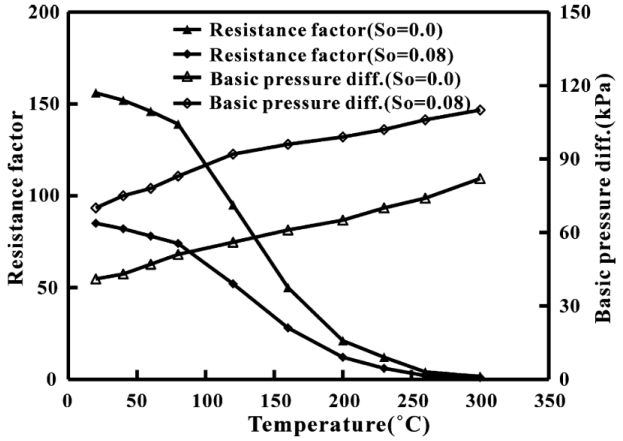


Figure 21. *RF* et pression différentielle en fonction de la température (Wang *et al.*, 2012).

3.4. Réduction de la mobilité

La mobilité d'un fluide λ_i ($Pa^{-1}.s^{-1}$) est définie telle que :

$$\lambda_i = \frac{k_{r,i}}{\mu_i} \quad (21)$$

L'application de la loi de Darcy montre que l'augmentation du RF correspond à une réduction de la mobilité de la mousse.

$$RF = \frac{\lambda_w}{\lambda_{foam}}|_{Q=const} \quad (22)$$

Avec λ_w la mobilité de l'eau ($Pa^{-1}.s^{-1}$) et λ_{foam} la mobilité de la mousse ($Pa^{-1}.s^{-1}$).

Cette réduction peut être due à une augmentation de la viscosité, une réduction de la perméabilité relative ou un effet conjugué des deux.

3.5. Comportement non-Newtonien

La mousse en milieu poreux ne se comporte pas comme un fluide Newtonien. Alvarez, Rivas et Rossen (2001) ont montré que la mousse avait un comportement rhéofluidifiant dans le régime de basse qualité et un comportement Newtonien ou rhéoépaississant dans le régime de haute qualité. Pour pouvoir balayer au mieux un milieu hétérogène, il est préférable d'utiliser un fluide rhéofluidifiant car celui-ci aura une viscosité plus élevée dans les zones de forte perméabilité et plus faible dans les zones de faible perméabilité. En effet, l'augmentation de la taille des pores implique une diminution du cisaillement. Cette particularité permet d'homogénéiser au maximum un front d'écoulement (voir Figure 22).

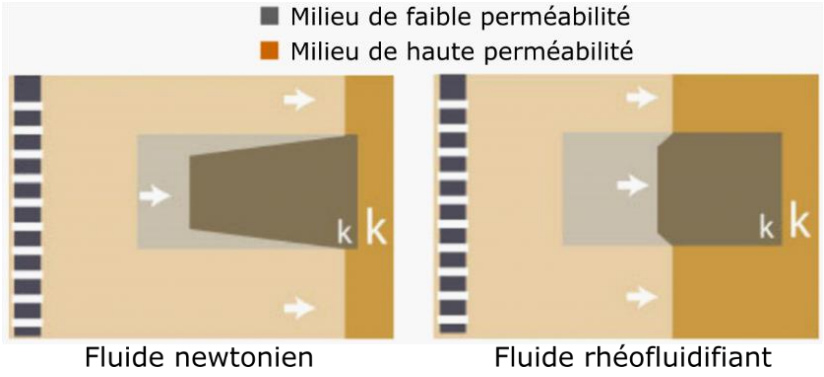


Figure 22. Effet du comportement rhéofluidifiant dans un milieu hétérogène, adapté de Maire, Brunol et Fatin-Rouge (2018).

3.6. Mousse faible et mousse forte

Les écoulements de mousses en milieu poreux peuvent être divisés en deux régimes :

- Les mousses faibles ("*weak foam*") qui sont caractérisées par un faible nombre de lamelles, une faible saturation en gaz du milieu et un faible gradient de pression généré par l'écoulement ;
- Les mousse fortes ("*strong foam*") qui possèdent un grand nombre de lamelles (parfois plusieurs par pores), déplacent la majorité du fluide initialement présent dans le milieu et génèrent un fort gradient de pression (voir Figure 23).

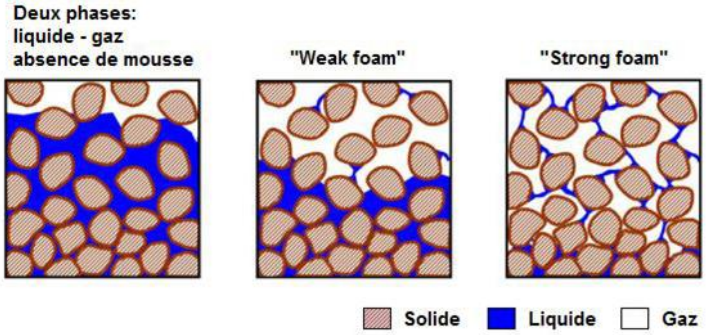


Figure 23. Schématisation des écoulements diphasiques en milieu poreux, adapté de Sheng (2013).

En Figure 24 est représenté un exemple théorique de l'évolution de la pression différentielle dans une colonne de milieu poreux, initialement saturée en eau, en fonction du régime de mousse (au même débit d'injection).

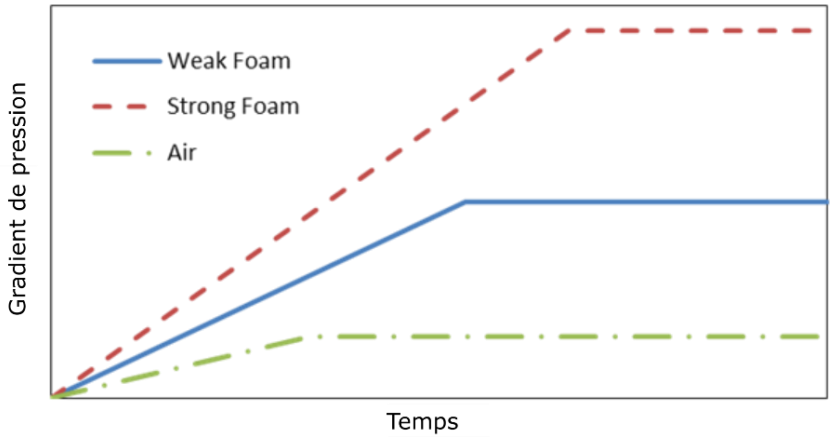


Figure 24. Exemple théorique de l'évolution de la pression différentielle en fonction du temps pour plusieurs régimes de mousse lors d'une injection dans une colonne.

Dans un simple écoulement diphasique eau/air (sans mousse) l'air, par sa faible viscosité, déplacera très peu d'eau et atteindra la sortie de la colonne très rapidement. La pression

différentielle augmente donc très peu et se stabilise lorsque l'air atteint la sortie de la colonne. En présence d'une mousse faible, le volume d'eau déplacé est plus important, impliquant une percée plus tardive et une pression plus élevée. Pour la mousse forte, le temps de la percée et la pression sont maximum.

Il n'y a pas de transition nette entre mousse faible et mousse forte et ces dénominations sont principalement utilisées pour discriminer les écoulements de mousse sur des critères qualitatifs, permettant de mieux communiquer. Les principles propriétés des mousses faibles et fortes sont présentées dans le Tableau 2.

De plus, dans les grands pores, plusieurs bulles peuvent être présentes par pore. Rossen *et al.* (1999) ont montré que ces petites bulles créent une mousse forte et augmentent la viscosité apparente de la mousse, et ainsi améliorent ses propriétés bloquantes.

Tableau 2. Propriétés qualitatives de mousses faibles et fortes.

	Mousse faible	**Mousse forte**
Pression différentielle générée	Faible	Elevée
RF	Faible	Elevée
Viscosité	Faible	Elevée
Densité de bulle/lamelle	Réduite	Elevée, possiblement plusieurs bulles par pore
Saturation en eau	Moyenne	Faible
Génération	Simple	Difficile, soumise à condition
Qualité	Faible ou très élevée	Autour de la qualité critique
Stabilité	Moyenne	Elevée

3.7. Stabilité de la mousse en présence d'une phase organique

La présence d'une phase organique dans le milieu poreux peut mener à la rupture des lamelles de mousse. Ce phénomène peut être prédit selon les propriétés interfaciales des phases en présence (Abdolahi, Moosavian and Vatani, 2005; Farajzadeh *et al.*, 2012; Simjoo, Rezaei, *et al.*, 2013). Le problème sera abordé ici en prenant le cas d'une goutelette de phase organique présente dans la phaque aqueuse. Le coefficient d'entrée E ($N.m^{-1}$) est défini tel que :

$$E = \sigma_{gw} + \sigma_{ow} - \sigma_{og} \quad (23)$$

Avec σ_{gw} la tension de surface entre la phase gazeuse et la phase aqueuse (N.m^{-1}), σ_{ow} la tension de surface entre la phase organique et la phase aqueuse (N.m^{-1}) et σ_{og} la tension de surface entre la phase organique et la phase gazeuse (N.m^{-1}).

Si $E < 0$, la goutelette n'atteint pas l'interface et ne destabilise par la lamelle. Si $E > 0$, la goutelette de phase organique peut se placer à l'interface entre la phase aqueuse et la phase gazeuse. Il convient alors d'évaluer le coefficient d'étalement SP (pour « *spreading* », N.m^{-1}).

$$SP = \sigma_{gw} - \sigma_{ow} - \sigma_{og} \quad (24)$$

Si $SP > 0$, la goutellette s'étend sur l'interface et provoque l'écoulement de la phase aqueuse radialement par rapport à la goutelette par effet Marangoni (Abdolahi, Moosavian and Vatani, 2005), ce qui mène à l'amincissement de la lamelle et à sa rupture. Si $SP < 0$, la goutelette ne s'étale pas à l'interface. La lamelle peut néanmoins être déstabilisée par un phénomène de pontage, prédit par la valeu du coefficient de pontage B (pour « *bridging* » , N^2.m^{-2}).

$$B = \sigma_{gw}^2 + \sigma_{ow}^2 - \sigma_{og}^2 \quad (25)$$

Si $B < 0$, la goutelette reste stable à l'interface et la stabilité de la lamelle n'est pas compromise. Si $B > 0$, la goutellet réalise un pont entre les deux interfaces phase aqueuse/gaz de la lamelle ce qui mène à un démouillage entre la phase organique et la phase aqueuse et à une rupture de la lamelle.

La Tableau 3 résume la prédiction de la stabilité de la mousse selon la valeur des pramètres présentés ci-dessus.

Tableau 3. Prédiction de la stabilité de la mousse en fonction des coefficients E, S et B, adapté de Simjoo, Rezaei, *et al.* (2013).

SP	E		
	-	+	
		B	
		-	+
-	Stable	Stable	Instable
+	Stable	Instable	Instable

La présence d'une phase organique, comme des polluants à traiter, même sous la forme de goutelettes, peut déstabiliser la mousse. Ainsi, dans une application de mousse de blocage, il est

important d'injecter la mousse dans des milieux les plus propres possible afin d'obtenir la mousse la plus stable et la plus forte possible (Manlowe, Radke and others, 1990).

3.8. Mousse en milieux poreux de haute perméabilité

Maire, Brunol and Fatin-Rouge (2018) ont étudié les écoulements de mousse dans des milieux de haute perméabilité. En utilisant une technique d'injection alternée entre tensioactif et gaz, appelée SAG (Surfactant-Alternating-Gas), ils ont observé une diminution de la viscosité pour des perméabilités supérieures à 2.10^{-10} m² ainsi qu'une transition d'une mousse forte vers une mousse faible. En revanche, en utilisant une technique de prégénération, ils ont observé une mousse plus stable et visqueuse, en particulier en prégénérant la mousse dans des milieux poreux de faible perméabilité.

Il est difficile de trouver des résultats dans la littérature concernant les écoulements de mousse dans les milieux de très haute perméabilité. En effet, cette gamme de perméabilité n'est pas pertinente pour les applications pétrolières et reste exceptionnelle pour les applications de remédiation. Un des défis de cette étude sera donc d'étendre la connaissance de la mousse à ces gammes de perméabilité.

3.9. Mousse en milieux fracturés

Les milieux fracturés que l'on peut retrouver dans les réservoirs de pétrole sont constitués de matrices peu perméables et de fractures ouvertes. Ils sont considérés à part dans les sciences des milieux poreux car certaines hypothèses ne peuvent y être appliqués. Ils constituent en revanche un possible point de comparaison lors de l'étude des milieux très perméables qui est présentée ici.

Différents auteurs ont récemment étudiés les phénomènes de génération et d'écoulement de la mousse dans de tel milieux (Fernø Martin *et al.*, 2014; AlQuaimi and Rossen, 2019; Brattekås *et al.*, 2019; Fathollahi, Rostami and Khosravi, 2019). Ils ont montré que la mousse y été principalement générée par snap-off grâce à la rugosité des parois des fractures. La taille des bulles était dépendant de l'ouverture de la fracture mais il a été remarqué que des bulles de tailles inférieurs à celle des fractures étaient générées grâce aux variations de rugosité. Ces écoulements de petites bulles permettaient d'augmenter le *RF* de la mousse.

4. Mousse et dépollution

4.1. Les différentes techniques d'utilisation de la mousse en dépollution

Les mousses peuvent avoir différents usages dans le domaine de la dépollution des sols. On distingue trois familles : les mousses de vectorisation, les mousses de désorption et les mousses de blocage. Pour chaque technologie de mousse, de nouvelles formulations doivent être trouvées (tensioactif, concentration, additifs, gaz) pour ajuster les propriétés de la mousse à son utilisation et son environnement.

Les premières sont utilisées pour transporter un additif spécifique dans une zone afin d'effectuer une remédiation *in situ*. Ces mousses permettent un apport homogène dans la zone malgré les hétérogénéités du milieu poreux. Les mousses peuvent transporter des nanoparticules (Sheng, 2013), du polysulfure de calcium (Zhong *et al.*, 2011) ou des bactéries pour de la biodégradation aérobie (Choi, Kim and Nam, 2009). Ces technologies ont émergé récemment, et de nombreux travaux de recherche restent à faire, notamment dans l'utilisation de ces mousses en zone saturée car dans la majorité des publications, ces mousses sont utilisées en zone vadose.

Les mousses de désorption utilisent les propriétés tensio-actives de la mousse pour désorber les polluants et les faire s'écouler vers un puits de récupération. Ces mousses ont été étudiées et utilisées dans l'industrie pétrolière pour la récupération assistée du pétrole (*Enhanced Oil Recovery*, EOR). Néanmoins, la remédiation des sols et l'EOR diffèrent grandement par leurs conditions de terrain. Pour l'EOR, les mousses sont injectées dans des couches très profondes de roches poreuses consolidées, soumises à de fortes pressions et fortes températures. Pour la dépollution des sols, les injections ont généralement lieu dans des couches peu profondes de milieux non consolidés (sables, graviers, etc.) à des températures et pression modérées. De plus, dans l'industrie pétrolière, une technologie permettant de récupérer 50 à 90 % de l'huile présente dans le réservoir peut être considérée comme efficace alors que dans la dépollution des sols, on cherche à éliminer entre 80 et 99 % des composés présents dans le milieu. Jeong *et al.* (2000, 2003) ont utilisé des micromodèles afin d'étudier ces mousses et leurs application en dépollution. Kilbane *et al.* (1997) ont également travaillé au développement d'un procédé pour remédier du DNAPL à une plus grande échelle. Il a été également montré au cours du projet SILPHES (ADEME) qu'il était possible de récupérer 98 % de DNAPL dans une colonne de laboratoire avec 8 g de tensioactif pour une récupération totale de 1 kg de polluant, en utilisant une technologie de mousse de haute viscosité.

Enfin, les mousses de blocage sont principalement utilisées dans les milieux poreux hétérogènes. En effet, il est plus difficile d'accéder aux composés présents dans les strates de faibles perméabilités puisque les fluides tendent à s'écouler dans les couches les plus perméables d'un sol car elles offrent le moins de résistance à l'écoulement. Ces zones de granulométrie plus fines, présentent une surface spécifique plus élevée et sont susceptibles de constituer une « zone source », entraînant ainsi une rémanence des composés dissous dans les aquifères. Les mousses de blocage peuvent être injectées dans les zones de haute perméabilité pour détourner les écoulements vers les zones de faibles perméabilité (voir Figure 25). Ce détournement est possible grâce à la forte viscosité de la mousse et par la saturation en gaz qu'elle apporte, réduisant la mobilité de l'eau dans la zone injectée. Ces mousses doivent être très stables pour résister aux écoulements sur des durées potentiellement longues. Quelques auteurs ont étudiés en laboratoire la mousse dans l'objectif d'une application de blocage (Kovscek and Bertin, 2003; Bertin, Del Campo Estrada and Atteia, 2017; Portois, Boeije, *et al.*, 2018).

Les travaux effectués dans cette thèse se concentrent sur les mousses de blocage avec un objectif différent de ce qui vient d'être présenté ci-dessus. L'objectif de ces études ne consiste pas à rediriger les flux dans les zones de faible perméabilité mais plutôt à bloquer l'entièreté d'une zone en amont de la zone à remédier afin de détourner ou ralentir les écoulements souterrains et d'isoler cette zone. L'augmentation du temps de séjour à l'intérieur de cette zone devrait faciliter la mise en place des techniques de dépollution *in situ* (vectorisation de réactif). La mousse devra être capable de bloquer l'ensemble de la zone qui présente des hétérogénéités locales.

A la fin des travaux de dépollution, la mousse devra être détruite naturellement afin de permettre aux écoulements souterrains de reprendre leurs cours et d'éviter la formation d'un impact secondaire lié au traitement. C'est pourquoi le tensioactif utilisé devra également être biodégradable.

Enfin, le site pilote sur lequel ces technologies seront potentiellement appliquées présente une perméabilité très élevée (de 10^{-10} à 10^{-8} m²). Ainsi, l'une des principales innovations de ce travail est d'étudier l'écoulement des mousses de blocage dans des milieux très perméables.

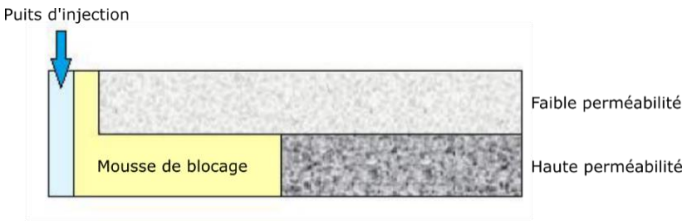


Figure 25. Schéma conceptuel de l'injection de la mousse de blocage en milieu hétérogène, adapté de Estrada (2014).

4.2. Exemple d'une application terrain

Une étude de terrain a été menée par Portois *et al.* (2018a, 2018b) pour tester l'efficacité des mousses de blocage dans une application de dépollution. Les auteurs ont montré que la mousse avait réduit la perméabilité relative à l'eau autour des points d'injection d'un facteur 100 un mois après l'injection, et d'un facteur 10 trois mois après l'injection. Cette réduction notable de la perméabilité relative, durable trois mois après l'injection démontre que la mousse a des effets bloquants à long terme. La concentration en polluant en aval de l'injection été divisée par 4,4, prouvant qu'une partie de l'écoulement souterrain avait bien été dévié de la zone contaminée. Cependant, ces résultats ont été obtenus dans un sol d'une perméabilité de 4×10^{-13} à 9×10^{-12} m² avec des vélocités d'écoulement souterrains de 0,05-0,15 mètre par jour. Il n'est donc pas certain que de tels résultats soit reproductibles dans des sols beaucoup plus perméables avec des vitesse d'écoulement souterrains beaucoup plus élevées.

4.3. Objectif et verrous scientifiques

Cette revue de l'état de l'art a permis d'aborder les concepts clés de l'écoulement de mousse en milieu poreux. Néanmoins, dans l'objectif de comprendre l'effet bloquant des écoulements dans les milieux de haute perméabilité, quatre verrous scientifiques majeurs doivent encore être résolus successivement.

Le premier est la possibilité de générer de la mousse dans un milieu de haute perméabilité. Pour cela, il faudra étudier quelle formulation et quelle méthode de génération est adaptée.

Le second est la capacité de la mousse à présenter un *RF* élevé. Il faudra pour cela étudier expérimentalement son comportement en milieu poreux, dans des conditions variées pour établir une phénoménologie.

Le troisième concerne la capacité de la mousse à détourner un écoulement d'eau incident à forte vélocité dans un milieu de haute perméabilité. De nombreux questionnements secondaires s'ajoutent à ce verrou comme l'évolution de la propagation de la mousse, sa stabilité dans le temps et l'influence du type et de la vitesse de l'écoulement d'eau incident. Pour répondre à ces

questions, il faudra développer un dispositif et des méthodes expérimentales adaptées à la modélisation de ce problème.

Enfin le dernier verrou concerne l'établissement d'un modèle mathématique permettant de formaliser les phénomènes physiques et d'extrapoler les résultats à des situations variées. Pour cela, la réalisation d'un modèle numérique sera nécessaire, avec une confrontation aux résultats expérimentaux.

Chapitre 3

Sélection des molécules d'étude

La première étape de notre étude consiste à choisir les tensioactifs qui répondent le mieux à l'ensemble des critères que nous nous fixons pour créer des mousses à la fois efficaces du point de vue de leurs propriétés physiques et respectueux de l'environnement. Pour cela, après une première sélection de produits, des tests de moussabilité et stabilité hors milieu poreux sont réalisés afin de choisir les tensioactifs les plus performants.

1. Choix des tensioactifs

1.1. Critères de sélection

Les tensioactifs préselectionnés doivent répondre à un certain nombre de contraintes obligatoires pour l'utilisation qui en sera faite dans le cadre industriel. L'objectif consiste à remédier des sols et eaux souterraines de façon durable. C'est pourquoi le choix du tensioactif est important afin de ne pas créer un impact environnemental supplémentaire à celui des polluants déjà présents. Ainsi, les tensioactifs choisis doivent posséder certaines propriétés (Kimball, 1992) :

- Faible toxicité et éco-toxicité
- Biodégradabilité
- Faible adsorption dans les sols
- Efficace à une concentration inférieure à 3%
- Faible tension de surface et faible valeur de la CMC

Une étude de Liwarska-Bizukojc *et al.* (2005) portant sur des mollusques et crustacés a mis en évidence une corrélation entre toxicité et poids moléculaire du tensioactif. Ainsi, un tensioactif de masse molaire inférieure à 500 $g.mol^{-1}$ présente une éco-toxicité réduite. Enfin, le tensioactif doit présenter des propriétés moussantes tout en conservant une bonne stabilité dans le temps. En l'absence de critères théoriques ces dernières propriétés sont étudiées expérimentalement au cas par cas.

1.1. Descriptions des tensioactifs

En se basant sur les critères cités ci-dessus et en considérant des produits utilisés et étudiés dans la littérature (Mulligan, Yong and Gibbs, 2001; Danov *et al.*, 2004; Liwarska-Bizukojc *et al.*, 2005; Liu and Kim, 2009; Dai *et al.*, 2014; Osama Al, 2015; Kahrobaei, Vincent-Bonnieu and Farajzadeh, 2017), 5 molécules et mélange de molécules sont pré-sélectionnées. Ceux-ci sont présentés ci-après.

a. AOS

L'Alpha Olefine C14-16 Sulfonate (anionique, M_{moy} = 312 g.mol^{-1}, CAS : 68439-57-6) est appelé AOS dans la suite de ce manuscrit. Il est conditionné sous la forme d'une solution de couleur jaune, fournie sous le nom RHODACAL LSS-40/AX® par Solvay Novecare®. Une molécule d'AOS à 14 carbones est représentée en Figure 26.

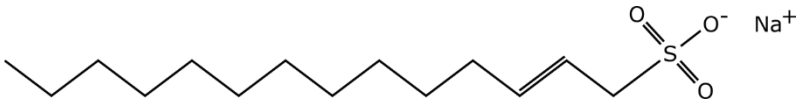


Figure 26. Représentation d'une molécule d'AOS à 14 carbones.

b. MELANGE

Cette formulation est un mélange de Sodium Lauroamphoacetate (zwiterrionique, M = 349 g.mol^{-1}, CAS : 156028-14-7), Sodium Cocoyl Isothionate (anionique, M = 232 g.mol^{-1}, CAS : 61789-32-0) et de Sodium Methyl Cocoyl Taurate (anionique, M = 161 g.mol^{-1}, CAS : 61791-42-2) en solution. Il est conditionné sous la forme d'un solution très visqueuse (200 cP) et de couleur jaune pâle, fourni sous le nom de MIRACARE UM-140® par Solvay Novecare®.

c. CAB

Le Cocamidopropyl Betaine (zwitterionique, M = 343 g.mol^{-1}, CAS : 61789-40-0) est appelé CAB dans la suite de ce manuscrit. Il est conditionné sous la forme d'une solution de couleur jaune, fourni sous le nom MACKAM 35® par Solvay Novecare®.

d. SLSA

Le Sodium Lauryl Sulfoacetate (anionique, M = 330 g.mol^{-1}, CAS : 1847-58-1) est appelé SLSA dans la suite de ce manuscrit. Il est conditionné sous la forme d'une poudre blanche, fourni par Aroma-zone.com®.

e. ETD

L'Ethoxylated Tridecanol (non-ionique, M = 464 g.mol^{-1}, CAS : 78330-21-9) est appelé ETD dans la suite de ce manuscrit. Il est conditionné sous la forme d'une solution incolore, fourni sous le nom RHODASURF BC 610® par Solvay Novecare®.

2. Mesure de la Concentration Micellaire Critique

Pour choisir correctement les tensioactifs, il est important de les comparer à une concentration équivalente, c'est-à-dire au même multiple de leur Concentration Micellaire Critique (CMC) respective. Ainsi, il est nécessaire de déterminer les valeurs de leur CMC. La mesure de la tension de surface de la solution pour différentes concentrations permet de déterminer la CMC. Celle-ci est la valeur de la concentration pour laquelle la courbe $\sigma = f(log(c))$ présente une rupture de pente et se stabilise à une valeur constante. Pour chaque solution et concentration, la tension de surface est mesurée par la méthode de la goutte pendante (Gassin, 2014).

2.1. Méthode de la goutte pendante.

Cette méthode expérimentale est basée sur l'équation de Young-Laplace, qui décrit la relation entre les rayons de courbure et la différence de pression entre les deux phases considérées (Pellicer, Garcia-Morales and Hernandez, 2000) :

$$\sigma\left(\frac{1}{R_1}+\frac{1}{R_2}\right) = -\Delta\rho g z + \frac{2\sigma}{R_0} \qquad (26)$$

où σ est la tension de surface (N.m^{-1}), R_1 et R_2 les rayons de courbure principaux en un point $M(r,z)$ (m), $\Delta\rho = \rho_d - \rho$ la différence de densité entre les deux phases (kg.m^{-3}), g l'accélération de la pesanteur (m.s^{-2}), z la coordonnée cylindrique axiale du point $M(r,z)$, et R_0 le rayon de courbure au point O, sommet de la goutte et origine du repère (Figure 27).

En adimensionalisant les coordonées $R = \frac{r}{R_0}$; $Z = \frac{z}{R_0}$; $S = \frac{s}{R_0}$ et en définissant les rayons de courbures principaux $R_1 = \frac{dS}{d\varphi}$, $R_2 = \frac{x}{\sin(\varphi)}$, on obtient le système suivant (Berry *et al.*, 2015) :

$$\begin{cases} \dfrac{d\varphi}{dS} = 2 - Bo \times Z - \dfrac{\sin(\varphi)}{R} \\ \dfrac{dR}{dS} = \cos(\varphi) \\ \dfrac{dZ}{dS} = \sin(\varphi) \end{cases} \qquad (27)$$

où $Bo = \frac{\Delta\rho g {R_0}^2}{\sigma}$ est le nombre de Bond (-) et φ l'angle entre la tangente et l'axe radial (-).

Ce système d'équations paramétriques est résolu numériquement à partir des mesures expérimentales de φ, ce qui permet de déterminer le couple (Bo, R_0) et d'en déduire la tension de surface σ. Plus de détails concernant la résolution des équations sont donnés par Berry *et al.* (2015). Il a également été montré que la fiabilité et la précision de cette technique de mesure étaient améliorées en augmentant le nombre de Bond et le nombre de Worthington, défini ainsi :

$$Wo = \frac{\Delta\rho g V_d}{\pi\sigma D_n} \quad (28)$$

Avec V_d le volume de la goutte (m^3), D_n le diamètre de l'aiguille de la seringue (m).

Il convient donc d'utiliser la taille d'aiguille la plus petite possible et le plus gros volume de goutte possible. Lors de nos mesures, la taille de l'aiguille et le volume injecté sont adaptés en fonction de la valeur de tension de surface.

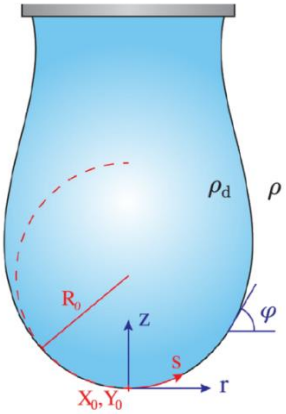


Figure 27. Schéma d'une goutte pendante au bout d'une aiguille de seringue (Berry *et al.*, 2015).

Les mesures que nous présentons ici ont été effectuées à l'aide d'un appareil OCA de Dataphysics (voir Figure 28), les calculs de tension de surface ont été réalisés en utilisant le logiciel SCA accompagnant l'appareil. Les mesures ont été effectuées à température ambiante et répétées trois fois.

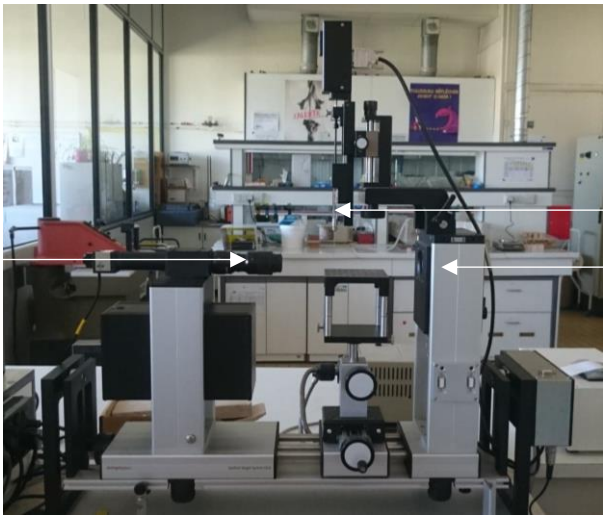


Figure 28. Appareil OCA permettant la mesure de tension de surface.

2.2. Résultats

La Figure 29 présente les résultats obtenus pour les mesures de la tension de surface d'une solution d'AOS. Les résultats concernant les autres solutions sont présentés en Annexe B. La valeur de la CMC est identifiable grâce à la rupture de pente (interface liquide/gaz saturée en tensioactif), et la tension de surface se stabilise. Les différents résultats des mesures de CMC sont présentés dans le Tableau 4.

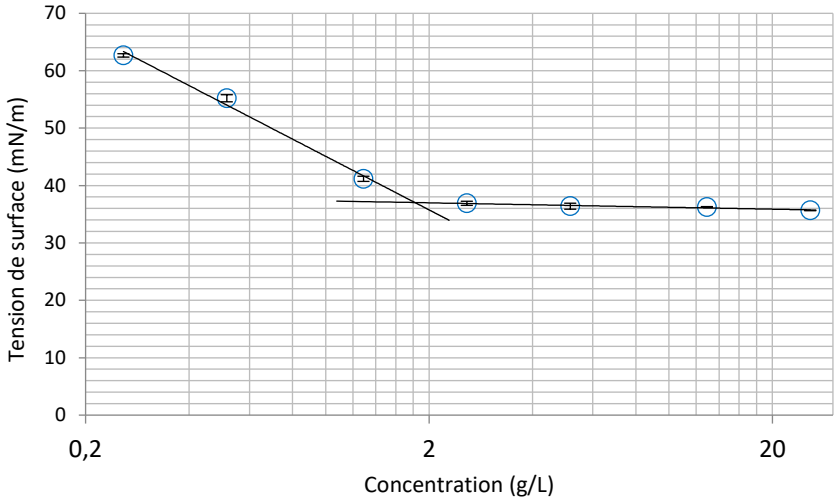


Figure 29. Tension de surface en fonction de la concentration en AOS.

Tableau 4. CMC et tension de surface à la CMC pour chaque tensioactif.

Tensioactif	CMC ($g.L^{-1}$)	σ ($mN.m^{-1}$)
AOS	1,8	37
CAB	$2,8\times10^{-1}$	36
MELANGE	2,7	32
ETD	$7,0\times10^{-2}$	28
SLSA	$7,4\times10^{-2}$	32

Il est important de noter que ces valeurs correspondent à la CMC des produits sous leurs formes industrielles dans lesquelles les molécules actives sont préalablement dilluées. De plus, comme décrit ci-dessus, certains produits sont composés d'un mélange de plusieurs tensioactifs. Il est ainsi impossible de conclure sur la CMC de chacun des composants considérés indépendemment. Les tensions de surface mesurées à la CMC sont suffisamment basses pour générer de la mousse.

3. Moussabilité et stabilité : Matériel et méthodes

Afin de comparer ces produits, des tests de moussabilité et de stabilité en colonne ont été effectués. Le matériel et les protocoles expérimentaux sont décrits ci-dessous. Toutes les expériences ont été répétées trois fois afin de s'assurer de leur reproductibilité et de la robustesse du protocole expérimental. Ces expériences ont été menées à température ambiante.

3.1. Choix de la concentration en tensioactif

La concentration de la solution moussante doit être comprise entre deux limites. La limite basse est une valeur légèrement supérieure à la CMC, pour obtenir des propriétés moussantes optimales et compenser les pertes par adsorption ou dilution. La limite haute est imposée par la nécessité de ne pas contaminer le sol avec un apport excessif de tensioactif, compte tenu d'une application industrielle nécessitant de grands volumes de solution. Pour satisfaire ces critères et en accord avec des résultats de la littérature (Salager and Choplin, 2008), la valeur de la concentration a été fixée égale à 4 fois la CMC pour chaque formulation. Le solutions de tensioactif sont préparées à partir d'eau déionisé.

Certaines expériences ont également été effectuées en ajoutant 1 $g.L^{-1}$ de gomme de Guar, un polymère utilisé pour viscosifier la solution de tensioactif.

3.2. Test de moussabilité

Le test de moussabilité permet de comparer les capacités moussantes des différentes solutions de tensioactifs. Une méthode adaptée de Ross-Miles (2015) a été utilisée pour ce test. Cette dernière est largement utilisée dans la littérature et consiste à verser, à une certaine hauteur, un volume donné de tensioactif dans une éprouvette contenant ce même tensioactif, et de mesurer le volume de mousse ainsi généré (création de bulles par choc liquide). Le dispositif expérimental est schématisé en Figure 30, il est constitué de :

- Une burette de 100 mL placée en haut de colonne.
- Une éprouvette de 500 mL.
- 150 mL d'une solution de tensioactif de concentration 4xCMC.

Le protocole expérimental est le suivant :

- Remplir l'éprouvette avec 50 mL de la solution de tensioactif.
- Remplir la burette avec 100 mL de la même solution de tensioactif.
- Placer l'extrémité inférieure de la burette à 50 cm de la surface du liquide dans l'éprouvette.

• Ouvrir le robinet de la burette et laisser s'écouler la totalité du volume.

• Noter le volume de mousse générée dans l'éprouvette.

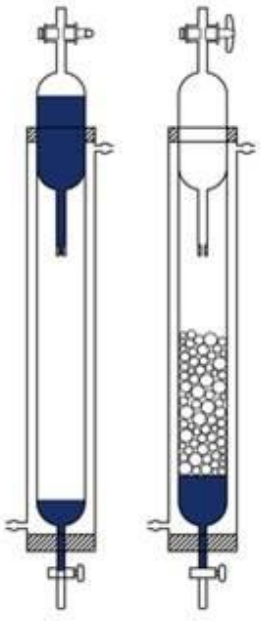


Figure 30. Montage expérimental Ross-Miles pour le test de moussabilité - adapté de kruss.de.

3.3. Test de stabilité

Ce test consiste à injecter du gaz à travers un fritté en verre positionné dans la partie basse d'une colonne transparente, au dessus duquel se trouve un volume de solution de tensioactif. Les bulles sont générées par les petits pores du fritté et créent une mousse fine. Une fois que la mousse atteint une hauteur donnée, on mesure la hauteur de la colonne de mousse en fonction du temps et on en déduit le temps de demi-vie, durée pour laquelle la moitié de la colonne de mousse est détruite. Le gaz utilisé pour générer les mousses est du diazote fourni par Air Liquide® (pureté > 99,99 %). Le dispositif expérimental est schématisé en Figure 31.

La colonne utilisée mesure 7 cm de diamètre interieur et 75 cm de hauteur. Le protocole expérimental est le suivant :

• Remplir la colonne avec 150 mL de solution de tensioactif.

• Injecter du gaz à travers le fritté en bas de la colonne pour générer la mousse.

• Stopper l'injection quand la mousse atteint une hauteur de 40 cm (= 1,54 L).

• Noter la hauteur de mousse en fonction du temps.

• Stopper l'expérience lorsque la mousse atteint une hauteur de 20 cm.

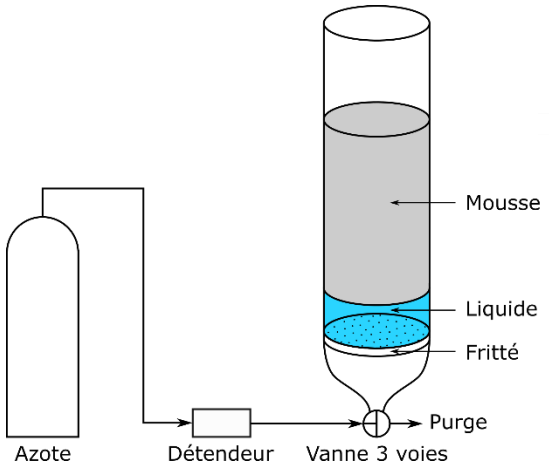


Figure 31. Montage expérimental pour le test de stabilité.

4. Moussabilité et stabilité : Résultats

4.1. Moussabilité

a. Influence de la formulation

La moussabilité (volume de mousse généré) en fonction des formulations est présentée en Figure 32. Mise à part l'ETD, les autres solutions ont, comme attendu, présenté une bonne moussabilité. Parmi celles-ci, le SLSA et le MELANGE ont présenté les capacités moussantes les plus élevées. Enfin, l'ajout de polymère a diminué la moussabilité. Cet effet est attribué à l'augmentation de la viscosité par le polymère qui réduit la formation de bulles (Hernando *et al.*, 2016, 2018).

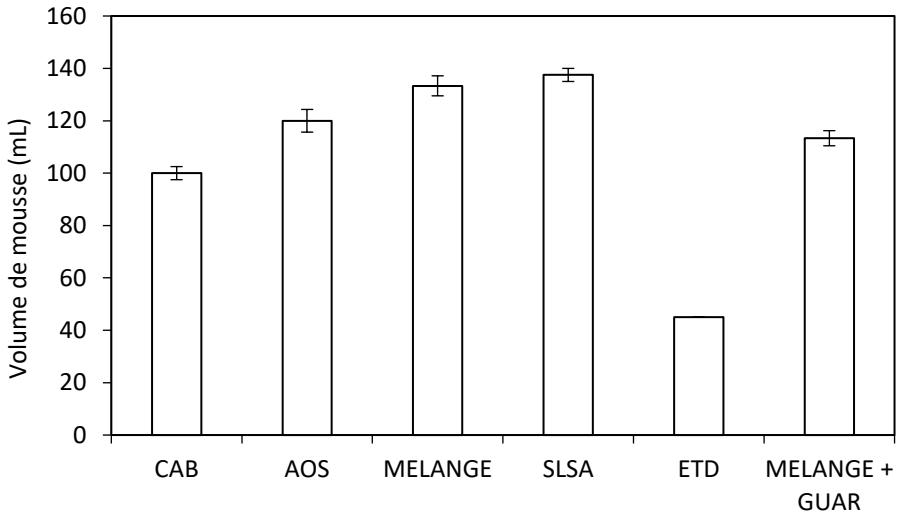


Figure 32. Moussabilité en fonction de la formulation.

b. Influence de la concentration

Une série d'expériences a été réalisée afin de mesurer la moussabilité d'une solution d'AOS en fonction de la concentration. La Figure 33 représente l'évolution du volume de mousse générée en fonction de la concentration, expérimée en multiples de la CMC.

Ces résultats confirment un résultat connu (Salager and Choplin, 2008) : la moussabilité est maximale et stable pour des concentrations supérieures à la CMC (1,8 $g.L^{-1}$). Cette expérience permet de valider le protocole expérimental et le fait de travailler à une concentration de 4xCMC. Celle-ci devrait garantir le fait de rester au-dessus de la CMC et de garder une bonne moussabilité en cas de perte de tensioactif par adsorption ou dilution.

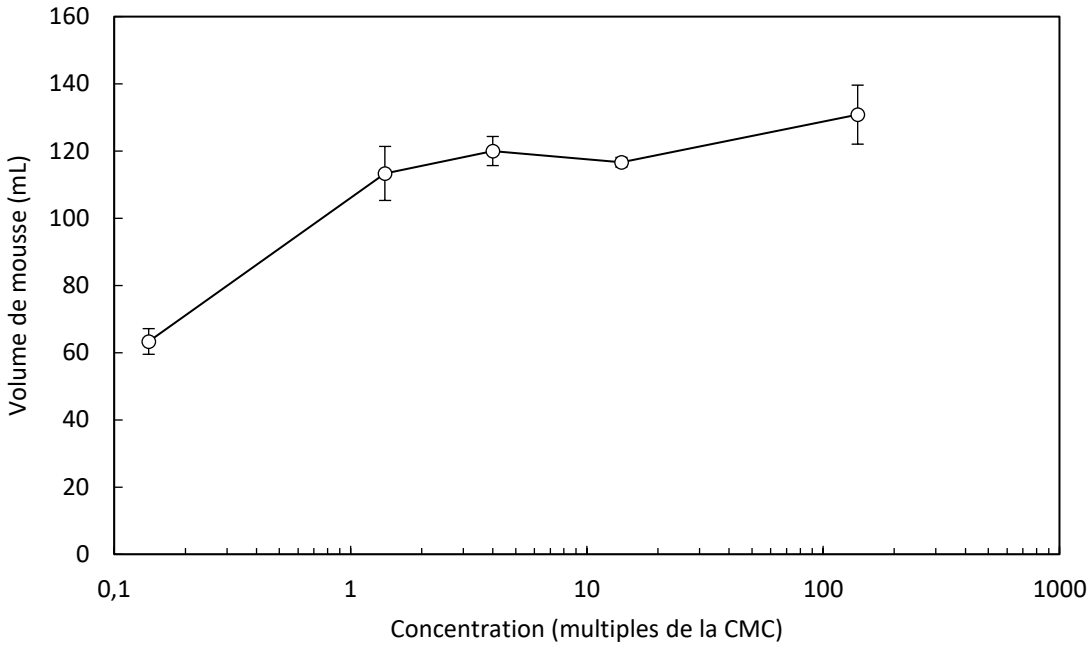


Figure 33. Moussabilité de l'AOS en fonction de la concentration exprimée en multiples de la CMC.

4.2. Stabilité

D'après Jones *et al.* (2016) la stabilité hors milieux poreux peut être corrélée avec la mobilité de la mousse en milieu poreux, paramètre qui est particulièrement intéressant pour les mousses bloquantes. Plus une mousse sera stable hors milieu poreux, plus sa mobilité sera réduite en milieu poreux. Il est donc primordial de mesurer la stabilité de chaque formulation pour choisir celle qui sera utilisée dans la suite des travaux en milieu poreux.

a. Influence de la formulation

Les résultats sur la stabilité des mousses générées par les diverses formulations sont présentés en Figure 34 et sont assez contrastés. Les expériences menées sur l'ETD et le MELANGE avec ajout de gomme de Guar n'ont pas pu être répétées par contrainte de temps. C'est pourquoi les résultats de ces deux formulations ne sont pas représentés avec des barres d'erreur.

L'ETD est apparu totalement instable et n'a donc pas été retenu. Le MELANGE semble être le tensioactif le plus stable. De plus, l'ajout de polymère permet de ralentir le mécanisme de drainage de la solution le long des lamelles et donc d'augmenter la stabilité de la mousse.

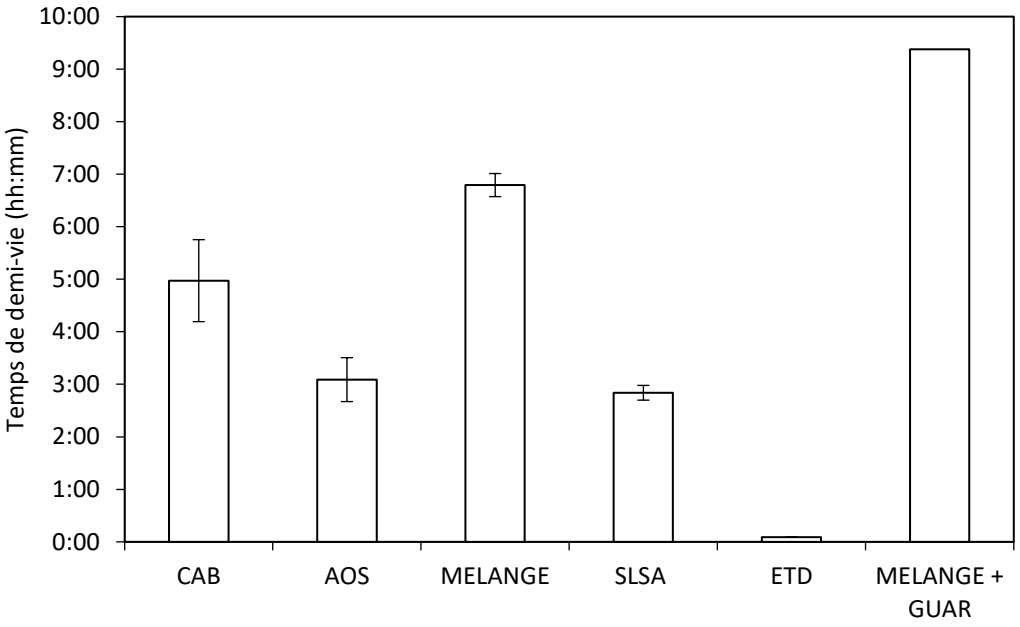


Figure 34. Stabilité en fonction de la formulation.

En Figure 35, nous représentons la hauteur de la colonne de mousse générée lors du test de stabilité en fonction du temps. Les courbes pour chaque répétition ont été interpolées sur un pas de temps de dix minutes et moyennées. Les barres d'erreur verticales représentent l'écart type de la hauteur de la mousse à un temps donnée. Les barres d'erreur horizontales sur le dernier point de chaque courbe représentent l'écart type du temps auquel la mousse atteint une hauteur de 20 cm (temps de demi-vie).

Les dynamiques de destruction de la mousse varient fortement en fonction des solutions de tensioactif. Il est possible de diviser ces dynamiques en deux parties (Simjoo, Rezaei, *et al.*, 2013).

La première, où le volume de la colonne de mousse reste égale à son volume initial, est contrôlée par la capacité de la mousse à résister au drainage pour rester humide et stable. Durant cette période, le liquide dans les lamelles s'écoulent par gravité vers le bas de la colonne. Les lamelles en haut de la colonne deviennent de plus en plus fine, jusqu'à atteindre une épaisseur limite initiant des phénomènes de coalescence. La plupart des formulations sont équivalentes sur ce point sauf le MELANGE qui est largement le plus stable. On peut estimer que cette particularité est due à une viscosité plus élevée de cette formulation. De plus, l'ajout de polymère augmente sensiblement la viscosité de la solution et permet d'améliorer cette stabilité initiale.

Dans la seconde, la destruction de la mousse commence. Les phénomènes de destruction regroupent à la fois le murissement d'Ostwald, qui homogénise et grossit la taille des bulles

(minimisé par le choix de l'azote comme gaz), et la coalescence qui détruit à proprement parler les lamelles.

On peut distinguer trois régimes de destruction principaux :

- Les destructions « en accélération » où la mousse se détruit de plus en plus rapidemment avec le temps, comme pour le MELANGE.
- Les destructions « en décélération » où la mousse se détruit de moins en moins rapidemment avec le temps, comme pour le CAB.
- Les destructions « en inflexion » où la destruction accélère puis décélère, faisant apparaître un point d'inflexion, comme pour l'AOS. Ce type de destruction pour l'AOS a déjà pu être observé dans la littérature (Simjoo, Rezaei, *et al.*, 2013).

Enfin, il est important de noter que la destruction de mousse peut se faire sous la forme d'*avalanches* où un important volume de mousse est détruit rapidement avant une période de stabilisation. Ce phénomène est indirectement visualisable sur les courbes moyennées par l'augmentation des barres d'erreur. Néanmoins, les régimes globaux de destruction cités ci-dessus restent répétables.

L'analyse de ces régimes de destruction permet de remettre en perspective le critère de temps de demi-vie, qui est arbitraire. Un choix différent (par exemple le temps auquel un quart de la mousse est détruite) mènerait à une hierarchie différente des formulations testées. Ce critère a été choisi comme paramètre discriminant car il est préférable de choisir un temps long pour mesurer le plus possible d'informations. Il était cependant impossible d'étudier la destruction complète de la mousse par contrainte temporelle. Enfin, le temps de demi-vie est couramment utilisé par la communauté scientifique (Simjoo, Rezaei, *et al.*, 2013; Jones *et al.*, 2016).

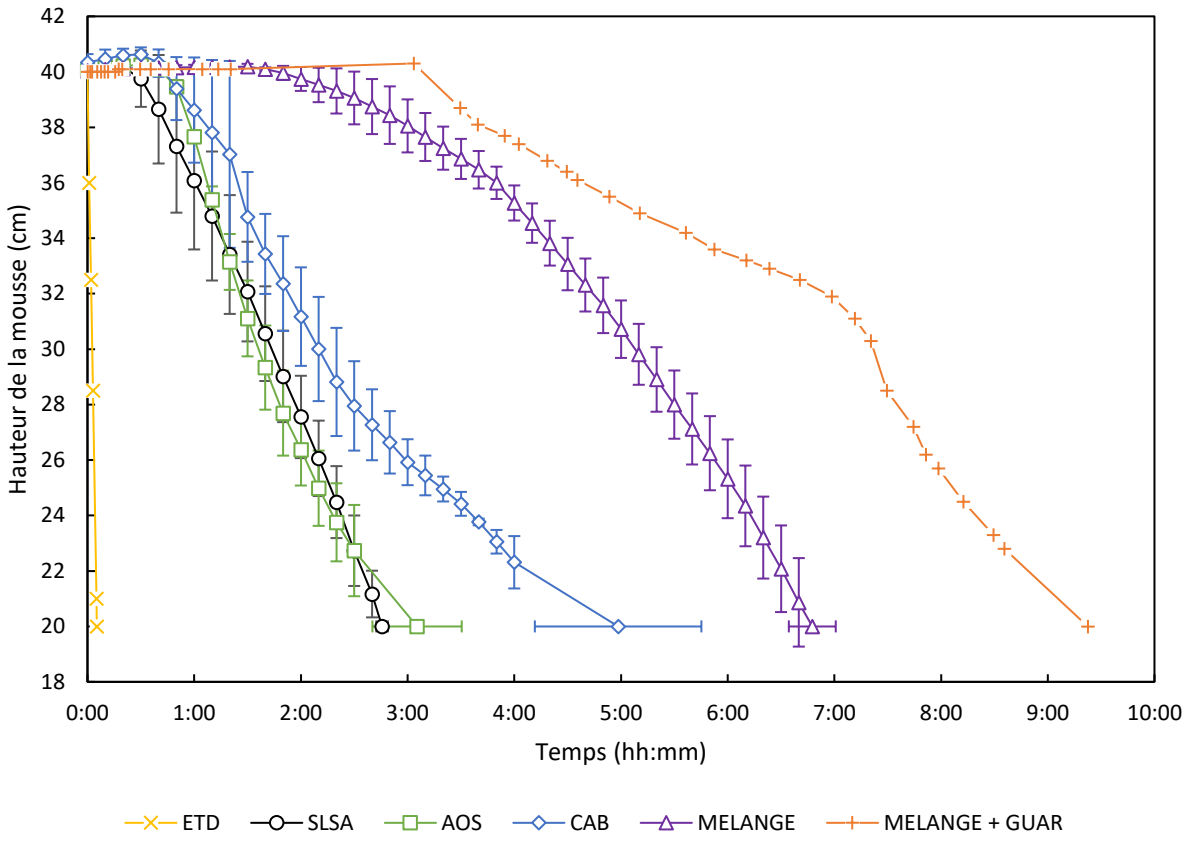


Figure 35. Dynamique de destruction en fonction de la formulation.

b. Influence de la concentration

Des mesures de la stabilité de la mousse de l'AOS en fonction de sa concentration ont également été effectuées. La Figure 36 représente l'évolution du temps de demi-vie en fonction de la concentration, exprimée en multiples de la CMC (1,8 $g.L^{-1}$). Les résultats des expériences menées à 0,14 et 14 fois la CMC n'ont pas pu être répétés par contrainte de temps et sont représentées sans barre d'erreur.

Contrairement à la moussabilité, le maximum de la stabilité n'est pas obtenu à partir de la CMC mais à une concentration comprise entre 1,4 et 4 fois la CMC. De plus, la stabilité chute pour une concentration très élevée (143 fois la CMC). A notre connaissance, ce phénomène de diminution de la stabilité au-delà d'une certaine concentration n'a pas été étudié dans la littérature. Simjoo et al. ont mesuré des temps de demi-vie pour des concentrations allant de 25 à 250 fois la CMC pour de l'AOS et ne notent pas de diminution de la stabilité. Une hypothèse pourrait être que la trop grande quantité de micelles présentes dans les lamelles liquides engendrerait une déstabilisation de ces dernières.

Ainsi, ces résultats confortent le choix d'une concentration de 4 fois la CMC pour garantir une bonne moussabilité et une stabilité satisfaisante.

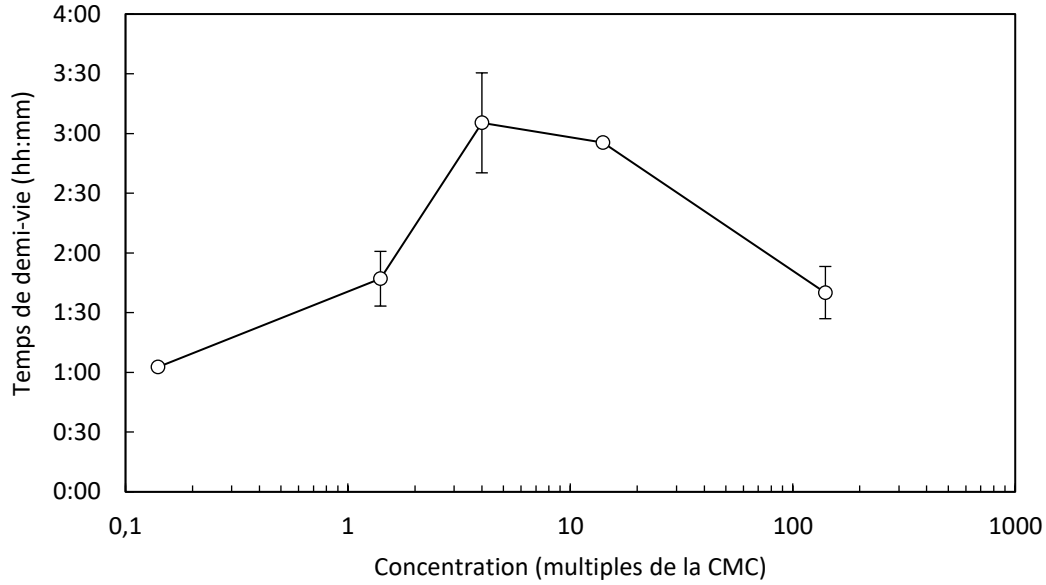


Figure 36. Stabilité de l'AOS en fonction de la concentration exprimée en multiples de la CMC.

5. Conclusions intermédiaires

Les résultats expérimentaux obtenus sur les mousses hors milieu poreux permettent de mieux comprendre les phénomènes et les propriétés qui régissent leur formation et leur stabilité. Après avoir mesuré leur CMC, une sélection de tensioactif a été testée sur des critères de moussabilité et de stabilité. Ces résultats permettent de mettre en lumières les performances de ces formulations.

De plus, l'influence de la concentration en tensioactif, relativement à la CMC, a été étudiée et a montré qu'une concentration comprise entre 4 et 14 fois la CMC est idéale pour maximiser la moussabilité et la stabilité des mousse.

Le Tableau 5 présente un bilan qualitatif des tests effectués et de la quantité d'étude dans la littérature traitant de ces formulations. Le MELANGE, avec ou sans GUAR, propose les caractéristiques de moussabilité et de stabilité les plus optimales. Cela montre qu'un mélange de tensioactifs permet d'obtenir des formulations prometteuses et qu'il serait judicieux d'étudier les interactions entre les tensioactifs. Cependant, l'établissement d'une formulation originale n'est pas l'objet de ces travaux de recherche et cette problématique ne sera pas traitée dans ce manuscrit. L'ETD est une formulation à écarter immédiatement au vue de ses caractérstiques. L'AOS, SLSA et CAB sont des formulations avec de bonnes caractéristiques. L'AOS est un tensioactif qui a été particulièrement étudié pour la génération de mousse dans la littérature (Farajzadeh, Krastev and Zitha, 2008). Il est donc un excellent candidat pour obtenir un point de référence dans la suite de ces travaux.

Ainsi, au regard des résultats présentés dans de chapitre, il a été décidé de travailler avec les formulations MELANGE et AOS pour les études menées en milieux poreux. Le premier car il présente le meilleur compromis entre stabilité et moussabilité, et le second car c'est un tensioactif documenté dans la littérature et qu'il présente des caractéristiques suffisantes pour servir de référence. L'ajout de GUAR, permettant d'améliorer la stabilité au détriment de la moussabilité, sera également étudié en milieux poreux.

Tableau 5. Tableau récapitulatif des caractéristiques qualitatives des formulations testées.

Formulation	Moussabilité	Stabilité	Données bibliographiques
AOS	++	+	+++
CAB	+	++	++
SLSA	+++	+	++
ETD	-	-	+
MELANGE	+++	+++	-
MELANGE + GUAR	++	++++	-

Chapitre 4

Etude expérimentale en colonnes

L'objectif principal de ce chapitre est de comprendre les mécanismes régissant les propriétés des mousses à effet bloquant dans un milieu de très haute perméabilité. Pour arriver à cela, des expériences en laboratoire ont été développées afin de travailler dans des environnements définis et contrôlés. Les mousses ont été étudiées dans des colonnes de sable ou de billes de verre calibrées qui sont des milieux modèles, bien maîtrisés, et reprenant les caractéristiques de perméabilité et porosité similaires à celles du site d'étude.

Les écoulements de mousse ont été largement étudiés grâce à des dispositifs expérimentaux impliquant des colonnes de milieux poreux, pour des applications principalement dans l'extraction du pétrole et la dépollution. Grâce à ces travaux, de nombreux résultats ont pu être publiés, notamment concernant l'influence de la qualité de la mousse (Alvarez, Rivas and Rossen, 2001), l'ajout de polymère associatif (Hernando *et al.*, 2018), les phénomènes d'hystérésis lors de l'écoulement (Kahrobaei, Vincent-Bonnieu and Farajzadeh, 2017) ou l'influence de la température (Wang *et al.*, 2012). La démarche expérimentale détaillée dans la suite de ce chapitre a été inspirée par les travaux de ces auteurs et a pour but d'étendre les résultats de la littérature aux milieux poreux très perméables, peu étudiés.

1. Matériel et méthodes

Cette section présentera les matériaux et les protocoles expérimentaux développés pour étudier l'écoulement de mousse dans les colonnes de milieux poreux de forte perméabilité.

1.1. Matériel et fluides

1.1.1. Milieux poreux

Le sol du site d'étude n'a pas été utilisé pour ces expérimentations. Cela n'aurait pas permis d'obtenir des résultats aisément exploitables en raison des hétérogénéités et de la haute variance des propriétés d'un milieu naturel. Cependant, les caractéristiques du sol du site d'étude ont été utilisées pour choisir des milieux poreux modèles. Ces milieux sont non-consolidés (billes et sables) et reprennent la gamme des perméabilités mesurées sur le site et permettent une analyse plus efficace des résultats. Le Tableau 6 synthétise leur caractéristiques et propriétés. Le diamètre des billes, la porosité et la perméabilité de chaque milieu est présentée dans le tableau ci-dessous.

Tableau 6. Milieux poreux et perméabilité correspondantes.

Milieux poreux	Billes de verre 4 mm	Billes de verre 2 mm	Billes de verre 1 mm	Sable BB 0.8/1.4	Sable Axton 0.6/1.6	Sable fin MI 0,4/0,9	Sable fin MI 0,1/0,6	Sable fin BR37
Diamètre médian D_{50} (mm)	4,0	2,0	1,0	1,052	NC	0,677	0,300	0,135
Porosité moyenne ϕ (–)	0,38	0,38	0,37	0,38	0,37	0,37	0,38	0,36
Perméabilité moyenne κ_{int} (m²)	$1{,}2\times10^{-8}$	$3{,}6\times10^{-9}$	$8{,}4\times10^{-10}$	$4{,}3\times10^{-10}$	$3{,}0\times10^{-10}$	$1{,}4\times10^{-10}$	$8{,}8\times10^{-11}$	$9{,}2\times10^{-12}$

- Billes de verre

Les milieux poreux constitués de billes de verre calibrées permettent d'obtenir des perméabilités élevées, proches des valeurs de perméabilités rencontrées sur le terrain et de créer des milieux modèles parfaitement homogène et maîtrisés. Les billes de verres permettent également de minimiser l'adsorption des tensioactifs anioniques. Leur aspect transparent permet de mieux observer l'aspect de la mousse et son écoulement dans la colonne. Les billes de 1 mm (porosité moyenne : 0,37 ; perméabilité moyenne : $8{,}4\times10^{-10}$ m²) sont celles principalement utilisées lors de cette étude. Des milieux poreux constitués de billes de 2 mm (porosité moyenne : 0,38 ; perméabilité moyenne : $3{,}6\times10^{-9}$ m²) et de 4 mm (porosité moyenne : 0,40 ; perméabilité moyenne : $1{,}2\times10^{-8}$ m²) ont également été utilisées pour étudier l'influence de la perméabilité. Les billes de verre ont été fourni par Hecht Assistant®.

- Sable BB

Ce sable (porosité moyenne : 0,38 ; perméabilité moyenne : $4{,}3\times10^{-10}$ m²), fourni par Sibelco®, permet de travailler avec un milieu plus proche de la réalité du site de par sa granulométrie plus hétérogène. La courbe granulométrique de ce sable et son diamètre médian D_{50}, fourni par Sibelco®, sont présentés en Figure 37.

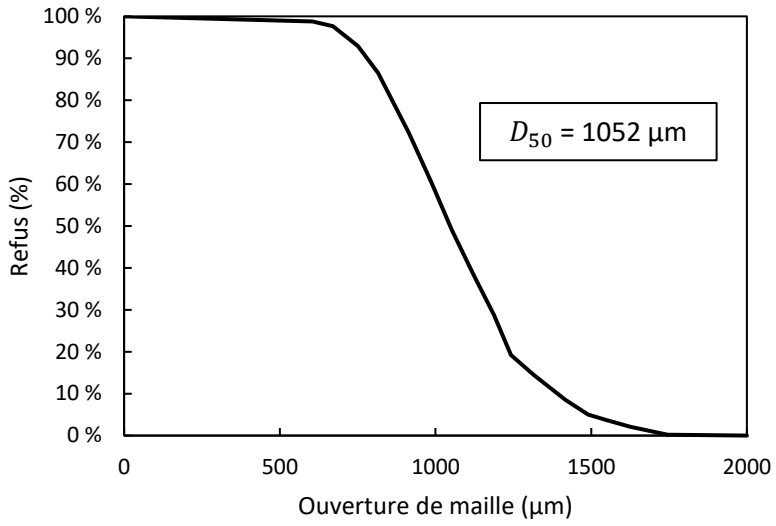


Figure 37. Granulométrie du sable BB. Les points exacts d'ouverture ne sont pas communiqués par le fabricant.

- Sable Axton

Ce sable commercial (porosité moyenne : 0,37 ; perméabilité moyenne : $3{,}0\times10^{-10}$ m²), fourni par Axton® comme filtre de piscine, possède une granulométrie de 0,6/1,6 mm. Le fabricant ne fournit pas de documentation plus précise sur sa granulométrie. Il permet de créer un milieu poreux d'une perméabilité faible afin de couvrir toute la gamme des perméabilités rencontrées sur le terrain.

- Sables fins

Les sables fins sont destinés à la création des prégénérateurs. Ces sables sont fournis par Sibelco®. Les perméabilités obtenues avec ce sable sont trop faibles pour reproduire les conditions du terrain mais ils trouvent leur utilité dans la prégénération d'une mousse fine, la taille moyenne des bulles d'une mousse étant en grande partie contrôlée par la taille des pores dans laquelle cette mousse a été générée. Ces sables fins sont appelée dans cette étude « sable fin MI 0,4/0,9 » (porosité moyenne : 0,37 ; perméabilité moyenne : $1{,}4\times10^{-10}$ m²), « sable fin MI 0,1/0,6 » (porosité moyenne : 0,38 ; perméabilité moyenne : $8{,}8\times10^{-11}$ m²) et « sable fin BR37 » (porosité moyenne : 0,36 ; perméabilité moyenne : $9{,}2\times10^{-12}$ m²). Ce dernier sera le milieu poreux de base du prégénérateur pour nos études. Les autres sables fins seront utilisés pour étudier l'influence de la perméabilité du prégénérateur sur l'écoulement de mousse. Les granulométries de ces sables fins et leurs diamètres médians D_{50} sont présentées en Figure 38, Figure 39 et Figure 40.

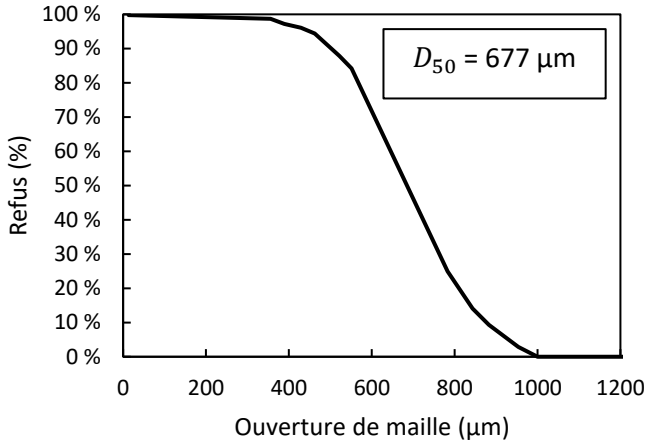


Figure 38. Granulométrie du sable fin 0,4/0,9. Les points exacts d'ouverture ne sont pas communiqués par le fabricant.

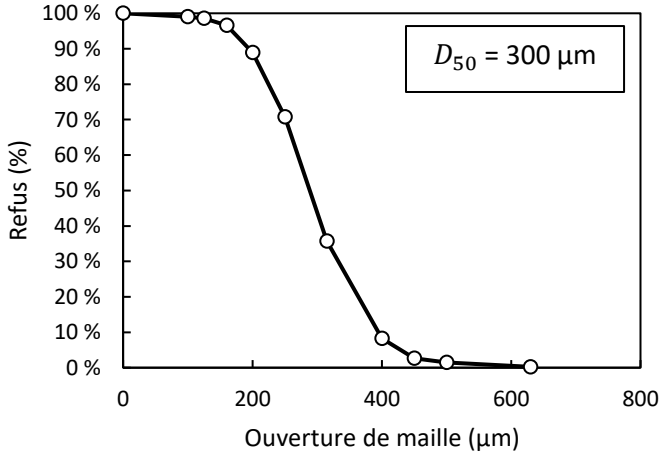


Figure 39. Granulométrie du sable fin 0,1/0,6.

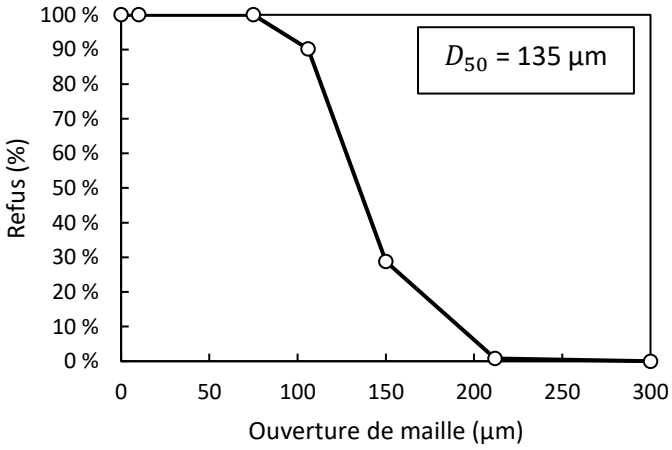


Figure 40. Granulométrie du sable fin BR37.

1.1.2. Solutions de tensioactif

Suite aux résultats obtenus au Chapitre 3, l'AOS et le MELANGE ont été choisis pour générer nos mousses. Les solutions de tensioactif ont été préparées à une concentration de 4xCMC dans de l'eau déionisée.

1.1.3. Gaz

Le gaz utilisé pour générer la mousse est du diazote fourni par Air Liquide® (pureté > 99,99 %). Le diazote garantit une meilleure stabilité de la mousse grâce à sa faible solubilité dans l'eau, cela permettant de réduire le murissement d'Ostwald (Farajzadeh *et al.*, 2011; Biswal *et al.*, 2016).

Du dioxyde de carbone, également fourni par Air Liquide® (pureté > 99,7 %), a également été utilisé lors de la préparation des colonnes.

1.2. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental permet d'injecter de la mousse dans une colonne remplie d'un milieu poreux dans lequel l'écoulement sera étudié. Les milieux poreux ont été assemblés dans des colonnes en polychlorure de vinyle (PVC) transparent de 4 cm de diamètre interne et 30 ou 40 cm de longueur effective selon l'expérience. Les colonnes sont fermées par des bouchons en PVC. L'étanchéité est assurée par deux joints sur chaque bouchon. Pour empêcher les billes et grains de sortir, ceux-ci sont retenus au moyen de grilles en inox de 250 µm placées entre le milieu et les bouchons. L'ensemble est maintenu par quatre barres en métal fixées sur les bouchons pour permettre à la colonne de résister à la pression (voir Figure 43). Dans la plupart des expériences, la mousse est préalablement injectée dans une colonne de sable fin, appelée prégénérateur, qui permet de créer de la mousse fine avant de l'injecter dans la colonne d'étude. Le prégénérateur est préparé dans une colonne en PVC de 10 cm de longueur effective. Des grilles en inox de 42 µm sont utilisées pour maintenir le sable à l'intérieur.

La solution de tensioactif et le gaz sont dirigés simultanément vers le prégénérateur (ou directement vers la colonne d'étude) grâce à un raccord en Té. La solution de tensioactif est injectée à l'aide d'une pompe volumétrique à double piston Strata® DCP50 ayant une gamme de 0 à 500 $mL.hr^{-1}$ avec une résolution de 1 $mL.hr^{-1}$. L'écoulement de gaz, détendu à 3 bar, est controlé par un débitmètre massique Bronkhorst® El-Flow Select ayant une gamme de 0,00 à 20,00 $mL_N.min^{-1}$ avec une résolution de 0,01 $mL_N.min^{-1}$. Un capteur de pression différentielle (Rosemount® 2051C réglé sur une gamme de 0-625 mbar pendant les écoulements d'eau et 0-3,5 bar pendant les écoulements de mousse, avec une precision de 0,065 % de la valeur maximum de la gamme) est connecté à l'entrée et à la sortie de la colonne d'étude et du

prégénérateur. Les effluents sont collectés dans une bouteille fermée afin d'éviter les pertes par évaporation. Afin d'établir un bilan de masse, cette bouteille est continuellement pesée avec une balance OHAUS® Scout STX6201 avec une résolution de 0,1 g. Les tubes utilisés dans le dispositif sont en perfluoroalkoxy alkane (PFA) et d'un diamètre interne de 1,65 mm, fourni par Swagelok®. Les connectiques et vannes utilisées sont en inox et fournies par Swagelok®.

Le disposif expérimental est présenté en Figure 41. Cette configuration utilisant le prégénérateur est appelé injection par « prégénération ». Un dispositif alternatif, présenté en Figure 42, est utilisé pour étudier la génération de mousse lors d'une co-injection directe de la solution de tensioactif et de gaz dans la colonne d'étude. Pour ces expériences, le prégénérateur est retiré du dispositif. Cette configuration est appelé injection par « co-injection ».

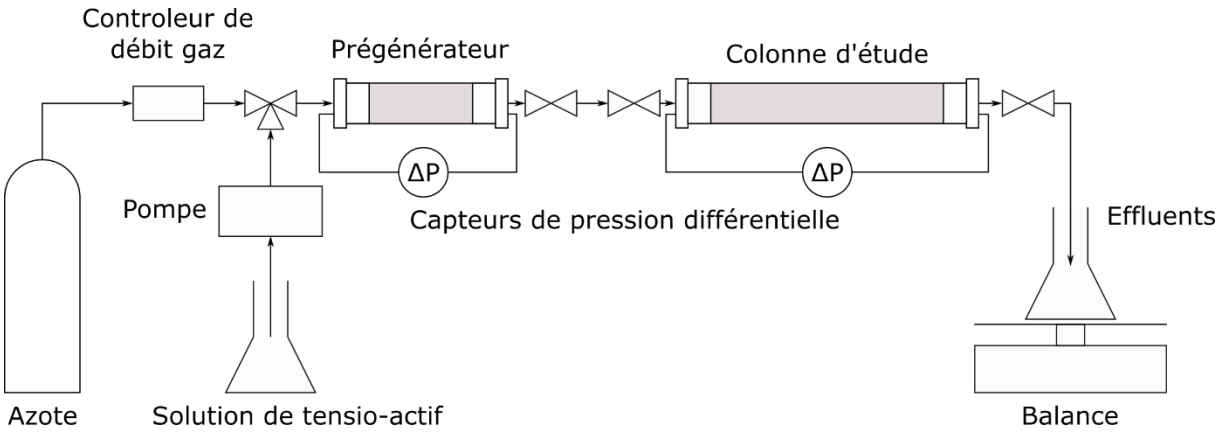


Figure 41. Schéma du dispositif expérimental (prégénération).

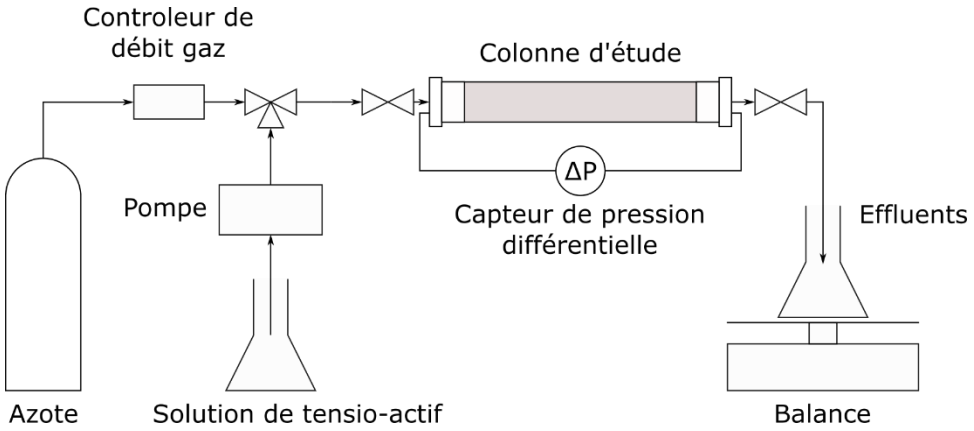


Figure 42. Schéma du dispositif expérimental (co-injection).

1.3. Protocoles expérimentaux

1.3.1. Préparation des milieux poreux

Avant de procéder à l'injection de mousse, les colonnes de milieux poreux sont préparées et saturées en solution de tensioactif. Le protocole ci-dessous décrit le processus de préparation de ces colonnes.

Les colonnes sont remplies lentement en tapotant sur la paroi afin d'assurer un arrangement spatial homogène du milieu poreux (voir Figure 43). Cette méthode permet d'obtenir une porosité effective similaire pour chaque milieu. Du dioxyde de carbone (CO_2) est injecté verticalement dans la colonne, par le bas (le CO_2 est plus dense que l'air), à un débit de 2,00 $mL_N.min^{-1}$ pendant au moins 10 volumes de pores (VP). La colonne est entièrement saturée en CO_2, qui a une solubilité élevée dans l'eau. Cette propriété permettra de dissoudre facilement les bulles de CO_2 éventuellement piégées dans la colonne. Ensuite, de l'eau déionisée et dégazée est injectée verticalement dans la colonne, par le bas (l'eau est plus dense et plus visqueuse que le CO_2), à 0,67 $mL.min^{-1}$ pendant au moins 3 VP. Grâce à la dissolution du CO_2 dans l'eau, la colonne est saturée à 100 % en eau. Enfin, la solution de tensioactif est injectée horizontalement (il n'y a pas de différence de densité), à un débit de 40 $mL.min^{-1}$ pendant au moins 3 VP pour satisfaire les conditions d'adsorption. Durant cette étape la pression différentielle est mesurée entre la sortie et l'entrée de la colonne. Aucune augmentation de la pression n'a été observée pendant cette étape, démontrant ainsi que les effets d'adsorption sont négligeables sur nos résultats. Les colonnes sont ainsi saturées en solution de tensioactif ce qui permet d'éviter les problèmes de dilution du tensioactif lors de l'injection de la mousse et d'atteindre le régime permanent plus rapidement.

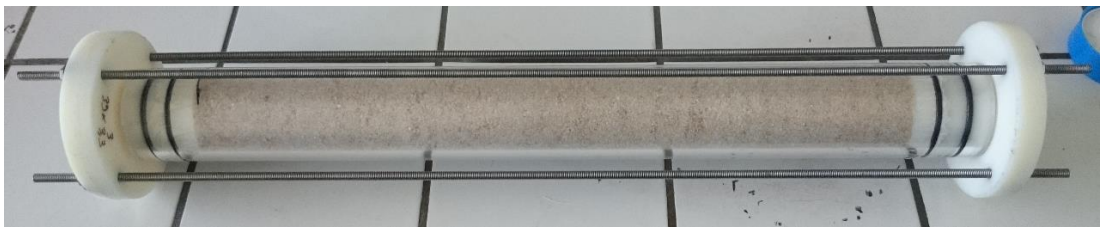


Figure 43. Une colonne de sable BB.

1.3.2. Injection de la mousse

Le gaz et la solution de tensioactif sont co-injectés dans le prégénérateur via un raccord en Té, respectivement à 3,40 $mL_N.min^{-1}$ et 0,60 $mL_N.min^{-1}$. Après l'établissement du régime permanent, le débit total est donc de 4,00 $mL_N.min^{-1}$ avec une qualité de mousse de 85 %. Cette qualité de mousse permet d'être dans le régime de basse qualité, où la mousse est plus stable, tout en

conservant une réduction de la mobilité importante. Le protocole d'injection par « prégénération » est détaillé ce-dessous:

• Saturer les capteurs de pression et leurs tuyaux en eau avant de les connecter pour éviter des instabilités de signal et des effets de compressibilité dûs à la présence de gaz.

• Déconnecter la sortie du prégénérateur et la placer dans un bécher.

• Co-injecter le gaz et la solution en tensioactif dans le prégénérateur et mesurer la pression différentielle le long de celui-ci. Continuer l'injection jusqu'à la stabilisation du signal de pression. La texture de la mousse en sortie est très fine et homogène.

• Sans stopper l'injection, connecter la sortie du prégénérateur à l'entrée de la colonne étudiée. C'est le début temporel (t=00:00:00) des mesures de pression différentielle dans la colonne et de masse des éffluents. Il s'agit de la phase d' « injection ».

• Lorsque le signal de pression est stabilisé, le régime permanent dans la colonne est atteint. Fermer la vanne entre le prégénérateur et la colonne et stopper l'injection. Il s'agit de la phase de « relaxation » .

• Lorsqu'il n'y a plus d'écoulement de mousse en sortie de la colonne, injecter de l'eau déionisée à 3,3 $mL.min^{-1}$ en entrée de la colonne. Il s'agit de la phase de « résistance ». à une vitesse apparente de 10 m/jour, qui est la vitesse d'écoulement dans la nappe souterraine du site d'étude.

• Lorsque seulement de l'eau est produite en sortie de la colonne et que le signal de pression est stable, stopper l'injection.

Pour les expériences effectuées en « co-injection », le protocole est le même en supprimant les étapes relatives au prégénérateur. Le gaz et la solution de tensioactif sont directement injectés dans la colonne d'étude.

Un résumé des débits utilisés pour ces expériences est présenté dans le Tableau 7. Une liste de toutes les expériences réalisées qui ont pu être exploitées pour réaliser ce chapitre est présentée en Annexe C.

Tableau 7. Débits utilisés pour les expériences

Débit total mousse	4,00 mL/min
Débit gaz	3,40 mL/min
Débit tensioactif	0,60 mL/min
Qualité mousse	85 %
Débit eau	3,3 mL/min (10 m/jour)

1.4. Analyse des données

Lors de ces expériences, trois types de données sont acquises. L'observation visuelle, les mesures de pression, et les mesures de masse.

L'observation visuelle permet d'identifier certains régimes d'écoulement de façon qualitative.

Les valeurs de pression permettent de calculer le Resistance Factor (RF). Dans cette analyse, le RF sera défini comme le rapport des différences de pression mesurées lors d'un écoulement de mousse et lors d'un écoulement d'eau au même débit. Cette valeur représente une réduction de la mobilité par la mousse. RF est calculé selon l'équation (29).

$$RF = \frac{\Delta p_{foam}}{\Delta p_w}|_{Q=const} \qquad (29)$$

Avec Δp_{foam} la différence de pression mesurée pendant l'écoulement de mousse (Pa) et Δp_w la différence de pression mesurée pendant l'écoulement d'eau (Pa) au même débit total Q ($m^3.s^{-1}$).

Le bilan de masse permet de calculer la saturation moyenne en liquide dans la colonne à tout instant. La saturation S_l (-) est calculée selon l'équation (30).

$$S_l = \frac{V_l}{V_p} = \frac{(m_{i,l} + m_{in,l} - m_{out,l})/\rho_l}{m_{i,l}/\rho_l} = \frac{m_{i,l} + m_{in,l} - m_{out,l}}{m_{i,l}} \qquad (30)$$

Avec V_l le volume de liquide dans le milieu poreux (m^3), V_p le volume de pore dans le milieu poreux (m^3), $m_{i,l}$ la masse initiale de liquide dans la colonne (kg), correspondant au volume de pore total car l'hypothèse est faite que la colonne est initialement saturée à 100 %, $m_{in,l}$ la masse de liquide entrant par l'injection de mousse (kg), contrôlée par une pompe, et $m_{out,l}$ la masse sortante de liquide (kg), mesurée par la balance.

2. Influence de la technique d'injection

L'ensemble des résultats obtenus permet dans un premier temps de s'intéresser à l'influence de la technique d'injection sur l'écoulement de mousse. Les résultats et interprétations présentés dans cette partie s'intéresseront à la comparaison entre co-injection et prégénération ainsi qu'à l'influence de la perméabilité du prégénérateur sur les grandeurs mesurées. Ces expériences ont été réalisées en utilisant de l'AOS comme tensioactif.

2.1. Comparaison de la co-injection et de la prégénération

2.1.1. Régimes d'écoulement

La Figure 44a représente une colonne de bille de verre de 1 mm de diamètre (κ_{int} = 8,4×10^{-10} m²) à l'état stationnaire lors d'un écoulement de mousse générée par co-injection (3,2 VP ; t = 148 min). La présence de gaz (mousse) est remarquable par la couleur gris clair en haut de la colonne. Ces observations montrent que le liquide initialement présent dans la colonne n'est que faiblement déplacé par la mousse. Celle-ci est affectée par la gravité et s'écoule principalement en haut de la colonne. Calculés pour un écoulement dans du sable BB, la saturation finale en liquide est de 21 % et le RF de 131 (respectivement calculés avec les équations (30) et (29)). La mousse obtenue dans ces conditions est considérée comme une « mousse faible ». Celle-ci est peu dense en lamelles.

La Figure 44b représente la même colonne que précédemment en régime transitoire lors d'un écoulement de mousse prégénérée (3,4 VP ; t = 156 min). Le prégénérateur est constitué de sable fin BR37 (κ_{int} = 9,2.10^{-12} m²). Deux régimes d'écoulement de mousse se succèdent. Premièrement, une mousse faible se comportant de manière similaire à la mousse co-injectée (Figure 44a), s'écoule dans le milieu (texte en bleu sur la figure). Dans un second temps, une mousse très dense en lamelle, remarquable par sa couleur plus claire, est générée. Cette mousse forme un écoulement piston et est peu sensible à la gravité, du fait de sa forte viscosité (front en rouge sur la figure). Cette mousse est nommée « mousse forte ». Lorsque l'écoulement a atteint son état stationnaire, la mousse forte a rempli complètement la colonne. Calculés pour un écoulement dans du sable BB, la saturation finale en liquide est de 8,8 % et le RF de 1936. Ces valeurs montrent quantitativement que la mousse forte réalise un balayage efficace du milieu.

Lorsqu'une mousse prégénérée est injectée dans un milieu de forte perméabilité, seule de la mousse faible est obtenu initialement à cause de la coalescence qui a lieu à l'entrée de la colonne. La perte de charge initiale est peu importante ce qui se traduit par une faible efficacité de balayage observée dans la Figure 44b (partie mousse faible). Au cours de l'écoulement, la perte de charge augmente avec la propagation de la mousse faible. Cette augmentation de la pression

permet de stabiliser les petites bulles de la mousse forte. Cela permet à la mousse de balayer de manière plus efficace le milieu poreux. L'observation directe du comportement de la mousse montre un changement de régime depuis un écoulement dispersé, sensible à la gravité, vers un écoulement « piston » (partie mousse forte). Ce comportement transitoire peut s'expliquer par un changement de régime de la mousse d'un état « faible » vers un état « forte » au fur et à mesure que le gradient de pression augmente.

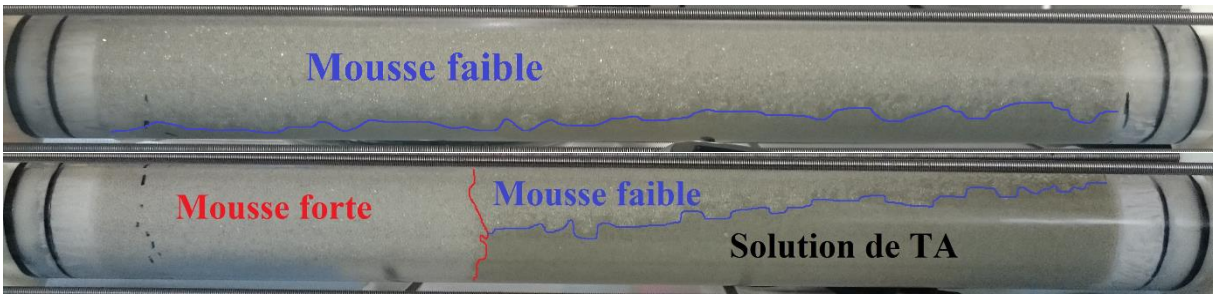


Figure 44. Photos d'écoulements de mousse dans des colonnes de billes de 1 mm.
a. (au-dessus) Co-injection (t = 148 min; 3,2 VP); l'écoulement est à l'état stationnaire.
b. (en-dessous) Prégénération (t = 156 min; 3.4 PV), l'écoulement est en état transitoire.

Le Tableau 8 présente les valeurs de RF et de S_l pour des expériences de co-injection et de prégénération réalisées avec un sable BB de perméabilité $4{,}3\times10^{-10}$ m². A l'état stationnaire, le RF de l'écoulement de mousse prégénérée est 14,8 fois supérieur à celui mesuré lors de l'écoulement de mousse co-injectée. La mousse prégénérée conduit à une saturation finale en liquide de 0,088, ce qui est 2,4 fois inférieur à la saturation en liquide obtenue lors de la co-injection. La prégénération permet donc d'avoir un bien meilleur balayage du milieu poreux (saturation en liquide faible) et une forte réduction de la mobilité (RF important). Ces propriétés sont recherchées dans une application de mousse de blocage.

Tableau 8. Influence de la technique d'injection sur le « Resistance factor », la saturation en liquide et le rapport $^{Bo}/_{Ca}$ (sable BB de perméabilité $4{,}3\times10^{-10}$ m²).

	Co-injection	Prégénération
RF (-)	131	1936
S_l (-)	0,21	0,088
$^{Bo}/_{Ca}$(-)	$2{,}3\times10^{-1}$	$1{,}5\times10^{-2}$

2.1.2.Equilibre des forces

Ces résultats illustrent les rapports entre les trois principales forces définissant un écoulement diphasique en milieu poreux : les forces capillaires, les forces de gravité et les forces visqueuses.

Deux nombres adimensionnels peuvent être utilisés pour quantifier le rapport entre ces forces : le nombre de Bond, Bo, et le nombre capillaire, Ca.

Le nombre de Bond mesure le rapport entre les forces de gravité et les forces capillaires, et est défini par $Bo = \frac{\Delta\rho g \kappa_{int}}{\sigma}$, avec $\Delta\rho$ la différence de densité entre les phases liquides et gazeuses (kg.m^{-3}), g l'accélération de la gravité (m.s^{-2}), κ_{int} la perméabilité du milieu (m²) et σ la tension de surface (N.m^{-1}). Le nombre capillaire mesure le rapport entre les forces de viscosité et les forces capillaires, et est défini par $Ca = \frac{\mu_{app} v}{\sigma}$, avec μ_{app} la viscosité apparente de la mousse (Pa.s) et v la vitesse interstitielle de la mousse (m.s^{-1}).

Dans cette étude, les milieux sont de forte perméabilité, et donc la taille des pores est élevée. De plus, grâce à l'action du tensioactif, la tension de surface est fortement réduite. Ces conditions réunies minimisent grandement la part des forces capillaires dans l'écoulement. Ainsi, les effets capillaires peuvent être exclus. L'équilibre des forces dans ce cas est donc déterminé par le rapport entre les forces de gravité et les forces visqueuses, représenté par le rapport $Bo/Ca = \frac{\Delta\rho g k}{\mu_{app} v}$.

Le Tableau 8 présente la valeur des rapports Bo/Ca dans le cas de la prégénération et de la co-injection. L'écoulement étant dominé par les forces visqueuses dans le cas de la prégénération et partiellement dominé par les forces gravitaires dans le cas de la co-injection, la transition entre régime gravitaire et régime visqueux se situe entre ces deux valeurs : 1,5×10^{-2} et 2,3×10^{-1}.

2.1.3. Taille des bulles

Quand le gaz et la solution de tensioactif sont directement co-injectés dans la colonne d'étude, les lamelles sont générées principalement par *snap-off*. C'est pourquoi la taille des bulles est de l'ordre de grandeur de la taille des pores du milieu. Pour calculer la taille des pores, le milieu poreux est considéré comme un faisceau de tubes capillaire, ce qui donne la relation suivante :

$$d_{pore} = \sqrt{\frac{32\,\kappa_{int}}{\phi}} \qquad (31)$$

Ainsi, dans le cas de co-injection dans une colonne de sable BB, la taille moyenne des bulles est de 0,19 mm. De la même façon, la taille des bulles qui sont générées dans le prégénérateur, constitué d'un sable fin BR37, peut être calculée. Les bulles ainsi générées ont une taille moyenne de 0,029 mm. Ces bulles s'écoulent ensuite dans la colonne principale qui est constituée d'un milieu beaucoup plus perméable et donc possédant des tailles de pores plus grandes (0,19 mm). Il y a donc entre 6 et 7 bulles qui s'écoulent simultanément dans les pores

du milieu. Les interactions entre les bulles et l'effet d'encombrement qu'elles génèrent provoquent l'augmentation de la viscosité apparente mesurée par le RF.

2.1.4. Ecoulement transitoire

Les Figure 45 et Figure 46 montrent l'évolution de la pression différentielle dans une colonne de perméabilité κ_{int} = 4,3×10^{-10} m² durant l'injection de mousse par prégénération. La mousse a été prégénérée dans un prégénérateur constitué de sable fin BR37 de perméabilité κ_{int} = 9,2×10^{-12} m². La percée de mousse faible à la sortie de la colonne est visible par une légère augmentation de la pression et l'apparition d'un fort bruit dans le signal dû à la structure dispersée de la mousse. Après la percée, la pression augmente non-linéairement pendant l'écoulement de mousse forte. Quand la mousse forte atteint la sortie de la colonne, l'augmentation de la pression ralentit mais ne se stabilisera qu'après l'injection de de 2 à 4 VP selon l'expérience. Cependant, la saturation en liquide se stabilise rapidement après la percée de mousse forte (voir la Figure 47, représentant l'évolution de la saturation en liquide dans la colonne). Cela signifie que la légère augmentation de pression après la percée de mousse forte n'a pas pour autant permis de déplacer plus de liquide en dehors de la colonne. Cette augmentation est due à des reconfigurations internes de la mousse dans la colonne.

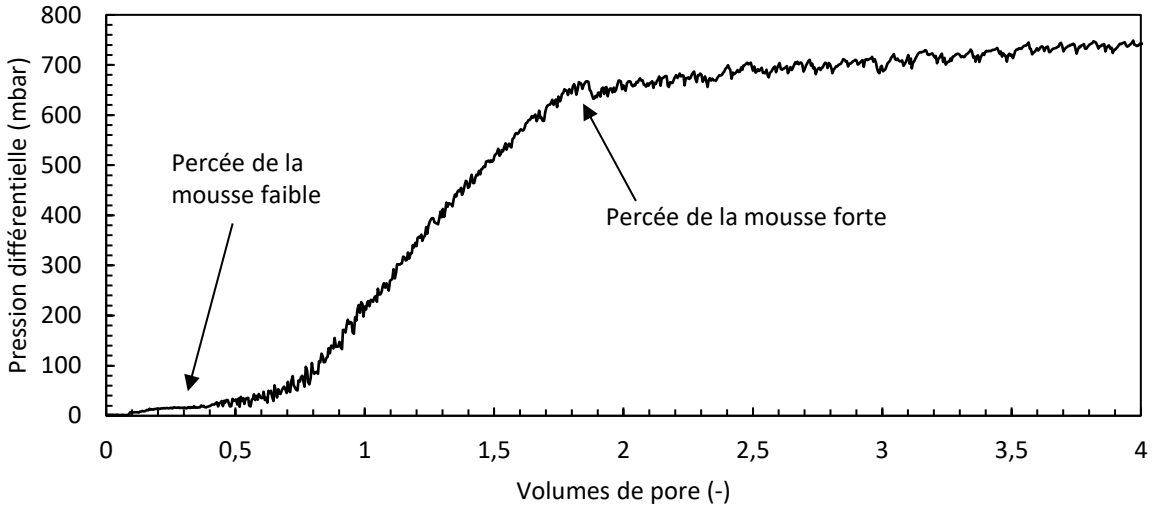


Figure 45. Pression différentielle durant un écoulement de mousse prégénérée dans une colonne de 30 cm de perméabilité 4,3×10^{-10} m².

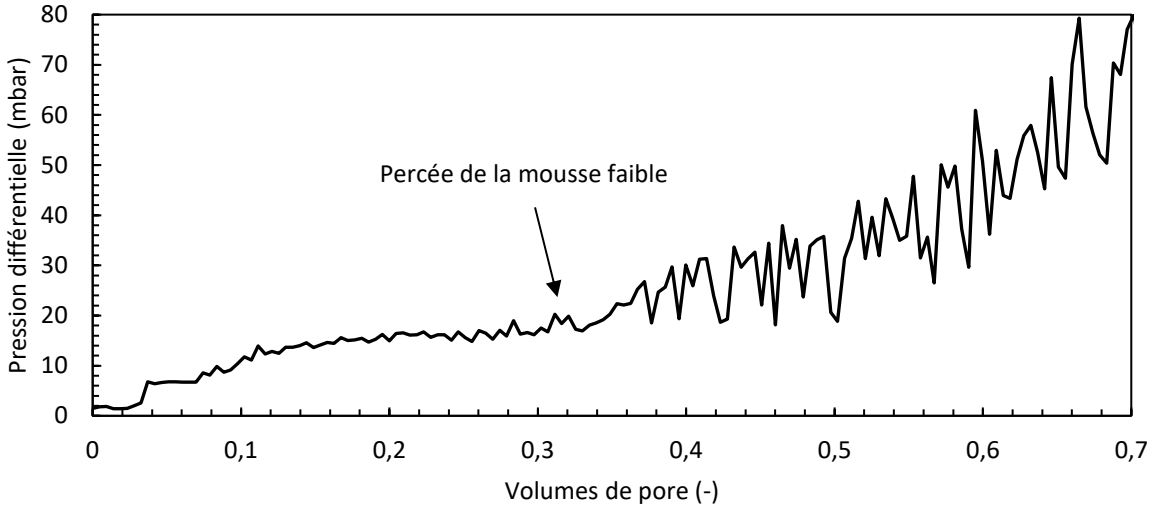


Figure 46. Zoom sur la gamme de temps correspondant à la percée de la mousse faible.

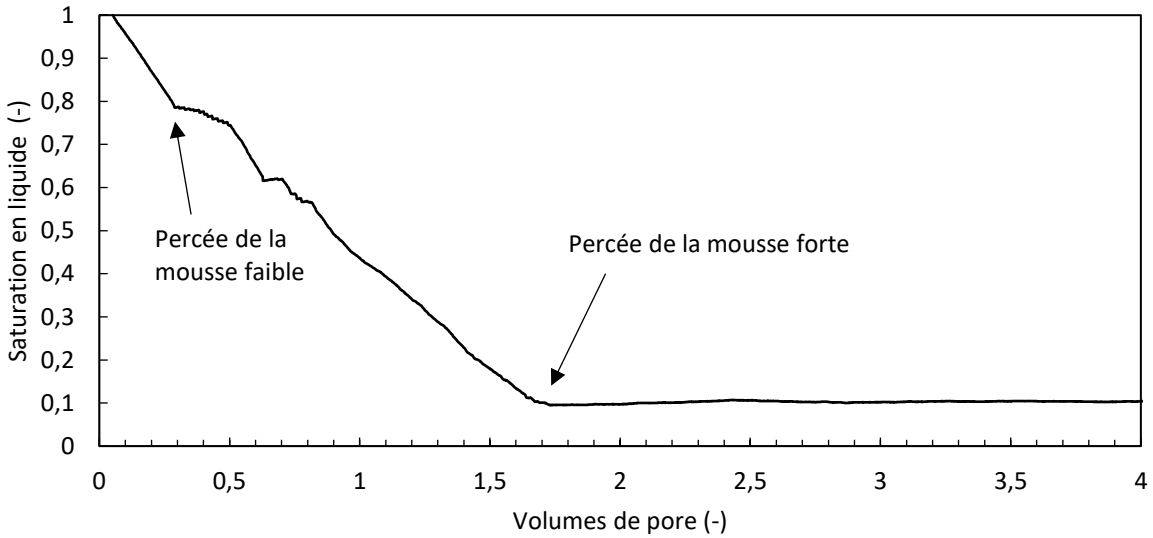


Figure 47. Saturation en eau durant un écoulement de mousse prégénérée dans une colonne de 30 cm de perméabilité $4{,}9\times10^{-10}$ m².

Les Figure 48 et Figure 49 montrent l'évolution de la pression différentielle dans une colonne de perméabilité κ_{int} = $3{,}8\times10^{-10}$ m² durant l'injection de mousse par co-injection. Lors de la co-injection, la pression différentielle augmente légèrement lorsque la mousse faible approche de la sortie de la colonne. Suite à la percée initiale de gaz la pression reste faible, ce qui est caractéristique de l'écoulement d'un fluide très peu visqueux. Cependant, contrairement à la prégénération, le signal de pression se stabilise immédiatement après la percée finale de la mousse avec un bruit sur le signal qui reste très élevé.

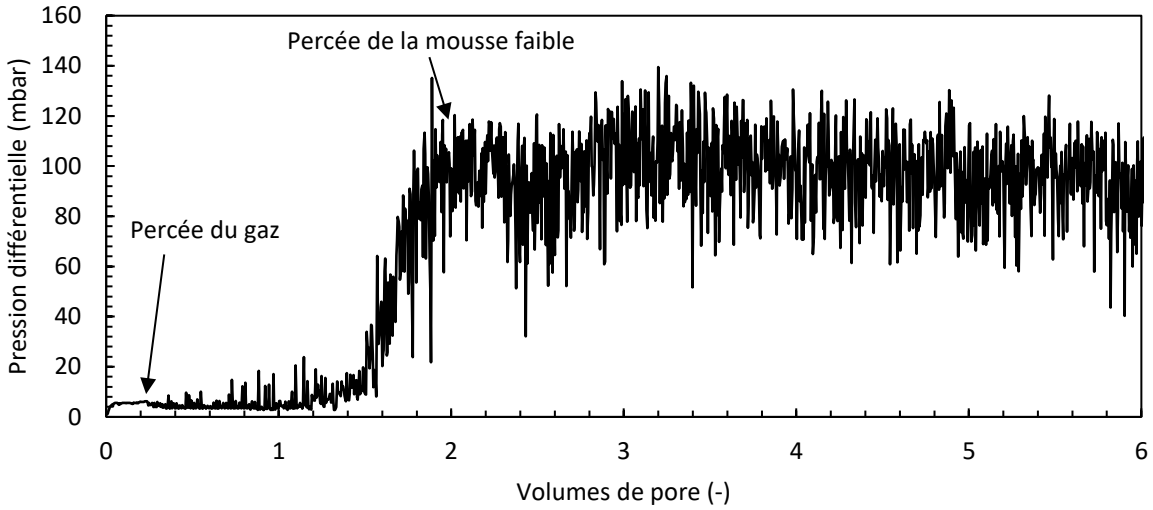


Figure 48. Pression différentielle durant un écoulement de mousse prégénérée dans une colonne de 30 cm de perméabilité $3{,}8\times10^{-10}$ m².

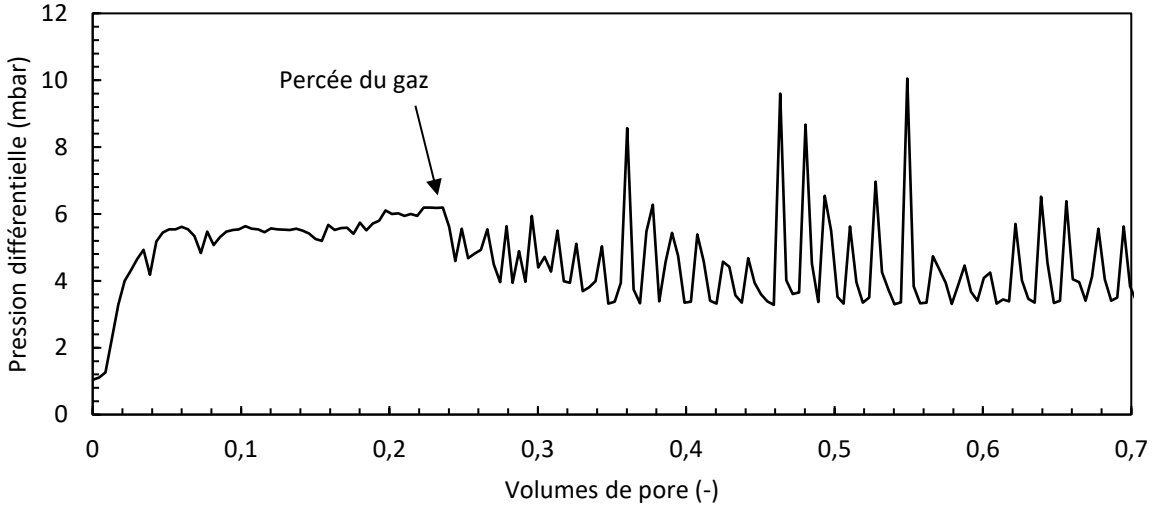


Figure 49. Zoom pendant la percée du gaz.

Les expériences présentées dans la suite de ce chapitre seront toutes effectuées avec le prégénérateur dans le dispositif expérimental. En effet, la prégénération permet d'obtenir les propriétés bloquantes attendues de nos mousses et sera toujours utilisée comme technique d'injection par la suite.

2.2. Influence de la perméabilité du prégénérateur

Afin d'étudier l'influence de la perméabilité du prégénérateur sur les propriétés des mousses dans les milieux de haute perméabilité, plusieurs expériences ont été menées en utilisant des

sables fins de perméabilité $9{,}2\times10^{-12}$, $8{,}8\times10^{-11}$ et $1{,}4\times10^{-10}$ m² comme prégénérateurs. Pour ces expériences, le milieu poreux considéré dans la colonne principale est du sable BB de perméabilité κ_{int} = $4{,}3\times10^{-10}$ m².

En Figure 50 et Figure 51 est représenté l'influence de la perméabilité du prégénérateur sur le RF et sur la saturation en liquide au régime stationnaire. Ces résultats ne montrent pas de différence notable sur les mesures du RF et de saturation. Pour toutes les expériences, le phénomène d'écoulement à deux régimes décrit en partie 2.1.1 a été observé. Ces résultats démontrent que la taille moyenne de bulle en sortie du prégénérateur ne modifie pas quantitativement les propriétés de la mousse. Ainsi, le prégénérateur initialise seulement la génération de lamelles. Par la suite, les phénomènes créant la mousse forte se produisent dans la colonne d'étude elle-même. Cette hypothèse est renforcée par les travaux précédemment cités de Liontas *et al.* (2013) qui montrent que le phénomène de "*pinch-off*" permet de générer de très petites bulles dans une mousse lorsque celle-ci s'écoule avec plusieurs bulles par pore. Ainsi, utiliser un prégénérateur d'une perméabilité suffisamment faible pour avoir quelques bulles par pore dans le milieu d'injection semble suffisant pour créer plus de lamelles *in situ* et générer une mousse forte. Cette conclusion est particulièrement importante pour une application de l'injection de mousse de blocage sur le terrain car utiliser un prégénérateur plus perméable permettrait de réduire les pressions d'injection sans compromettre les propriétés de la mousse.

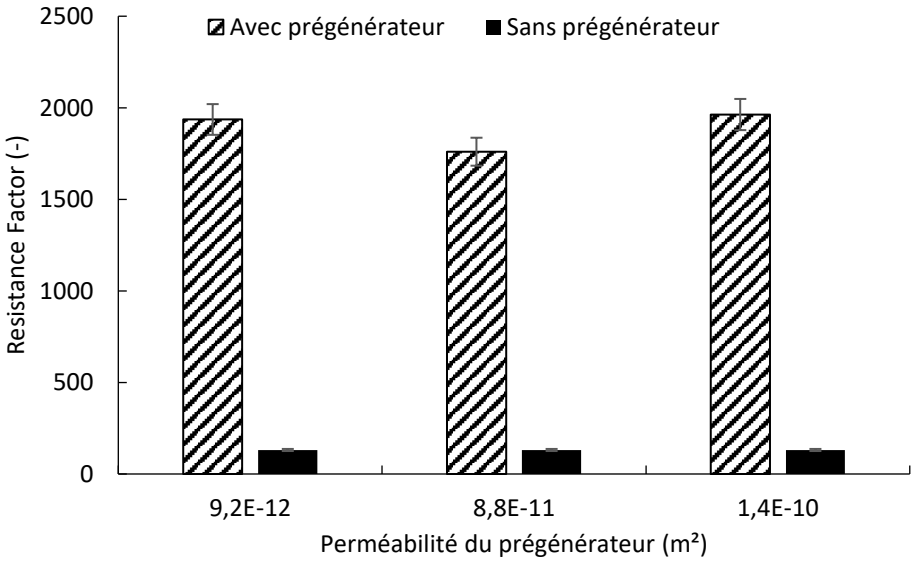


Figure 50. Influence de la perméabilité du prégénérateur sur RF.

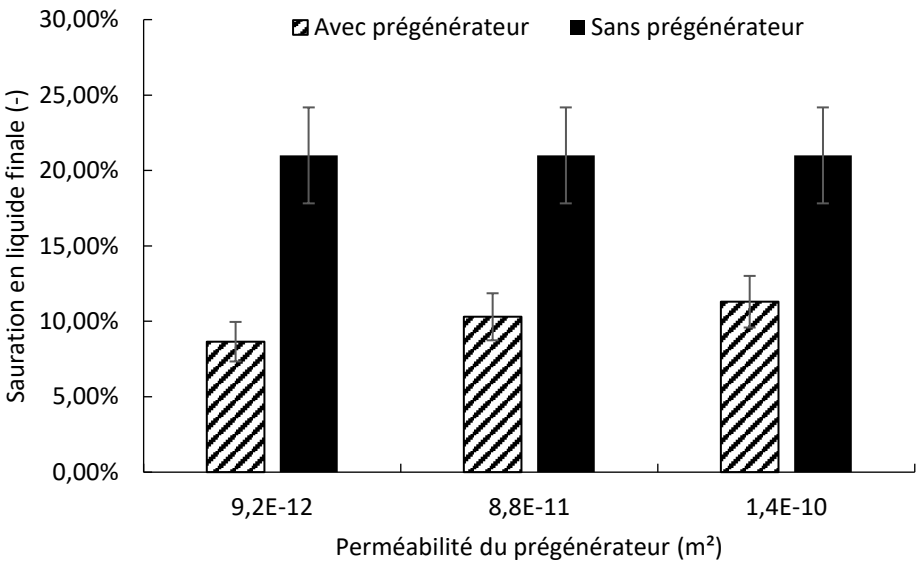


Figure 51. Influence de la perméabilité du prégénérateur sur S_l.

Les expériences présentées par la suite ont été réalisées en utilisant un prégénérateur en sable fin BR37 (κ_{int} = 9,2×10^{-12} m²).

3. Discussions complémentaires

Dans cette partie seront développés plusieurs discussions traitant de l'écoulement de mousse en milieu poreux de forte perméabilité.

3.1. Compressibilité de la mousse en milieu poreux

L'établissement de la loi de Darcy suppose l'incompressibilité des fluides s'écoulant dans le milieu poreux. Dans le cas des mousses, le gaz est en réalité un fluide compressible. Ainsi, la vitesse du fluide dépend de sa masse volumique et donc de sa pression. Ci-dessous est développé un calcul des pressions en prenant en compte la compressibilité dans un exemple simplifié.

En considérant l'exemple d'un écoulement unidimensionnel selon un axe *x*, ne faisant pas intervenir de forces gravitaires. La loi de Darcy avant intégration s'écrit :

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{q(x)\mu}{\kappa_{int}} \quad (32)$$

La vitesse du fluide peut s'écrire en fonction du flux massique $\dot{m}$ (kg.m^{-2}.s^{-1}) qui est constant :

$$q(x) = \frac{\dot{m}}{\rho(x)} \quad (33)$$

De plus, en supposant que le gaz est parfait, ce qui est acceptable pour l'air ou l'azote, la masse volumique peut s'exprimer en fonction de la pression du fluide :

$$\rho(x) = \frac{p(x)M}{RT} = \frac{p(x)}{rT} \quad (34)$$

Avec T la température (K), R la constante des gaz parfaits (J.K^{-1}.mol^{-1}), M la masse molaire du gaz (kg.mol^{-1}) et $r = \frac{R}{M}$ une constante dépendant du gaz (J.K^{-1}.kg^{-1}).

En remplaçant ces expressions dans l'équation (32) :

$$-p\partial p = \frac{\dot{m}\mu r T}{\kappa_{int}}\partial x \quad (35)$$

En intégrant l'équation (35) entre l'entrée 1 et la sortie 2 :

$$p_1^2 - p_2^2 = 2\frac{\dot{m}\mu r T}{\kappa_{int}}(x_2 - x_1) \quad (36)$$

En intégrant l'équation de Darcy monophasique en écoulement incompressible, sans forces gravitaires, on obtient :

$$p_1 - p_2 = \frac{q\mu}{\kappa_{int}}(x_2 - x_1) \quad (37)$$

Les conditions expérimentales de notre étude qui aboutissent aux différences les plus extrêmes entre les deux formulations (injection d'une mousse très visqueuse dans un milieu peu perméable) sont : $p_2 = 10^5\ Pa$; $q = 4{,}4 \times 10^{-5}\ m.s^{-1}$; $\mu = 3{,}1\ Pa.s$; $\kappa_{int} = 2{,}7 \times 10^{-10}\ m^2$; $x_2 - x_1 = 0{,}4\ m$; $\dot{m} = 5{,}3 \times 10^{-5}\ kg.m^{-2}.s^{-1}$; $r = 297\ J.kg^{-1}.K^{-1}$; $T = 293\ K$.

Celles-ci donnent :

$$p_{1,compressible} = 2{,}3 \times .10^5\ Pa \quad (38)$$

$$p_{1,incompressible} = 3{,}0 \times .10^5\ Pa \quad (39)$$

Soit une erreur de 23 % relativement au cas incompressible. Dans les cas plus favorables (perméabilité plus importante et donc pressions plus faibles), l'erreur est négligeable. Le phénomène de compressibilité fait augmenter la vitesse du gaz le long d'un écoulement. La mousse étant un fluide rhéofluidifiant (voir Partie 4), la viscosité diminue donc le long de la colonne. Lorsque la viscosité apparente de la mousse sera mentionnée dans la suite de ces travaux, il s'agira de la viscosité moyenne dans la colonne, calculée à partir de la différence de pression entre l'entrée et la sortie de la colonne. Ainsi, devant la difficulté expérimentale et théorique de prendre en compte le phénomène de compressibilité pour des écoulements diphasiques en milieu poreux, celui-ci a été partiellement ignoré dans la suite de cette thèse.

3.2. Temps de percée

Le Tableau 9 récapitule les résultats obtenus relatifs au temps de percée de mousse faible et de mousse forte lors d'une injection par prégénération. Toutes les mousses ont été prégénérées dans du sable fin BR37. Le temps de percée de mousse faible correspond à l'instant où les premières bulles de gaz sont vues en sortie de la colonne. Le temps de percée de la mousse forte correspond à l'instant où l'écoulement piston de mousse forte atteint la sortie et coïncide avec une pseudo-stabilisation de la pression. Dans des milieux de perméabilités allant de $4{,}3\times10^{-10}$ à $8{,}6\times10^{-10}$ m², la percée de mousse faible intervient de façon répétable à 0,32±0,02 VP. Cependant, le temps de la percée de mousse forte se situe entre 1,7 et 4,1 VP pour ces expériences. Cela montre la sensibilité de la mousse forte aux conditions initiales et à l'arrangement géométrique du milieu poreux.

Un phénomène particulier s'est produit pendant les expériences dans les colonnes de perméabilité $3{,}6\times10^{-9}$ et $1{,}2\times10^{-8}$ m². La mousse faible s'écoulant initialement dans la colonne n'a pas réussi à percer à la sortie de la colonne. Cela pourrait être dû au fait que la pression capillaire d'entrée dans le tube de sortie était trop forte à cause de la grande différence entre la taille du tube et la taille des pores du milieu à ces perméabilités. Ainsi, la mousse faible n'ayant pas pu entrer dans le tube de sortie de la colonne, la pression a été conservée dans la colonne et qui a permis à la mousse forte de se générer plus rapidement. Lorsque la mousse forte était proche de la sortie de la colonne, la pression était suffisamment forte pour permettre à la mousse faible de sortir, qui fut rapidement suivit par la mousse forte.

Pour ces expériences, les temps de percée de la mousse faible supérieurs à 1 VP ne sont pas intuitifs mais peuvent être expliqués. Premièrement, il est possible que la solution de tensioactif s'écoule plus rapidement que le gaz. La percée étant remarquable uniquement au gaz, il est impossible de savoir quand se situe la véritable percée du tensioactif injecté. On peut ainsi calculer le temps de percée en se basant sur le volume de gaz injecté, en multipliant les volumes de pore par la fraction volumique de gaz injecté (0,85). Pour le cas des billes de verre de 2 mm, cela correspond à un temps de percée de 1,05 VP, toujours supérieur à 1 VP. Une explication complémentaire consiste à considérer la compressibilité du gaz pendant l'injection. La pression étant élevée dans la colonne, le gaz se compresse et son débit volumique diminue. Cela pourrait compléter la justification de ces temps de percée supérieurs à 1 VP.

Tableau 9. Temps de percée des mousses fortes et faibles pendant l'injection de mousse prégénérée.

Milieux poreux	Perméabilité de la colonne principale (m²)	Temps de percée de la mousse faible (VP)	Temps de percée de la mousse forte (VP)
Sable BB	$4{,}2\times10^{-10}$	0,34	4,1
Sable BB	$4{,}3\times10^{-10}$	0,32	2,0
Sable BB	$4{,}5\times10^{-10}$	0,32	1,7
Billes de verre de 1 mm	$8{,}6\times10^{-10}$	0,30	3,2
Billes de verre de 2 mm	$3{,}6\times10^{-9}$	1,24	1,32
Billes de verre de 4 mm	$1{,}2\times10^{-8}$	1,09	1,23

3.3. Valeurs des saturations en liquide

Comme présenté dans le Tableau 8, la saturation en liquide dans la colonne pendant l'écoulement permanent de mouse prégénérée est inférieure à la fraction volumique de liquide injecté (S_l = 8,8 % et f_w = 15 %). Le dispositif ne permettait pas de calculer la saturation résiduelle en liquide dans la colonne, c'est-à-dire la fraction volumique de liquide qui n'est pas déplacée par la mousse. Cependant, la mousse forte étant un fluide très visqueux s'écoulant en piston, la saturation en liquide résiduelle devrait être très faible.

Pour expliquer pourquoi la fraction volumique en liquide inférieure à celle injectée, une reconfiguration de la mousse dans le milieu poreux peut être envisagée. En effet, dans le milieu poreux, la taille et la densité des bulles sont contrôlées par les phénomènes de génération et de destruction des lamelles. Le volume nécessaire de solution de tensioactif pour mouiller la surface et stabiliser les lamelles dépend de l'aire de la surface, de la concentration en tensioactif et de l'épaisseur de la lamelle. Une fois que l'écoulement est en régime permanent, le liquide en excès, c'est-à-dire dispensable pour la stabilisation de la mousse, est poussé hors du milieu poreux, diminuant ainsi la saturation mesurée.

Ces résultats peuvent paraître contre-intuitifs car cela signifie que la phase liquide s'écoule plus rapidement que la phase gazeuse dans le milieu poreux. Cependant, l'effet de la reconfiguration des bulles peut également être observé à d'autres niveaux de saturation en liquide. Eftekhari, Krastev et Farajzadeh (2015) ont calculé une saturation en liquide variant seulement de 40 à 45 % alors que la mousse injectée, verticalement, avait une qualité variant de 10 à 90 %. Skauge *et al.* (2019) ont également mesuré une saturation en liquide constant à 35 % alors que la qualité de la mousse injectée variait de 50 à 90 %. Ces résultats sont également en adéquation avec la théorie du « fractional flow » appliquée aux mousse par Dholkawala, Sarma et Kam (2007). Cette théorie montre, dans le cas de la mousse forte, que la saturation en liquide dans le milieu poreux n'est pas égale à la fraction volumétrique de liquide injectée (c'est-à-dire la qualité).

4. Influence de la perméabilité et comportement non-Newtonien

Pour étudier l'influence de la perméabilité de la colonne principale sur les propriétés de l'écoulement de mousse, des expériences ont été effectuées dans des colonnes de perméabilité allant de κ_{int} = 4,2×10^{-10} m² à 1,2×10^{-8} m². Toutes ces expériences ont été réalisées en prégénérant la mousse dans un sable fin BR37 de perméabilité 9,2×10^{-12} m².

L'évolution du RF en fonction de la perméabilité est représentée en Figure 52. Ces données correspondent aux valeurs mesurées en écoulement permanent. Il est montré que le RF augmente selon une loi puissance de la perméabilité ($R^2 = 0{,}98$) :

$$RF = 9{,}3 \times 10^5 \times {\kappa_{int}}^{0{,}28} \quad (40)$$

Cette relation peut être interprétée sous l'angle de la rhéologie. Le RF, par définition, représente la réduction de mobilité de la mousse par rapport à un écoulement d'eau monophasique, et peut ainsi s'exprimer :

$$\frac{1}{\mu_w} = RF \times \frac{k_{r,fm}}{\mu_{app}} \quad (41)$$

Avec μ_w la viscosité de l'eau (Pa.s), μ_{app} la viscosité apparente de la mousse (Pa.s) et $k_{r,fm}$ la perméabilité relative à la mousse (-).

Lors des écoulements de mousse par prégénération, un très fort balayage de milieu poreux par la mousse a été observé, associé à des valeurs de saturation en liquide très faibles. Ces résultats permettent de faire l'hypothèse que la saturation résiduelle en eau est très faible lors du régime permanent d'écoulement de mousse forte. Il y a donc un écoulement quasi-monophasique de mousse et $k_{r,fm} \approx 1$. Le RF peut donc être interprété comme une augmentation pure de la viscosité apparente de la mousse :

$$\mu_{app} = RF \times \mu_w \quad (42)$$

En considérant le milieux poreux comme des tubes capillaire, le taux de cisaillement lors d'un écoulement peut être calculé ainsi (Stavland *et al.*, 2010):

$$\dot{\gamma} = 4\alpha v \sqrt{\frac{\phi}{8\kappa_{int}}} \quad (43)$$

Où $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement (s^{-1}), α un paramètre géométrique (-), ici égal à 1 par la forme régulière des billes de verre, v la vitesse interstitielle ($m.s^{-1}$), ϕ la porosité (-) et κ_{int} la perméabilité (m^2). A partir des mêmes résultats, il est ainsi possible de tracer la viscosité apparente de la mousse en fonction du taux de cisaillement (Figure 53).

Les relations (40) et (42) peut être modifiées pour exprimer le viscosité apparente de la mousse en fonction du taux de cisaillement. Il est possible d'identifier dans cette relation un comportement rhéofluidifiant sous la forme de la loi puissance :

$$\mu_{app} = K(\lambda\dot{\gamma})^{n-1} = 5{,}7\dot{\gamma}^{-0{,}57} \qquad (44)$$

Où K = 5,7 Pa.s est l'indice de consistance, λ = 1 s le temps naturel, n = 0,43 (-) l'indice d'écoulement. Ces valeurs sont en adéquation avec d'autres résultats venant de la littérature (Alvarez, Rivas and Rossen, 2001). Ainsi, il est conclu que l'augmentation du RF en fonction de la perméabilité est essentiellement due au comportement non-Newtonien rhéofluidifiant de la mousse.

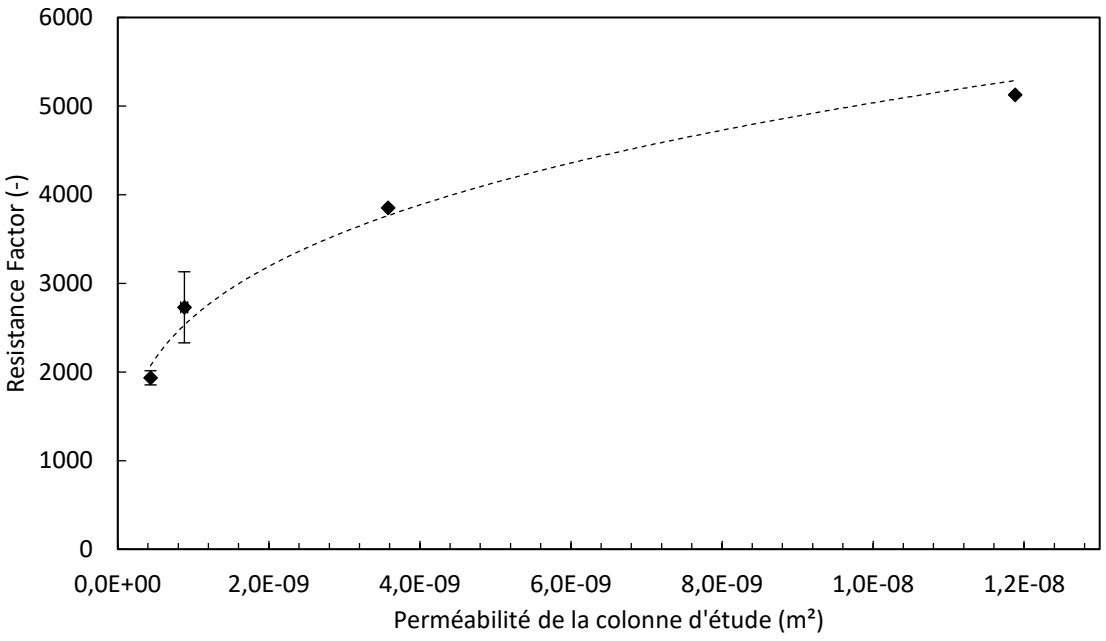


Figure 52. Influence de la perméabilité sur le RF. Les barres d'erreur représentent l'incertitude et l'écart-type.

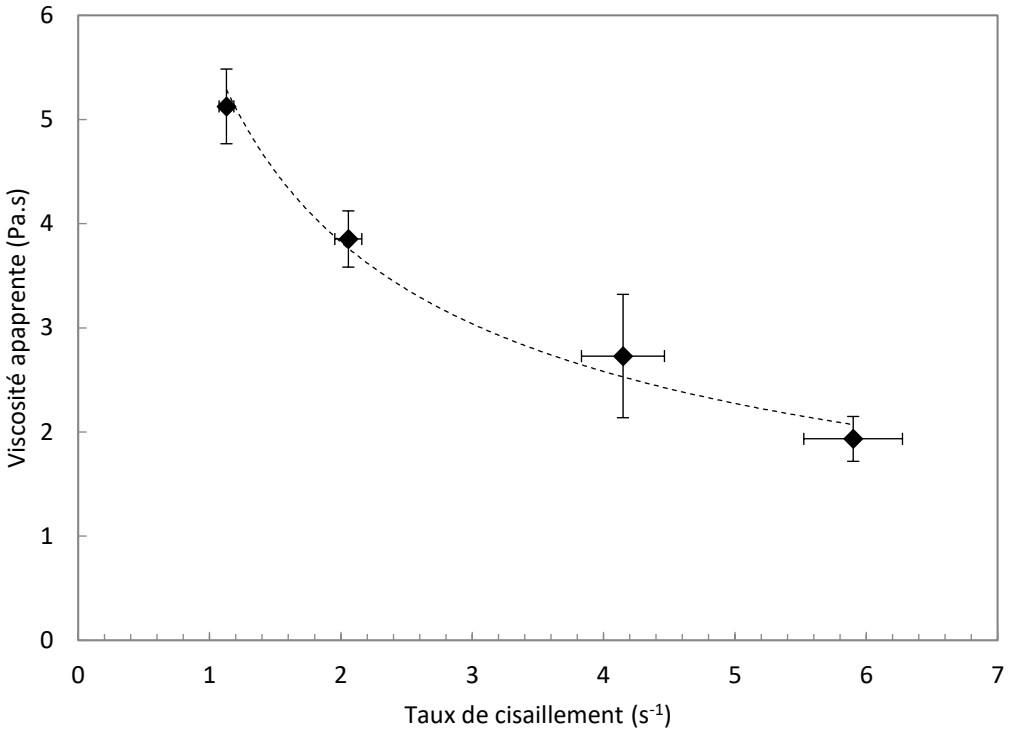


Figure 53. Evolution de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement. Les barres d'erreur représentent l'incertitude et l'écart-type.

La Figure 54 présente la saturation en liquide en fonction de la perméabilité de la colonne principale. Les mesures à κ_{int} = 3,6×10^{-9} et 1,2×10^{-8} m² n'ont pas été répétées, d'où une absence de barre d'erreur. Les valeurs calculées montrent que la saturation en liquide est faible pour toutes les perméabilités ce qui montre à nouveau l'efficacité du balayage de la mousse, dû aux forts contrastes de viscosité entre la mousse et la solution de tensioactif initialement dans la colonne qui possède la même viscosité que l'eau. De plus, la saturation semble décroître avec la perméabilité. Cependant, le faible nombre de point et les barres d'erreur importantes rendent difficile la confirmation d'une réelle tendance. Toutefois, cela pourrait être expliqué par l'augmentation de la viscosité apparente de la mousse avec la perméabilité, entraînant un balayage du milieu poreux encore plus efficace.

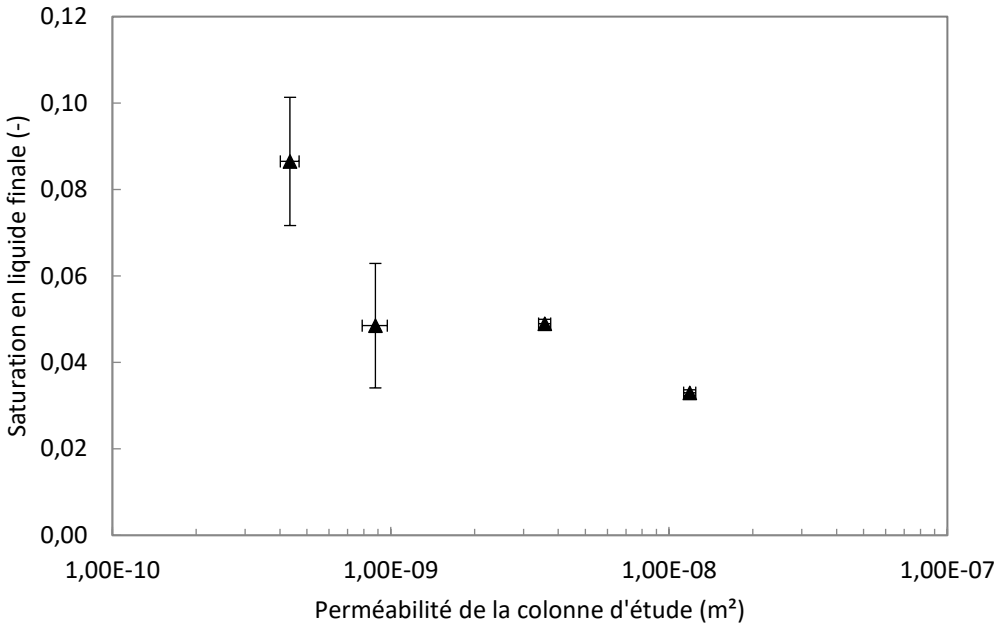


Figure 54. Influence de la perméabilité sur la saturation en liquide. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude de mesure et l'écart-type.

5. Influence de la formulation de tensioactif

Des injections avec prégénération ont également été réalisées avec de la mousse à base de MELANGE et d'AOS mélangé à un polymère, la gomme de Guar. Ces résultats permettent d'évaluer l'influence de la formulation sur l'écoulement de mousse en milieu poreux de forte perméabilité. Les Figure 55 et Figure 56 représentent l'évolution du RF et de S_l en fonction de la perméabilité pour des mousses de MELANGE et d'AOS prégénérées. Le prégénérateur était toujours du sable fin BR37. Les graphes sont tracés en échelle logarithmique en abscisse pour améliorer la lisibilité des résultats.

5.1. MELANGE

Dans un premier temps sont discutés les résultats pour la mousse formée par le MELANGE, formulation présentée dans le Chapitre 3. Les valeurs de RF mesurées avec cette formulation sont supérieures à celle mesurées avec de l'AOS. Cela conforte l'hypothèse selon laquelle, plus une mousse est stable hors milieu poreux, plus les RF mesurés seront élevés. L'étude n'a pas permis d'obtenir suffisamment de points de mesure pour conclure sur la tendance de RF en fonction de la perméabilité.

Les valeurs de saturation finale en liquide dans la colonne restent similaire pour les deux formulations. L'utilisation du MELANGE n'a donc pas permis d'obtenir un balayage plus efficace du milieu poreux.

5.2. AOS avec gomme de Guar

Pour tester l'influence de l'ajout de polymère, l'injection d'une mousse d'AOS concentrée à 4 x CMC, à laquelle a été ajouté 1 g/L de gomme de Guar, un polymère viscosifiant utilisé comme additif alimentaire, a été testée.

L'ajout de polymère n'a pas eu d'effet sur le RF mesuré ou sur la saturation finale en liquide. Ainsi, même si les résultats du Chapitre 3 indiquaient que la stabilité hors milieu poreux été améliorée par l'ajout de polymère, l'influence de cet ajout n'est pas significative en écoulement en milieu poreux de forte perméabilité.

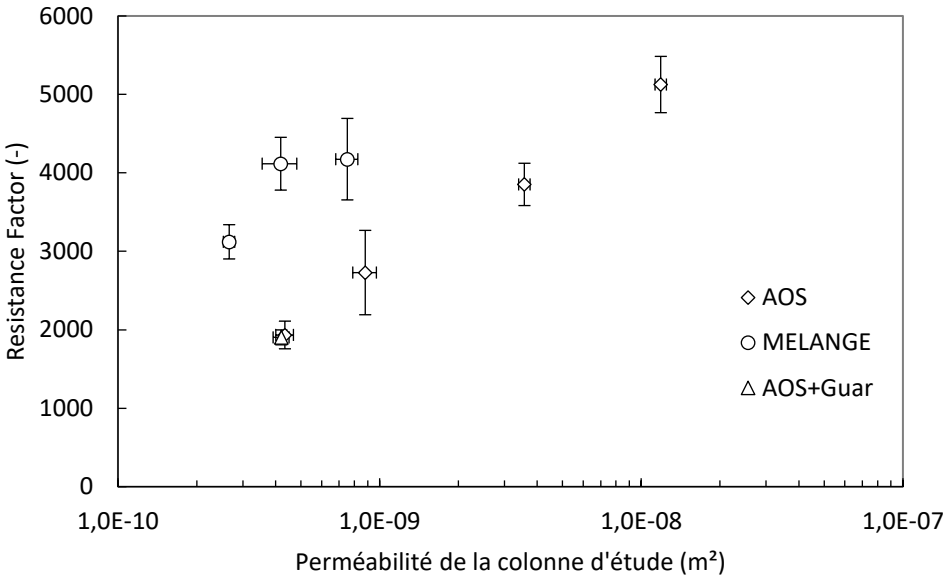


Figure 55. Evolution du RF en fonction de la perméabilité pour plusieurs formulations. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude de mesure et l'écart-type.

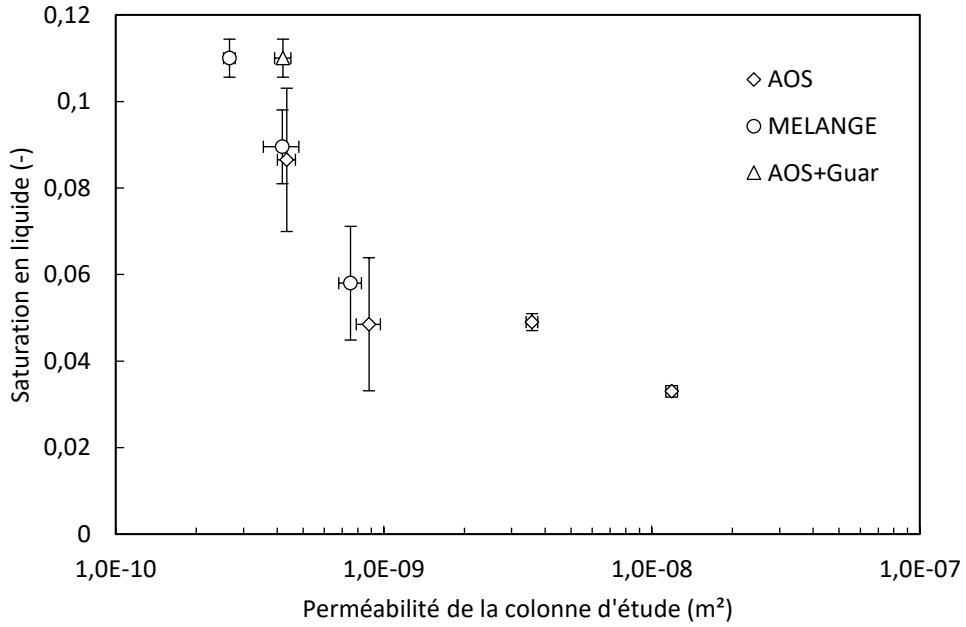


Figure 56. Evolution de S_l en fonction de la perméabilité pour plusieurs formulations. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude de mesure et l'écart-type.

Ainsi la mousse générée à partir du MELANGE présente une viscosité apparente élevée et donc intéressante pour une application de mousse de blocage. Cependant, à cause de la faible disponibilité de ce produit et des difficultés que peuvent générer sa composition mélangeant plusieurs tensioactifs de natures différentes. Le choix a été fait de continuer de travailler avec l'AOS pour les études suivantes en bac (voir Chapitre 5).

6. Resistance de la mousse à un écoulement d'eau

A la suite des injections de mousse en milieu poreux, de l'eau fut injectée pour mesurer la résistance de la mousse à un écoulement d'eau. Ces essais n'ont pas été systématiques pour toutes les expériences.

Pour la phase de « résistance » (injection d'eau après avoir stabilisé la mousse dans le milieu poreux), le paramètre RF_{res} définit comme suit est calculé :

$$RF_{res} = \frac{\Delta p_{w,sat}}{\Delta p_w}|_{Q=const} \quad (45)$$

Avec $\Delta p_{w,sat}$ la pression différentielle (Pa) obtenue lors de l'injection de l'eau dans la colonne de mousse saturée.

La Figure 57 présente les valeurs de RF_{res} mesurées en fonction de la formulation et de la perméabilité de la colonne d'étude. Mise à part la valeur nommée « AOS – Co-injection », les mousses ont été injectées par prégénération dans du sable fin BR37. Les valeurs mesurées présentent de larges barres d'erreur dues à une mauvaise répétabilité de ce type de mesure. Les points sans barre d'erreur verticale n'ont pas été répétés.

Il semble que la mousse du MELANGE, malgré une forte viscosité durant l'écoulement, est moins stable face à un écoulement d'eau que l'AOS. L'ajout de gomme de Guar semble permettre d'augmenter la valeur de RF_{res} par rapport à une mousse d'AOS simple. Ce résultat pourrait indiquer que l'ajout de polymère n'aide pas forcément à obtenir une mousse plus visqueuse lors de l'écoulement mais que celle-ci serait plus stable une fois établi dans le milieu poreux. Bien que ces résultats soient obtenus en milieux poreux confinés, ils restent cependant une bonne indication que l'ajout de polymère pourrait être une bonne piste d'optimisation si les propriétés des mousses sans polymère donnent des résultats insuffisants.

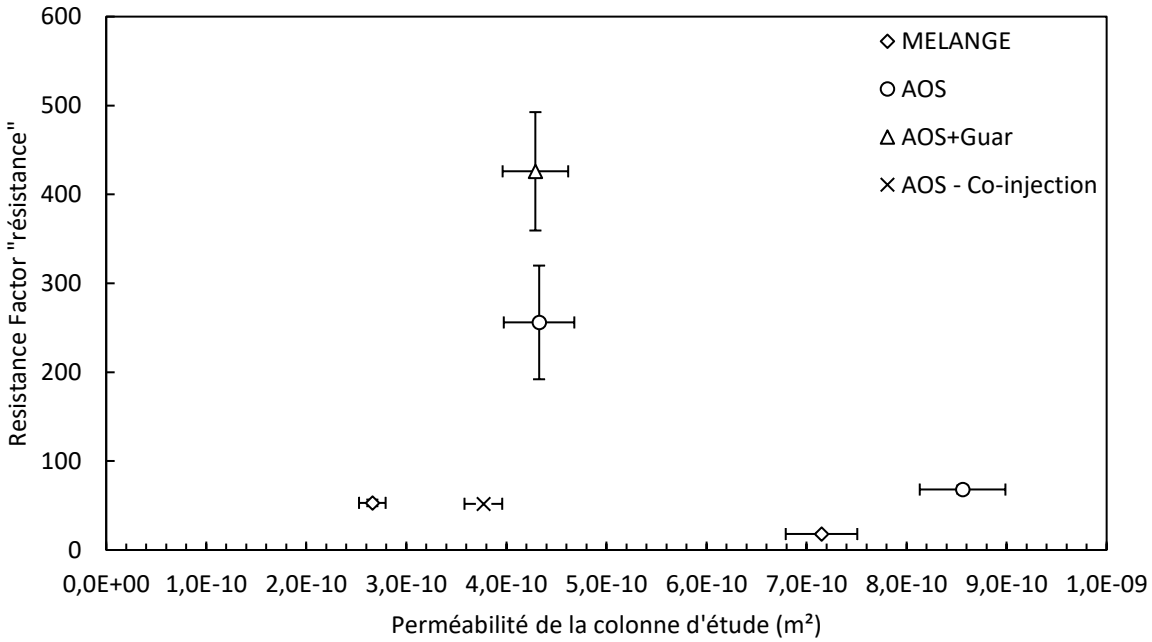


Figure 57. Evolution du RF_{res} en fonction de la perméabilité. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude de mesure et l'écart-type.

7. Conclusions intermédiaires

Le résultat le plus important de ce chapitre confirme qu'il est nécessaire d'utiliser la technique de prégénération pour pouvoir créer une mousse forte dans un milieu de très haute perméabilité. La prégénération dans un milieu poreux fin de faible perméabilité permet de former une mousse à la texture fine, formée de bulles de petit diamètre. La multiplication des bulles permet d'augmenter les interactions visqueuses dans le milieu de haute perméabiltié et ainsi d'augmenter la viscosité apparente de la mousse dans ce milieu. Il a été montré que la perméabilité du prégénérateur n'impacte pas l'efficacité de la prégénération, dans la gamme de valeur étudiée. Ainsi le prégénérateur joue plutôt un rôle d'initiateur des mécanismes de génération de mousse, en particulier le « pinch-off », qui permettent ensuite d'obtenir une mousse fine.

De plus, il est important de noter que ces résultats ne sont pas en rupture avec les précédents travaux étudiant la viscosité apparente des mousses en milieu poreux. En effet, sous réserve d'un technique de génération adéquate décrite ci-dessus, il est possible de générer des mousses extrêmement visqueuses dans des milieux de haute perméabilité. La viscosité étant même plus élevée pour les milieux de très haute perméabilité (jusqu'à 5 Pa.s mesurés dans un milieu de $1{,}2\times10^{-8}$ m²). De la même façon, les saturations en eau finales sont faibles et témoignent du balayage efficace de la mousse et de la dominance des effets visqueux.

Les observations ont permis d'identifier un phénomène d'écoulement à deux régimes de mousse. Tout d'abord par l'écoulement d'une mousse faible suivi par l'écoulement d'une mousse forte. Ainsi, les mécanismes de génération de la mousse forte, difficilement descriptibles à l'échelle macroscopique, ont été qualifiés de lents et instables. Ce phénomène complexe et difficile à maîtriser se manifeste par le manque de répétabilité des expériences d'un point de vue dynamique.

En calculant le taux de cisaillement à partir de la perméabilité du milieu poreux, le comportement rhéofluidifiant de la mousse d'AOS a pu être mis en évidence et comparé aux résultats de la littérature. Nos résultats montrent que ce comportement perdure dans des milieux de très haute perméabilité.

Enfin, il a été montré que la formulation de la solution moussante avait un impact notable sur les valeurs du « resistance factor » mais pas d'impact sur les valeurs de la saturation en liquide. Ainsi, une mousse génerée par le MELANGE a une viscosité apparente plus élevée mais ne permet pas d'avoir un meilleur balayage du milieu. L'ajout de polymère (Gomme de Guar) n'a pas montré de changement dans les concentrations considérées. La composition du MELANGE

étant complexe et sa disponibilité commerciale incertaine, l'AOS a été choisi comme candidat préférentiel pour la poursuite de ces études en bac 2D. Les caractéristiques mesurées pour la mousse d'AOS semblent largement suffisantes pour une application de mousse de blocage. De plus, ce tensioactif a été largement étudié par d'autres auteurs ce qui permettra d'étayer les hypothèses et résultats.

Chapitre 5

Etude expérimentale en bacs

L'objectif de ce chapitre est d'étudier l'injection de mousse en présence d'un écoulement croisé d'eau afin d'évaluer son potentiel en tant que fluide bloquant pour le confinement d'une zone polluée. Pour cela, une série d'expériences a été menée dans des milieux poreux 2D. La propagation et la stabilité de la mousse ont été étudiées dans un cas référence avec un écoulement latéral d'eau à une vitesse de 10 m/jour, conformément à la vitesse de la nappe souterraine mesurée sur le site d'étude. Des expériences complémentaires ont été menées pour étudier l'influence de la nature de l'écoulement latéral et de sa vitesse sur la propagation et la stabilité de la mousse.

A notre connaissance, la littérature est peu fournie concernant l'étude des écoulements de mousses dans des dispositifs 2D macroscopiques. A l'échelle microscopique, la mousse a été étudiée dans des cellules de Hele-Shaw avec grains bidimensionnels pour examiner la génération et la destruction des bulles de gaz grâce à une visualisation directe de celles-ci et ainsi établir un modèle de prédiction de la distribution de la taille des bulles dans la mousse (Géraud *et al.*, 2017). A une échelle macroscopique, l'écoulement de mousse a été étudié dans des milieux homogènes et hétérogènes. Le suivi de la propagation de la mousse a été effectué par traçage avec des particules de fer (Tsai, Chou and Cheng, 2009) ou des colorants (Bertin, Del Campo Estrada and Atteia, 2017; Maire *et al.*, 2019). Certains auteurs ont utilisé des capteurs mesurant la résistivité électrique du milieu poreux pour suivre la propagation (Boeije *et al.*, 2018). Le dispositif présenté ici allie le traçage par colorants, le calcul du bilan de masse, l'utilisation de capteurs de permittivité relative et l'analyse photographique pour évaluer l'écoulement de mousse et les valeurs de la saturation dans le milieu poreux.

1. Matériel et méthodes

1.1. Matériel et fluides

1.1.1. Solutions de tensioactif

Dans ce chapitre, seule une solution d'AOS concentrée à 4xCMC sera utilisée pour les expériences, conformément aux conclusions du Chapitre 4. Les solutions de tensioactif sont toujours préparées le jour-même ou la veille du début des expériences pour s'affranchir des effets de vieillissement. De plus, de nouvelles mesures de tension de surface ont été effectuées sur la solution mère afin de s'assurer que la valeur de la CMC n'avait pas changé avec le temps. Les résultats montrent que la CMC n'a pas été modifiée plus d'un an après l'ouverture du produit.

1.1.2. Gaz

Le gaz utilisé pour générer la mousse est du diazote fourni par Air Liquide© (pureté > 99,99 %). Du dioxyde de carbone, également fourni par Air Liquide© (pureté > 99,7 %), a également été utilisé pour la préparation du pré-générateur de mousse.

1.1.3. Pré-générateur

Le pré-générateur est constitué d'un milieu poreux contenu dans une colonne de PVC de 10 cm de longueur effective comme présenté dans le Chapitre 4. Des billes de verre calibrées de diamètre 0,1 mm ont été utilisées pour remplir le prégénérateur. Ce milieu poreux ainsi constitué présente une porosité de 0,38 et une perméabilité de $1{,}1\times10^{-11}$ m².

1.1.4. Milieux poreux

Des billes de verres de 1 mm de diamètre ont été utilisées pour l'étude dans les bacs. Ces billes de verre, fournies par Dutscher®, sont les mêmes que celles utilisées au Chapitre 4. Les milieux poreux ainsi réalisés ont une perméabilité moyenne de $8{,}4\times10^{-10}$ m² et une porosité moyenne de 0,37 de manière reproductible. De plus, les propriétés translucides du verre permettent une meilleure visualisation des écoulements et des niveaux de saturation par analyse photographique.

1.1.5. Bacs et circuits fluides

Trois bacs de dimensions différentes, nommés Small (S), Medium (M) et Large (L), ont été utilisés lors de ces expériences. Les caractéristiques géométriques des milieux poreux contenus dans ces bacs sont présentées en Tableau 10.

Les bacs sont composés d'un volume central destiné à accueillir le milieu poreux. De part et d'autre de ce volume se trouvent deux « cavités » séparées du volume central par deux grilles en métal de 250 µm permettant aux fluides de s'écouler mais suffisamment fines pour contenir le milieu poreux. Ces cavités sont utilisées pour assurer un écoulement homogène dans le milieu poreux, la perte de charge y étant très faible. Il y a donc une pression quasiment homogène dans les cavités, à la pression hydrostatique près. La largeur des cavités est précisée dans le Tableau 10.

L'hypothèse a été faite que les écoulements dans les bacs étaient assimilables à des écoulements en deux dimensions. Pour supporter cette hypothèse, les rapports entre la hauteur effective du milieu poreux saturé et sa largeur sont également présentés dans le Tableau 10.

Les bacs possèdent un point d'injection centré sur leur partie inférieure par lequel la mousse sera injectée. Les bac L et M possèdent également des points de connexion latéraux pour y connecter des tuyaux et générer des écoulements latéraux d'eau.

Tableau 10. Caractéristiques des milieu poreux contenus dans les différents bacs.

Nom du bac	Largeur du milieu poreux l [cm]	Hauteur du milieu poreux H [cm]	Hauteur du milieu poreux saturé h [cm]	Epaisseur du milieu poreux e [cm]	e/h	Largeur des cavités [cm]
Small (S)	43,5	25	20	2,2	0,11	2,0
Medium (M)	51,0	35	30	4,0	0,13	1,8
Large (L)	100	65	60	8,5	0,14	3,2

Le dispositif expérimental est présenté en Figure 58. Il est constitué d'un circuit primaire (injection de mousse), d'un circuit secondaire (écoulement latéral d'eau) et d'un circuit tertiaire (pompage de l'excédent d'eau).

Dans le circuit primaire, le diazote et la solution de tensioactif sont co-injectés dans la pré-générateur, le gaz à l'aide d'un débitmètre massique Brooks® Delta Smart II (précision : ±0,34 mL.min^{-1}), le liquide par une pompe péristaltique Ismatec® Reglo ICC (précision : ±0,063 mL.min^{-1}). La co-injection est rendue possible par une connectique en Té Swagelok®. Deux capteurs de pressions absolues Keller® PA-33X (précision : ±1,5 Pa), sont placés en amont et en aval du pré-générateur. Les fluides sortent du pré-générateur sous forme de mousse. Cette mousse s'écoule vers une vanne 4 voies qui la dirige, soit vers un bécher en attendant sa stabilisation, soit vers le bac pour commencer l'injection. Les tuyaux du circuit sont en PVC et d'un diamètre intérieur de 1/4 de pouce.

Le circuit secondaire est composé de quatre tuyaux et d'une pompe péristaltiques Ismatec® Reglo ICC à quatre voies indépendantes. Ce circuit permet d'injecter de l'eau déionisée dans la cavité « entrée » du bac. Cette injection est effectuée par deux tuyaux dont les extrémités sont situées en haut et en bas de la cavité (bac S) ou à deux points de connexion latéraux (bacs M et L) pour créer un écoulement le plus homogène possible. De la même façon, deux tuyaux pompent l'eau dans la cavité « sortie », symétriquement aux tuyaux d'injection d'eau. Le débit de pompage dans les quatre tuyaux est le même pour maintenir un écoulement latéral constant.

Le circuit tertiaire est composé de deux tuyaux et d'une pompe péristaltique Ismatec® Reglo ICC. Les deux extrémités des tuyaux sont placées à l'interface eau/air dans les deux cavités, directement dans la cavité (bac S) ou fixées à un point de connexion (bacs M et L). Ce circuit sert à pomper le surplus d'eau dans les cavités. En effet, lorsque la mousse est injectée dans le bac, celle-ci occupe un certain volume. Ce volume d'eau déplacée est pompée par le circuit tertiaire vers un bécher placé sur une balance Sartorius® MSE8201S (précision : ±0,1 g). La masse mesurée permet de déduire le volume occupé par la mousse durant l'injection.

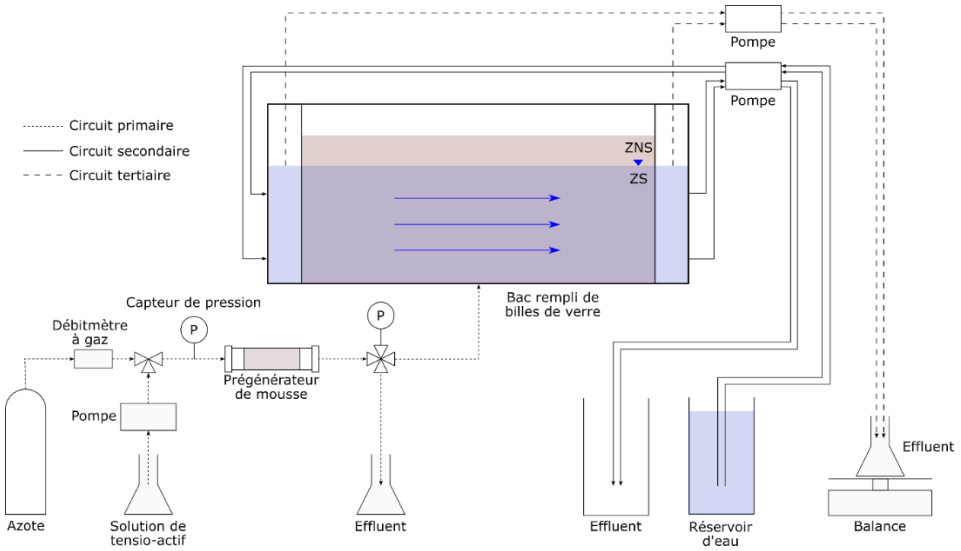


Figure 58. Dispositif expérimental. ZS correspond à la zone saturée. ZNS correspond à la zone non saturée.

1.1.6. Sondes TDR et capteurs de pressions

Dans le cas du bac L, un ensemble de 25 sondes TDR et 25 capteurs de pression absolue sont fixés sur la face arrière du bac afin de mesurer les champs de saturation et de pression dans le bac.

Les sondes TDR sont des dispositifs permettant de mesurer la saturation en liquide d'un milieu poreux par réflectométrie temporelle, soit en anglais « Time Domain Reflectometry » (TDR). Cette mesure est effectuée indirectement par la mesure de la permittivité diélectrique relative. Celle-ci est effectuée par analyse de la vitesse de propagation d'une onde électromagnétique entre deux guides d'ondes. Les sondes TDR utilisées pour ce dispositif sont des ECH_2O 5TE® fabriquées par METER® Group. Ces sondes utilisent une onde de fréquence 70 MHz et la valeur de la permittivité relative mesurée correspond à une moyenne sur une maille de 5 cm de côté, centrée sur la sonde. L'interprétation des données mesurées par ces sondes est détaillée en partie 1.4.

Les capteurs de pression absolue sont de type Keller® PR-21 Y d'une précision de ±7,5 mbar.

Les emplacements des sondes sur le bac L sont présentés en Figure 59. Le premier chiffre du nom des capteurs correspond à sa ligne en comptant depuis le haut du bac. Le deuxième chiffre du nom du capteur correspond à sa colonne en partant de la gauche du bac.

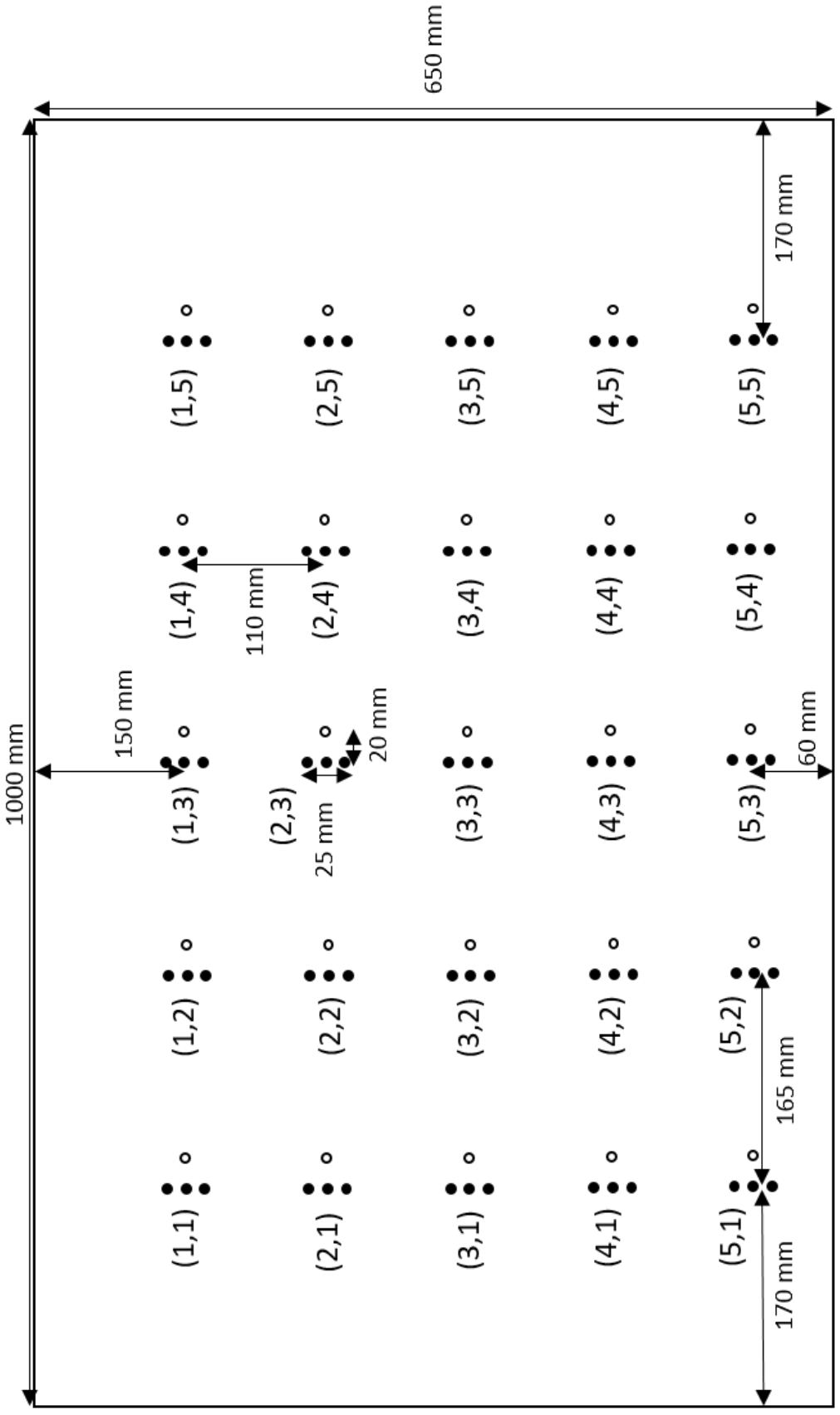


Figure 59. Emplacements des capteurs de pression et sondes TDR sur le bac L. Les sondes TDR sont représentées par trois point noirs. Les capteurs de pression sont représentés par un point blanc.

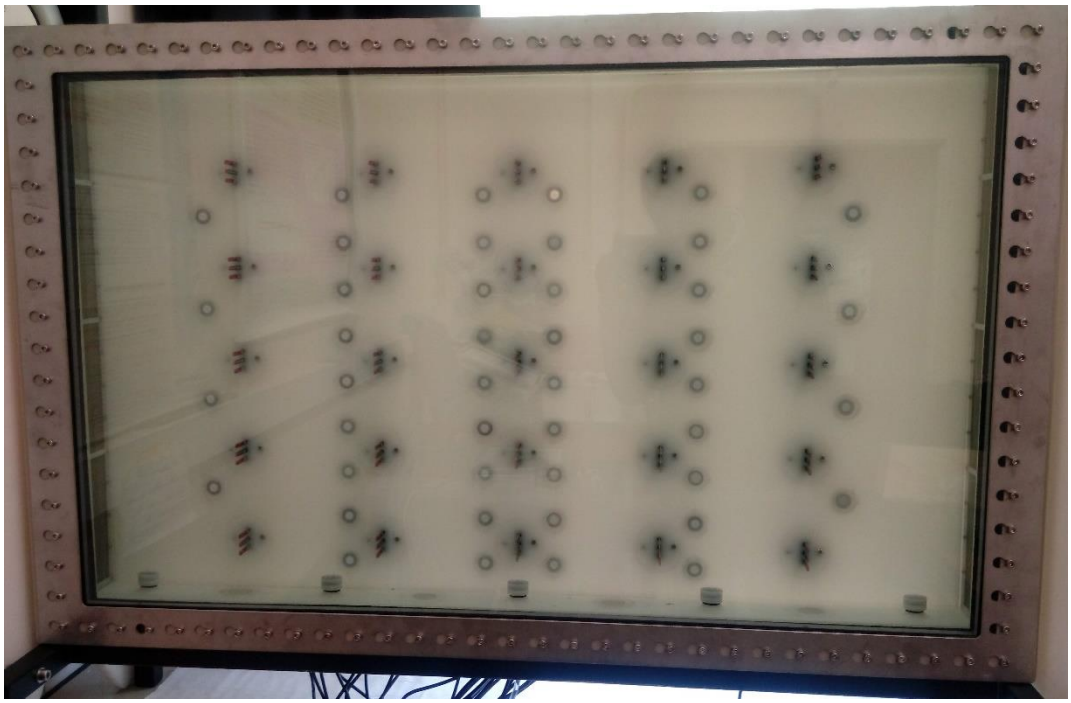


Figure 60. Face avant du bac L.

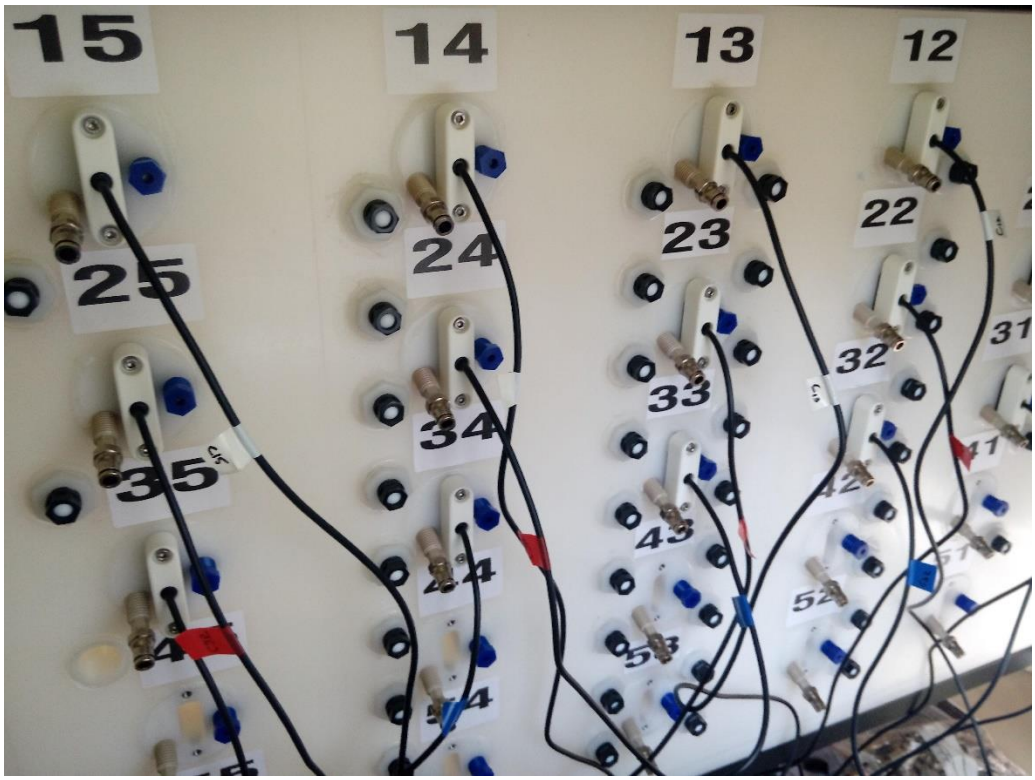


Figure 61. Face arrière du bac L. Les capteurs de pression ne sont pas connectés.

1.1.7. Prise de photographie

La prise de photographies est effectuée avec un appareil Nikon® D850 monté sur un trépied. Un objectif de 50 mm de focale a été utilisé pour le bac L et un objectif de 105 mm de focale a été utilisé pour les bacs S et M. L'axe optique de l'appareil est placé perpendiculairement au plan du bac, le plus proche possible mais à une distance suffisante pour capturer l'entièreté du bac. Un projecteur Broncolor® Litos est placé au-dessus du bac, légèrement devant l'appareil et désaxé (voir Figure 63). Le placement au-dessus du bac permet d'éviter le reflet du projecteur sur la vitre. Le placement devant l'appareil permet de ne pas éclairer celui-ci ce qui créerait également un reflet. Le léger désaxage permet de ne pas avoir l'image obstruée par le pied du projecteur. Pour éviter des changements de luminosité, la pièce où se situe l'expérience est placée dans la pénombre et les fenêtres sont occultées par des rideaux opaques. Un élément Scuadra XpoGrey® représentant des niveaux de gris étalons est fixé sur le bac afin de permettre de calibrer les photographies (voir partie 1.3). Lors des premiers tests de photographie, ces étalons permettent en premier lieu de vérifier que le blanc n'est pas surexposé (valeur de luminosité = 255) ou le noir sous-exposé (valeur de luminosité = 0). Les photographies ont été prises en chambre noire pour s'affranchir des variations de luminosité extérieure.

Les caractéristiques de la prise de photographies sont les suivantes :

Tableau 11. Caractéristiques techniques de la prise de photographies

Caractéristiques	Valeur
Temps de pose	1/200 sec
Ouverture	f/16
Sensibilité ISO	ISO 100

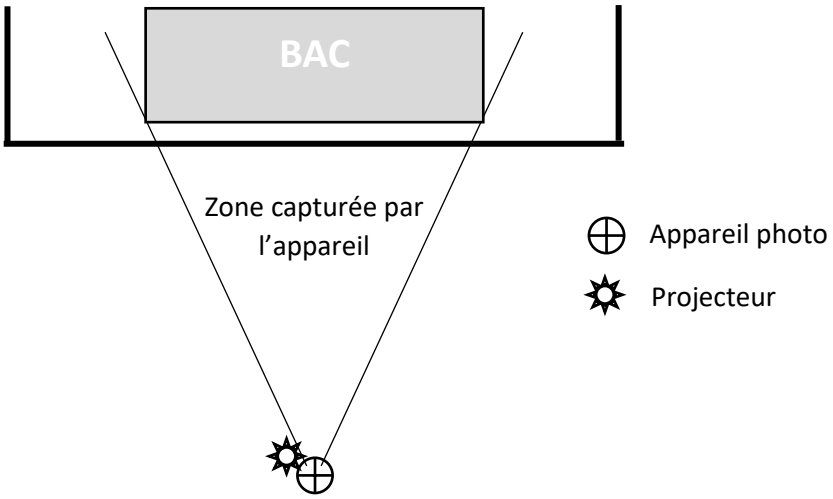


Figure 62. Placement schématique de l'appareil photo et du projecteur.

Figure 63. Photographie de la disposition de l'éclairage et de l'appareil photo par rapport au bac.

1.2. Protocoles expérimentaux

1.2.1. Préparation des milieux poreux

Les bacs sont lentement remplis jusqu'à la hauteur *H* avec les billes de verre pour obtenir un empilement homogène. De l'eau déionisée est ensuite injectée par le point d'injection en bas du bac à un débit de 2,0 mL/min. Les bacs n'étant pas fermés, il est impossible de les saturer initialement en dioxyde de carbone. Néanmoins, l'homogénéité de l'empilement des billes de verre et la faible vitesse d'injection permettent d'obtenir un écoulement stable. En raison de l'absence d'effets capillaires il n'a pas été observé de bulles d'air piégées dans le milieu. Le bac est saturé en eau jusqu'à la hauteur effective *h* indiquée dans le Tableau 10. La zone non saturée permet d'éviter un écoulement d'eau latéral superficiel. L'ensemble des expériences dont les résultats sont présentés dans la suite de ce chapitre sont référencées en Annexe D avec la taille du bac associé et le type d'écoulement latéral.

1.2.2. Préparation du pré-générateur

Le pré-générateur a été préparé en suivant le protocole présenté au Chapitre 4. La colonne est d'abord remplie du milieu poreux (billes de verre de 0,1 mm). Ensuite du CO_2 est injecté dans la colonne, puis de l'eau déionisée, et enfin la solution de tensioactif d'AOS à une concentration de 4xCMC. Une colonne de pré-générateur étant utilisée pour plusieurs expériences, celle–ci est initialement remplie de mousse détruite (gaz et solution tensioactif) à l'initialisation de l'expérience.

1.2.3. Déroulement des expériences

Avant de commencer à injecter de la mousse dans le bac, plusieurs étapes préliminaires sont nécessaires.

Tout d'abord, la co-injection de gaz et de solution de tensioactif dans le pré-générateur est initiée en dirigeant la mousse vers le bécher d'effluents à l'aide de la vanne 4 voies. Afin de se baser sur les interprétations effectuées au Chapitre 4, les mêmes conditions expérimentales sont reprises ici. Ainsi, la qualité de la mousse est de 85 % et le débit total de 4 mL/min pour les bacs S et M. Pour le bac L, le débit total est porté à 8 mL/min afin d'obtenir des résultats dans un temps raisonnable. Cette étape permet de reconstituer la mousse à l'intérieur du pré-générateur et de former une mousse forte répétable pour chaque expérience. La mousse est totalement formée lorsque le signal de pression avant le pré-générateur est stable.

Parallèlement, le circuit secondaire est activé pour générer un écoulement latéral d'une vitesse apparente de 10 m/jour. Le circuit tertiaire est également activé pour pomper tout surplus éventuel avant le début de l'expérience. Pour confirmer l'homogénéité de l'écoulement latéral, un traçage est effectué avec une solution de vert de bromocrésol à 1 $g.L^{-1}$. Le colorant est injecté dans la cavité « entrée » et son écoulement est photographié. Enfin, lorsque tous les écoulements sont stables et que la mousse est prête à être injectée, une photo « zéro » est prise.

L'injection se fait simplement par rotation de la vanne 4 voies pour diriger la mousse vers le bac. Durant l'injection, des prélèvements sont effectués dans la cavité « sortie » afin d'être analysés par mesure de leur carbone organique total (COT) afin de calculer la concentration en tensioactif en sortie.

A la fin de la période d'injection, la vanne 4 voies est tournée afin de diriger la mousse vers le bécher d'effluents. Le circuit primaire (injection) est arrêté mais les circuits secondaires et tertiaires sont laissés actifs pour étudier la stabilité de la mousse dans le temps. Un nouveau traçage est effectué en fin d'expérience pour visualiser l'impact de la mousse sur l'écoulement latéral.

La durée d'injection n'est pas la même pour toutes les expériences qui seront présentées dans ce chapitre. Certaines injections ont dû être prématurément stoppées à cause d'aléas expérimentaux.

1.2.4. Variation du type d'écoulement latéral

Certaines expériences ont été réalisées en variant le type d'écoulement latéral. Le type d'écoulement latéral précédemment décrit ici sera nommé de type « Ouvert ». Le dispositif a été modifié pour que les tuyaux de l'écoulement secondaire fonctionnent en circuit fermé, c'est-à-dire que le fluide pompé dans la cavité « sortie » est directement réinjecté dans la cavité « entrée » (à la place de l'eau déionisée). Un écoulement de ce type permet de réalimenter l'eau du bac avec du tensioactif qui aura été préalablement dilué et emporté par l'écoulement latéral. Ce type d'écoulement sera nommé de type « Fermé ». Enfin, certaines expériences ont simplement été réalisées sans activer le circuit secondaire. Dans ce cas, il n'y a aucun écoulement latéral dans le bac. Ce type d'écoulement sera nommé « Sans » dans la suite du document.

1.3. Analyse d'image

Afin d'exploiter les données acquises par photographie, les images doivent être traitées et interprétées. L'objectif final de cette approche est de définir une relation entre intensité

lumineuse et saturation en liquide. Les étapes de traitement sont discutées une à une ci-après. Deux schémas récapitulatifs de la démarche sont présentés en Annexe E.

1.3.1. Passage en niveaux de gris

Avant toute étape de traitement, il est important de choisir sur quelle longueur d'onde l'analyse sera faite. Les auteurs (Flores *et al.*, 2011) recommandent de travailler en monochrome, cependant les limites techniques à disposition dans le laboratoire ont imposé d'utiliser de la lumière blanche lors des expériences. La mousse étant de couleur blanche, son intensité est environ égale dans tous les spectres monochromes. En conséquence, le choix a été fait de travailler sur les nuances de gris. Dans la suite de ces travaux, le niveau de gris a été calculé selon l'équation suivante :

$$I_{gris} = \frac{I_{rouge} + I_{vert} + I_{bleu}}{3} \quad (46)$$

Avec I l'intensité lumineuse (-), comprise entre 0 et 255.

Il existe dans la littérature de nombreuses autres méthodes de conversion d'images couleurs RGB vers l'échelle de gris (Čadík, 2008). La technique la plus appropriée doit être choisie en fonction de l'objectif recherché (esthétique, contraste, mise en avant d'une couleur en particulier, etc...).

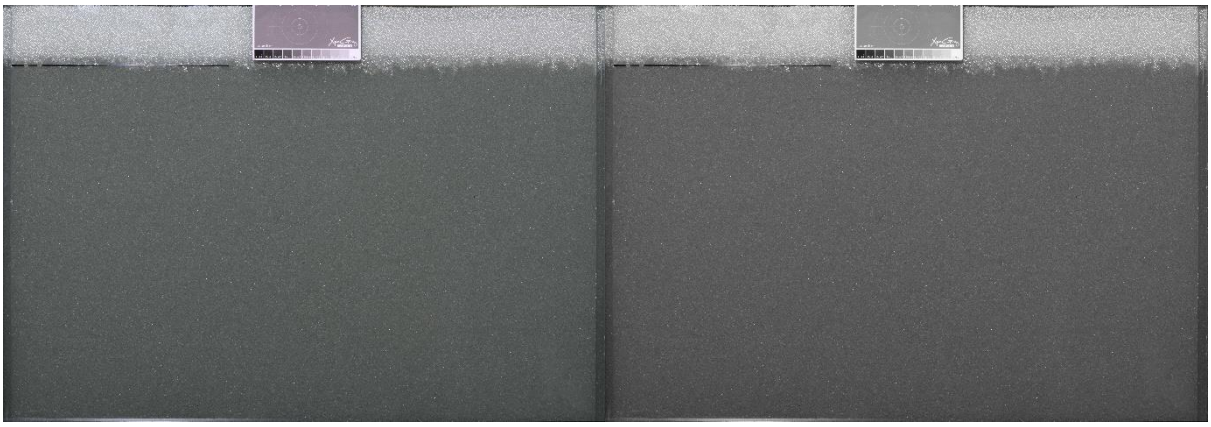


Figure 64. Image originale (gauche). Image en niveaux de gris (droite). *Bac M #18.*

1.3.2. Maillage

De nombreux pixels peuvent présenter des sous-brillances ou sur-brillance (reflets) sur une photographie. Cet effet est d'autant plus fort que la caméra est bien résolue. Afin de ne pas interpréter faussement la luminosité de ces pixels, il est essentiel de créer des mailles où l'intensité des pixels sera moyennée.

La première étape consiste à déterminer la taille de la maille. Par soucis de simplicité, ces mailles seront carrées (mais la méthode n'est pas incompatible avec d'autre formes de maille). La taille optimale doit être choisie la plus petite possible pour avoir les informations les plus précises possibles mais suffisamment grande pour éviter les variations de l'ordre du pixel.

En Figure 65 et Figure 66 sont tracées les évolutions de la moyenne de l'intensité lumineuse en fonction de la taille de la maille. Les images correspondent à un bac saturé à 100% en liquide. Les quatre courbes correspondent à quatre couples de coordonnées en pixels qui définissent le sommet en haut à gauche de chaque maille.

Les variations microscopiques d'intensité se stabilisent globalement pour chaque courbe à une aire de 8836 px², soit une maille de 94 pixels de côté. La différence entre les valeurs stabilisées s'explique par un défaut de l'uniformité de l'éclaire du bac, ce défaut est adressé ci-après.

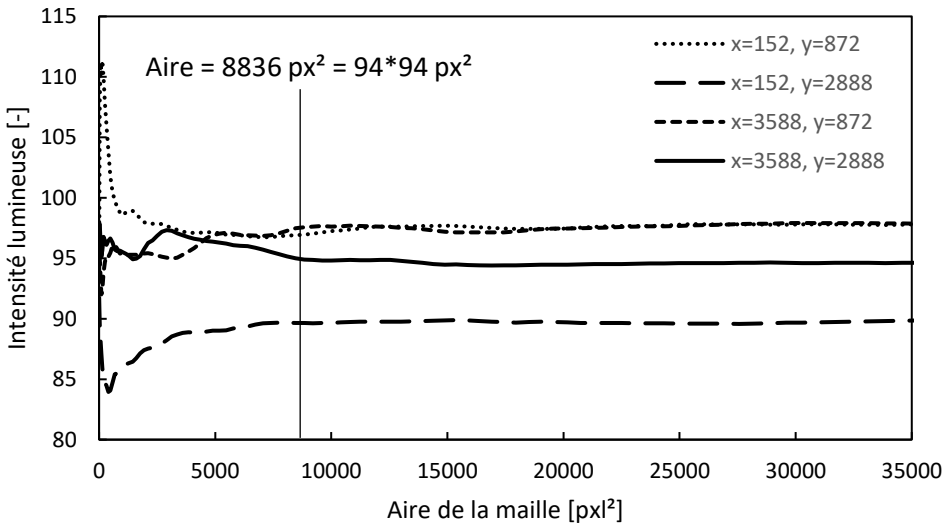


Figure 65. Evolution de l'intensité lumineuse moyenne en fonction de la taille de la maille. *Bac M #18.*

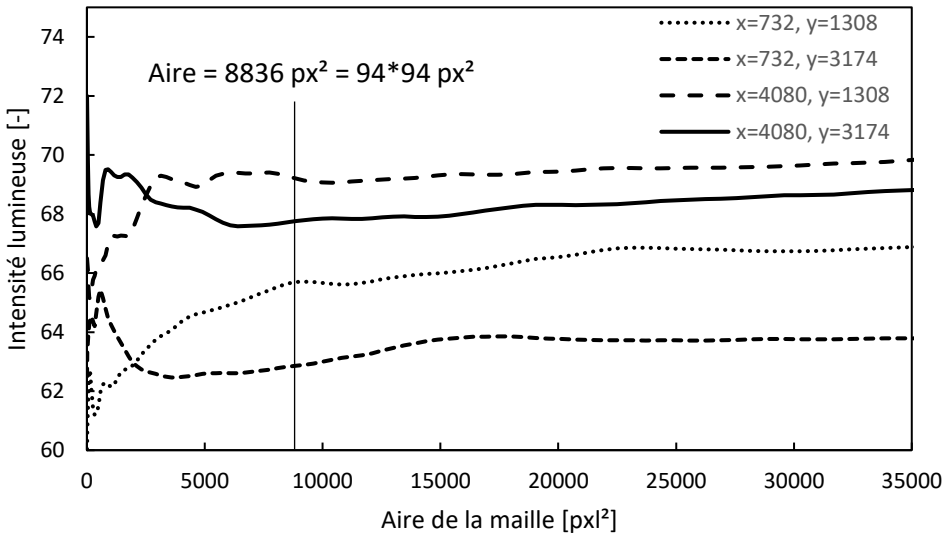


Figure 66. Evolution de l'intensité lumineuse moyenne en fonction de la taille de la maille. *Bac M #16.*

Ces travaux seront donc menés avec une maille de 94 pixels de côté pour les bacs S et M. Pour le bac L, une maille de 48 pixels de côté sera utilisée (utilisation d'un objectif différent). Aux bords de l'image, des mailles de tailles inférieures sont utilisées pour remplir l'espace restant.

1.3.3. Uniformisation

Sur les photographies, l'éclairage n'est pas parfaitement uniforme dans les directions horizontales et verticales. Pour corriger ce défaut d'uniformité, la moyenne d'intensité I_m est calculée sur une image à $S_l = 1$ ($t = 0$). Cette image sera appelée dans la suite du texte « image zéro ». Chaque analyse d'une série de photographies sera basée sur sa propre image zéro (une série = une expérience). La matrice ΔI_0 est définie pour chaque maille telle que $\Delta I_0 = I_m - I_{raw}$ avec I_{raw} l'intensité moyenne de chaque maille. En Figure 67 est présentée à gauche une image zéro dont les mailles de 94*94 pxl² ont simplement été moyennées. L'éclairage est légèrement plus sombre en bas et sur les côtés du bac. Dans la figure de droite, l'intensité de toutes les mailles a été remplacée par l'intensité moyenne de l'AOI (Area Of Interest), c'est-à-dire le grand rectangle où les saturations seront calculées. Cela donne donc un gris uni correspondant à $S_l = 1$. Néanmoins, la différence ΔI_0 entre la valeur moyenne globale I_m et la valeur originale de chaque maille I_{raw} est conservée pour la suite de l'analyse.

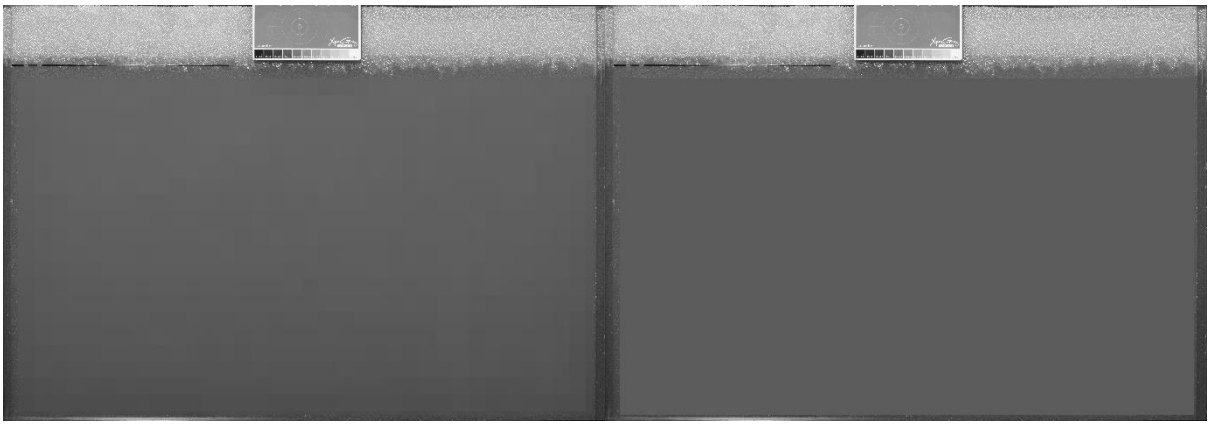


Figure 67. Image zéro avec mailles moyennée sans uniformisation (gauche). Image zéro avec maille moyennée avec uniformisation (droite). *Bac M #18.*

1.3.4. Variation entre les photographies

Il a été observé que la luminosité globale d'une photographie pouvait légèrement varier d'une photographie à une autre lors d'une même série. En comparant les intensités des niveaux de gris étalons entre plusieurs photographies, il a été montré que les différences de luminosité étaient toujours linéaires. Cela reste vrai même sur des photographies issues de différentes séries et possédant donc des différences de luminosité encore plus marquées. En Figure 68 sont représentées les intensités de gris pour deux photos provenant de différentes séries en fonction des intensités de gris d'une photographie « de base ». Ces intensités de gris correspondent aux niveaux de gris étalons placées sur les vitres des bacs.

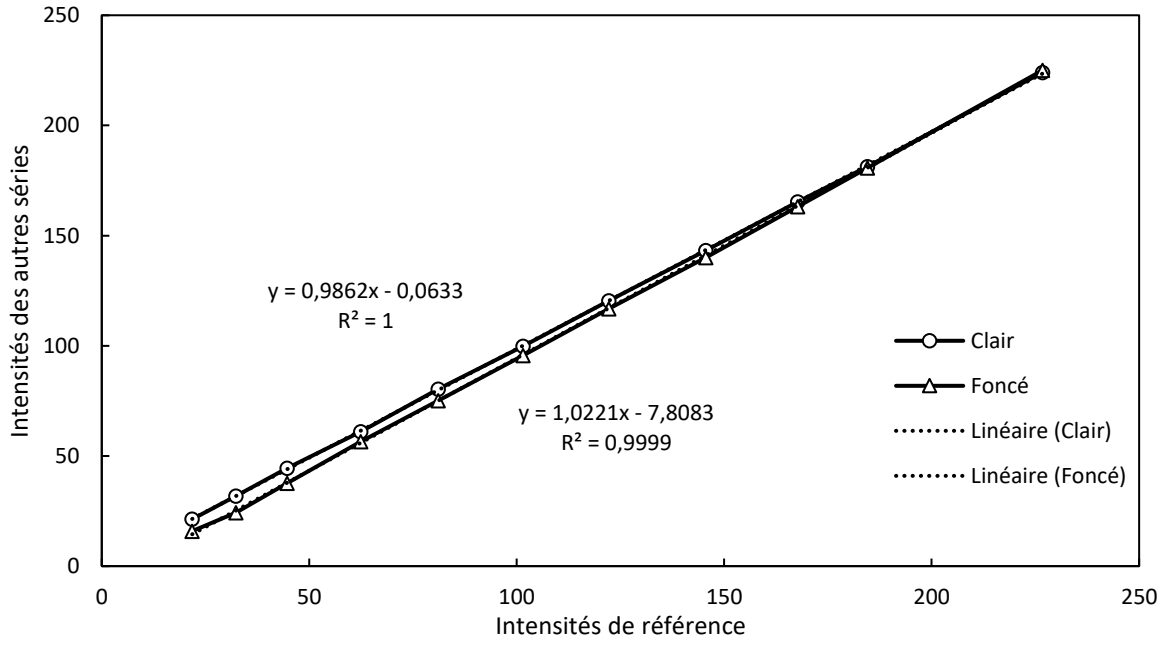


Figure 68. Mise en évidence de la linéarité des différences d'éclairage lors de différentes séries de photographies.

Pour corriger cela, les niveaux de gris étalons sont utilisés comme référence. En effet, ces intensités sont connues quel que soit l'éclairage. Une correction linéaire est donc appliquée avec pour référence le blanc et le noir qui se situent aux extrémités des intensités mesurées et donc permettent une régression linéaire plus précise. Ainsi, il est défini le nombre λ (-) qui représente le coefficient multiplicateur de la luminosité générale entre l'image analysée et l'image zéro.

$$\lambda = \frac{I_{white} - I_{black}}{I_{0,white} - I_{0,black}} \quad (47)$$

Avec I_{white} et I_{black} les intensités de blanc et de noir étalons de l'image analysée et $I_{0,white}$ et $I_{0,black}$ les intensités de blanc et de noir étalons de l'image zéro.

Cependant, avant de définitivement corriger les problèmes de luminosité, il est nécessaire de les intégrer dans l'étape d'uniformisation. Calculer la moyenne d'intensité sur une image quelconque n'a pas de sens lorsque les deux phases sont présentes sur l'image. Ce sont donc les variations de l'image zéro ΔI_0 qui seront réutilisées. Cette matrice est multipliée par λ pour obtenir les intensités uniformisées :

$$I_{uni} = I_{raw} + \lambda \cdot \Delta I_0 \quad (48)$$

Avec I_{uni} l'intensité uniformisée de chaque maille. Il est remarquable que dans le cas de l'image zéro, $\lambda = 1$ et donc $I_{uni} = I_{raw} + \Delta I_0 = I_{raw} + I_{ref} - I_{raw} = I_{ref}$ pour toutes les mailles comme vu en Figure 67.

L'intensité est enfin normalisée linéairement en utilisant le noir et le blanc étalon de l'image :

$$I = 255\left(\frac{I_{uni} - I_{black}}{I_{white} - I_{black}}\right) \quad (49)$$

Avec I l'intensité corrigée de chaque maille. Le coefficient 255 est uniquement ici pour ramener la valeur de l'intensité sur une échelle de 0 à 255 comme initialement afin d'obtenir des valeurs plus parlantes. Techniquement, ce coefficient est dispensable pour l'analyse photographique.

1.3.5. Calibration de la relation Intensité – Saturation

Pour corréler intensité lumineuse et saturation, la loi de Beer-Lambert est utilisée. Cette loi lie l'atténuation de la lumière à travers une solution aux propriétés de la solution traversée, notamment à la concentration de l'espèce absorbant la lumière :

$$A_b = \varepsilon l c \quad (50)$$

Avec A_b l'absorbance (-), ε l'absorptivité molaire du milieu ($m^2.mol^{-1}$), l la longueur du trajet parcouru par la lumière dans le milieu [m] et c la concentration de l'espèce considérée ($mol.m^{-3}$). L'absorbance étant définie telle que :

$$A_b = -log_{10}\left(\frac{\Phi_e^t}{\Phi_e^i}\right) \quad (51)$$

Avec Φ_e^t le flux énergétique transmis par le matériau (W) et Φ_e^i le flux énergétique reçu par le matériau (W).

Dans le cas de l'analyse photographique par réflexion, le flux énergétique transmis peut être associé à la somme de l'intensité lumineuse réfléchie I_r (et diffuse I_d), et le flux énergétique reçu peut être associé à l'intensité lumineuse réfléchie par une surface blanche parfaite I_i :

$$\Phi_e^t \sim I_r + I_d \quad (52)$$

$$\Phi_e^i \sim I_i \quad (53)$$

Cette absorbance définie pour être utilisée en analyse photographique par réflexion est nommée « profondeur optique » et notée OD (-) (Kechavarzi, Soga and Wiart, 2000; Flores *et al.*, 2011).

$$OD = -\log_{10}\left(\frac{I_r}{I_i}\right) \quad (54)$$

Ainsi la profondeur optique est proportionnelle à la concentration de l'espèce absorbant la lumière. L'hypothèse a été faite d'associer par analogie la concentration d'une espèce à la saturation d'un fluide. En effet lors d'un écoulement diphasique, le nombre de molécules d'une phase va jouer le même rôle que la concentration d'une espèce dans l'absorption de la lumière. L'analogie donne la relation linéaire suivante :

$$OD = \varepsilon l c \quad (55)$$

$$OD = \alpha'' \cdot S_l + \beta'' \quad (56)$$

$$S_l = \alpha' \cdot OD + \beta' \quad (57)$$

Avec α'', β'', α' et β' des coefficients constants (-). Il est possible de simplifier cette expression en intégrant les constantes dans les coefficients α et β :

$$S_l = -\alpha' \cdot \log_{10}\left(\frac{I_r}{I_i}\right) + \beta' \quad (58)$$

$$S_l = \alpha \cdot log_{10}(I) + \beta \quad (59)$$

En utilisant I à la place de I_r car l'intensité réfléchie correspond à l'intensité capturée par l'appareil photo. Les coefficients α et β sont ensuite calculés à partir de deux images de calibration où les saturations sont connues. Pour plus de précision et de simplicité, les photographies utilisées seront à $S_{l,foam} = 0{,}05$ (valeur de la saturation en liquide dans la mousse pendant l'écoulement) et $S_l = 1$.

Par la méthode d'uniformisation et de correction de la luminosité développée et présentée précédemment, il est possible de calibrer la relation $S_l = f(I)$ une seule fois et d'appliquer cette relation à toutes les séries de photographies qui seront analysées. En revanche, l'algorithme peut être défaillant s'il existe une forte différence de spatialisation de l'éclairage entre la photographie servant à calibrer la relation $S_l = f(I)$ et la photographie analysée (par exemple un changement d'angle significatif du projecteur). C'est-à-dire que les différences d'intensité sur les niveaux de gris étalon ne correspondent pas aux différences d'intensité sur la moyenne du bac. Pour vérifier cet éventuel défaut, les « intensités de référence » I_{ref} sont comparées :

$$I_{ref} = 255\left(\frac{I_m - I_{0,black}}{I_{0,white} - I_{0,black}}\right) \quad (60)$$

L'algorithme tolère une différence de 5% entre l'intensité de référence de la série analysée et l'intensité de référence de la série ayant été utilisée pour la calibration (l'intensité de référence correspond à $S_l = 1$).

1.3.6. Visualisation

Pour visualiser les résultats de cette analyse, les mailles sont colorisées en fonction de leur intensité de gris. Cette visualisation impose une discrétisation des intensités et des saturations. Pour cette étude, les tranches de saturations [0 ; 0,1], [0,1 ; 0,3], [0,3 ; 0,5], [0,5 ; 0,7], [0,7; 0,9], [0,9 ; 1] seront utilisées et associées à une échelle de couleur allant du blanc au bleu.

1.3.7. Validation de la méthode

Pour valider cette méthode, le volume de gaz dans le bac calculé à partir de l'analyse photographique est comparé à celui calculé à partir des mesures de masses de l'eau de surplus. Pour cette comparaison, une expérience sans écoulement latéral sera utilisée afin de supprimer

les erreurs dues à une différence entre les débits d'injection et de pompage générant l'injection latérale. L'expérience utilisée sera le bac M #20.

Lors de l'injection, le gaz occupe un volume égal au volume d'eau en sortie du bac auquel est soustrait le volume de solution de tensioactif injectée. Le volume de gaz se calcule donc ainsi :

$$V_{gaz,masse}(t) = \frac{m_{eau}(t)}{\rho_{eau}} - Q_{liq} \times t \qquad (61)$$

Avec V_{gaz} le volume de gaz (m^3), m_{eau} la masse d'eau mesurée en sortie (kg), ρ_{eau} la densité de l'eau ($kg.m^{-3}$), Q_{liq} le débit d'injection de solution de tensioactif ($m^3.s^{-1}$) et t le temps (s).

Par imagerie, le volume de gaz dans le bac est déduit des valeurs de saturations calculées à partir de l'intensité lumineuse par l'expression suivante :

$$V_{gaz,imagerie}(t) = \sum_i (1 - S_{l,i}) \times A_i \times e \times \phi \qquad (62)$$

Avec $S_{l,i}$ la saturation en liquide calculée dans la maille (-), A_i l'aire de la maille (m^2), e l'épaisseur du bac (m) et ϕ la porosité du milieu poreux (-). La calibration effectuée sur le bac M #20 donne les valeurs présentées dans le Tableau 12.

Tableau 12. Paramètres de calibration de l'analyse par imagerie. Bac M #20.

α	-2,9009
β	6,3982
I_{ref}	70

En Figure 69 sont présentées l'évolution temporelle du volume de gaz dans le bac, calculé par mesure de la masse et par imagerie. Les barres d'erreurs représentent 5 % de la valeur calculée par imagerie. Les valeurs calculées par les deux techniques sont similaires dans la marge d'erreur de 5 %. Il est donc conclu que la technique d'analyse par imagerie permet de calculer les niveaux de saturation dans le bac à ±5 % près.

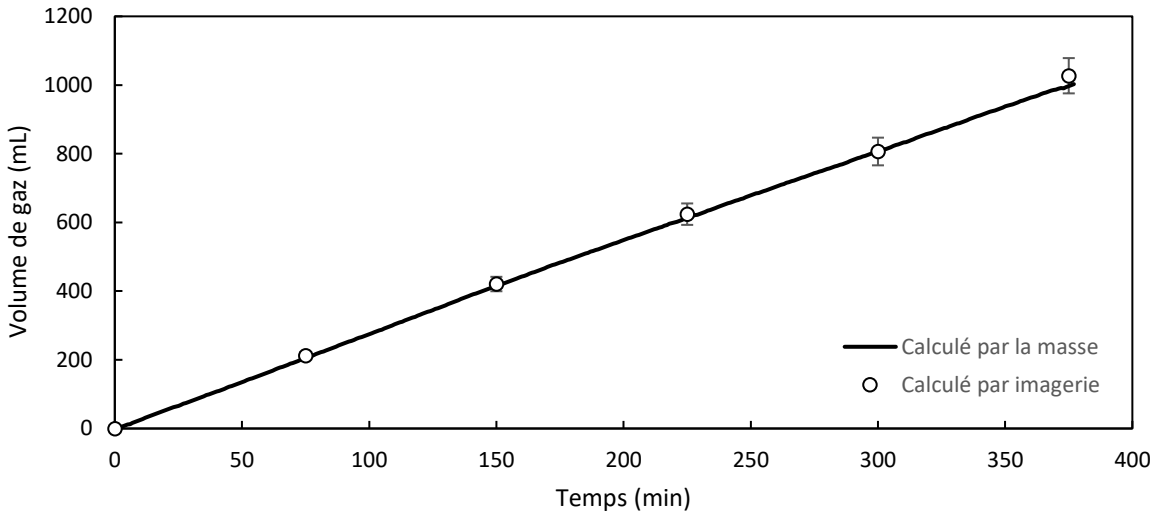


Figure 69. Volume de gaz dans le bac en fonction du temps, calculé par mesure de la masse et par imagerie. Les barres d'erreurs représentent 5 % de la valeur calculée par imagerie.

1.4. Analyse des sondes TDR

Topp, Davis et Annan (1980) ont développé une relation empirique pour déterminer la permittivité relative en fonction de la teneur en liquide volumétrique θ pour des billes de verre de 450 µm de diamètre. Les billes utilisées pour ce dispositif étant du même ordre de grandeur (1 mm), la même relation sera utilisée pour cette étude :

$$K_a(\theta) = 3{,}57 + 31{,}7\theta + 114\theta^2 - 68{,}2\theta^3 \quad (63)$$

Avec θ la teneur en liquide volumétrique [-] et K_a la permittivité relative [-]. En faisant une régression polynomiale du 3ème ordre sur l'inverse de cette fonction pour $\theta \in [0; 0{,}4]$, il est obtenu ($R^2 = 0{,}9998$) :

$$\theta_{Topp}(K_a) = 1{,}0641 \times 10^{-5} {K_a}^3 - 7{,}5455 \times 10^{-4} {K_a}^2 + 2{,}9466 \times 10^{-2} K_a - 9{,}1151 \times 10^{-2} \quad (64)$$

Chaque sonde est ensuite calibrée indépendamment en effectuant une linéarisation à partir de deux mesures où la teneur en liquide est connue : $\theta = 0$ (milieu poreux sec) et $\theta = \phi$ (milieu poreux saturé en eau). Les valeurs étant dépendantes de l'agencement des billes, cette calibration est faite avant chaque expérience. La relation finale permettant d'exprimer la saturation en fonction de la permittivité relative est :

$$S_l(K_a) = \frac{\theta(K_a)}{\phi} = \frac{1}{\phi}\left(a \times \theta_{Topp}(K_a) + b\right) \quad (65)$$

Avec a et b deux constantes, telles que :

$$a = \frac{\phi - 0}{\theta_{Topp}(K_{a,\theta=\phi}) - \theta_{Topp}(K_{a,\theta=0})} \quad (66)$$

$$b = \phi - a \times \theta_{Topp}(K_{a,\theta=\phi}) \quad (67)$$

1.4.1. Estimation de l'incertitude de mesure

La relation empirique (Eq. 63) (Topp, Davis and Annan, 1980) conduit à une erreur d'estimation de la valeur de θ de 1,14 % d'après les auteurs. De plus, les sondes utilisées ont une précision de mesure de la permittivité relative de ±1 [-]. Cette caractéristique génère une incertitude sur la saturation en liquide variant de 0,09 [-] pour $S_l = 0$ (maximum) à 0,05 [-] pour $S_l = 1$ (minimum). Le calcul de la saturation fait également intervenir la porosité, calculée avec une incertitude de 2,5 %, et des constantes elles-mêmes issues de mesures effectuées par les sondes TDR.

Le cumul de ces incertitudes est ainsi majoré à ±0,1 [-] en valeur absolue de la saturation. Il a été choisi d'utiliser une incertitude absolue plutôt que relative pour mieux apprécier les valeurs proches de $S_w = 0$.

2. Ecoulement et stabilité de la mousse

Cette partie traite des résultats obtenus pour le cas référence, c'est-à-dire un écoulement de mousse en présence d'un écoulement latéral de 10 m/jour. Au cours de cette partie seront successivement étudiées la propagation du front de mousse, la capacité à bloquer l'écoulement et la stabilité de la mousse dans le milieu poreux suite à l'arrêt de l'injection.

2.1. Propagation du front

2.1.1. Définition des paramètres géométriques descriptifs

La propagation du front peut être observée directement par la mesure du massif de mousse qui s'écoule dans le milieu. Pour quantifier le volume de mousse, le rayon d'action de la mousse est défini comme la moyenne géométrique du rayon latéral et du rayon vertical (voir Figure 70) :

$$ROI = \sqrt{R_h R_v} \quad (68)$$

Au cours de cette section, seule la forme de la mousse forte sera discutée. La mousse forte peut être distinguée visuellement de la mousse faible et des bulles de gaz par la régularité de sa forme ainsi que sa couleur très proche du blanc, témoignant d'une forte saturation en gaz. Les zones du bac où s'écoulent de la mousse faible ou des bulles de gaz présentent des formes irrégulières et difficilement qualifiables géométriquement.

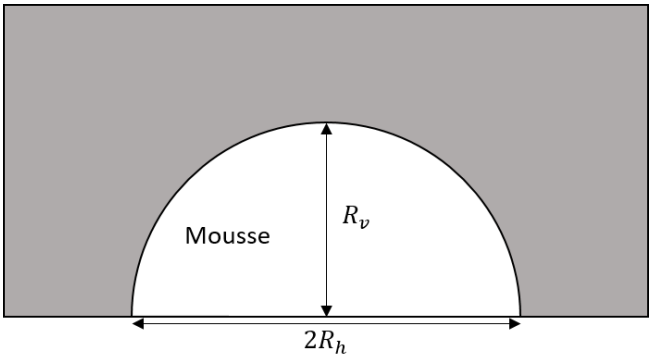


Figure 70. Définition des rayons d'action.

Lors des expériences, la forme de la mousse forte est toujours très proche de celle d'une demi-ellipse (voir Figure 71). Il est possible de quantifier la circularité de la forme C pour analyser si celle-ci se rapproche de celle d'un disque parfait.

$$C = \frac{4\pi A}{P^2} \quad (69)$$

Avec C la circularité (-), A l'aire (m²) et P le périmètre (m). Plus C est proche de 1, plus la forme est proche d'un disque.

En faisant l'hypothèse d'une forme elliptique, l'aire et le périmètre de notre forme peuvent être obtenus à partir des deux demi-rayons :

$$A = \pi R_v R_h = \pi \times ROI^2 \quad (70)$$

$$P = 2\pi \sqrt{\frac{R_v^2 + R_h^2}{2}} \quad (71)$$

Et donc,

$$C = \frac{2R_v R_h}{R_v^2 + R_h^2} \quad (72)$$

Pour compléter l'analyse de la forme de la mousse, le rapport de forme AR (pour « *aspect ratio* ») est défini tel que :

$$AR = \frac{R_h}{R_v} \quad (73)$$

Le rapport de forme permet de quantifier quel demi-axe de l'ellipse est le plus long, et par quel facteur.

Il est à noter que durant les écoulements de mousse, notamment à la fin de ceux-ci, le demi-axe horizontal ne se situe pas exactement au niveau du bas du bac mais légèrement au-dessus. Dans ces cas-là, la forme de la mousse forte est plus proche des 3/5 d'une ellipse plutôt que d'une demi-ellipse. Lors de toutes les mesures nous considérons le plus grand demi-axe visible sur la photographie.

Les trois paramètres ainsi définis, rayon d'action, circularité et rapport de forme, permettent une description représentative de la propagation du front de mousse.

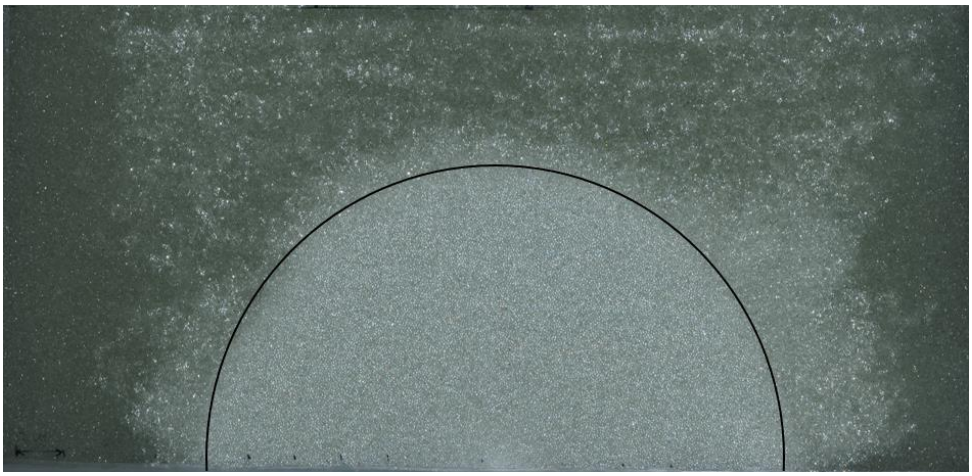


Figure 71. Exemple de la forme de propagation de la mousse (Bac S #10). La mousse forte est visuellement identifiable par sa couleur blanche et sa forme régulière.

2.1.2. Répétabilité des résultats

En Figure 72, Figure 73 et Figure 74 sont présentées les mesures du rayon d'action, de la circularité et du rapport de forme pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions. L'injection est effectuée dans un bac « S » avec un écoulement latéral de 10 m/jour de type « ouvert ».

La Figure 72 montre la faible répétabilité de la mesure du rayon d'action lors d'écoulements de mousse à l'échelle macroscopique. En effet, les mesures effectuées peuvent varier du simple au double. Cette non-répétabilité des résultats confirme les observations et interprétations formulées au Chapitre 4. Les processus de formation, de propagation et de destruction de la mousse dans le bac sont très dépendants des conditions d'injection, en particulier de la nature et des propriétés de la mousse issue du pré-générateur. Lorsque le ROI augmente lentement avec le temps, cela correspond à de nombreux phénomènes de coalescence, menant à la création de mousse faible autour de la mousse forte, voire à des échappements de gaz qui remonte à la surface. Ainsi, les valeurs des rayons d'action présentées dans ce chapitre doivent être analysées avec prudence.

Les processus de formation et de destruction de la mousse dépendent de nombreux paramètres difficilement reproductibles d'une expérience à l'autre (réalisation du milieu poreux, conditions aux limites, ...). Aux temps longs, des formations de zones de mousse faible autour de la mousse forte ont pu être observées, parfois accompagnées de mouvements rapides de gaz dus à la gravité, qui conduisent à des fortes variations de l'estimation du ROI.

Les évolutions temporelles de la circularité et du rapport de forme ne sont également pas identiques pour chaque expérience, redémontrant la faible répétabilité. Il est à noter que les expériences présentant une évolution similaire du ROI n'ont pas forcément une évolution similaire de la circularité et du rapport de forme.

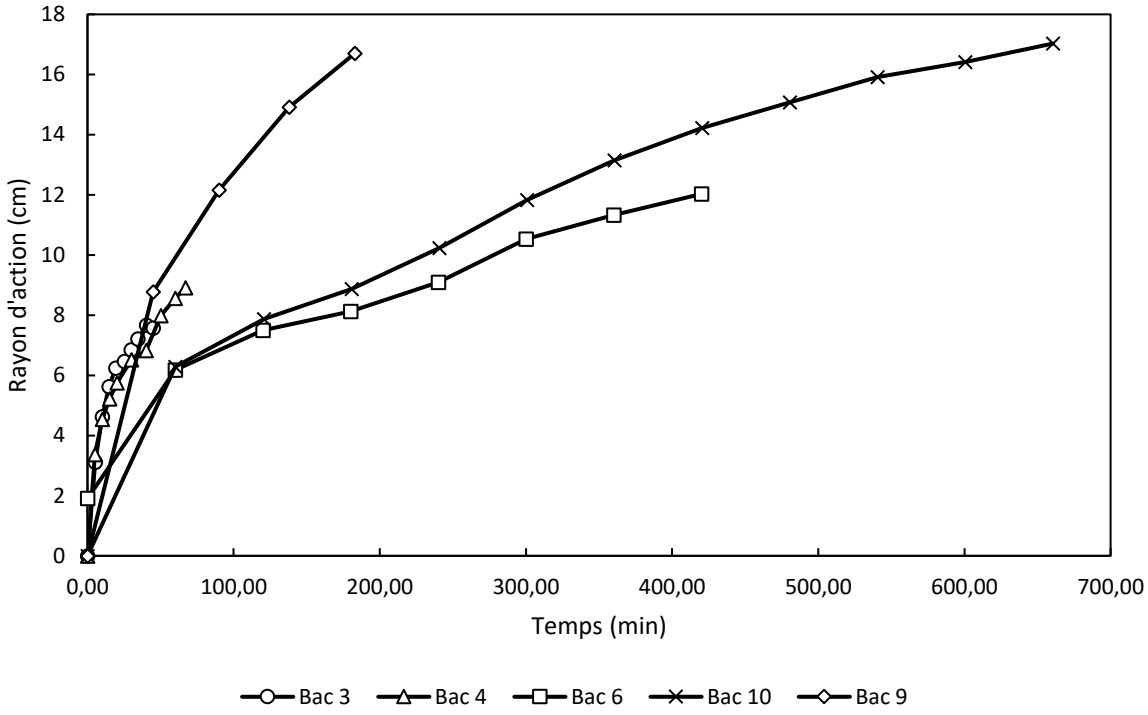


Figure 72. ROI pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions. Bac S. Ecoulement latéral 10 m/jour.

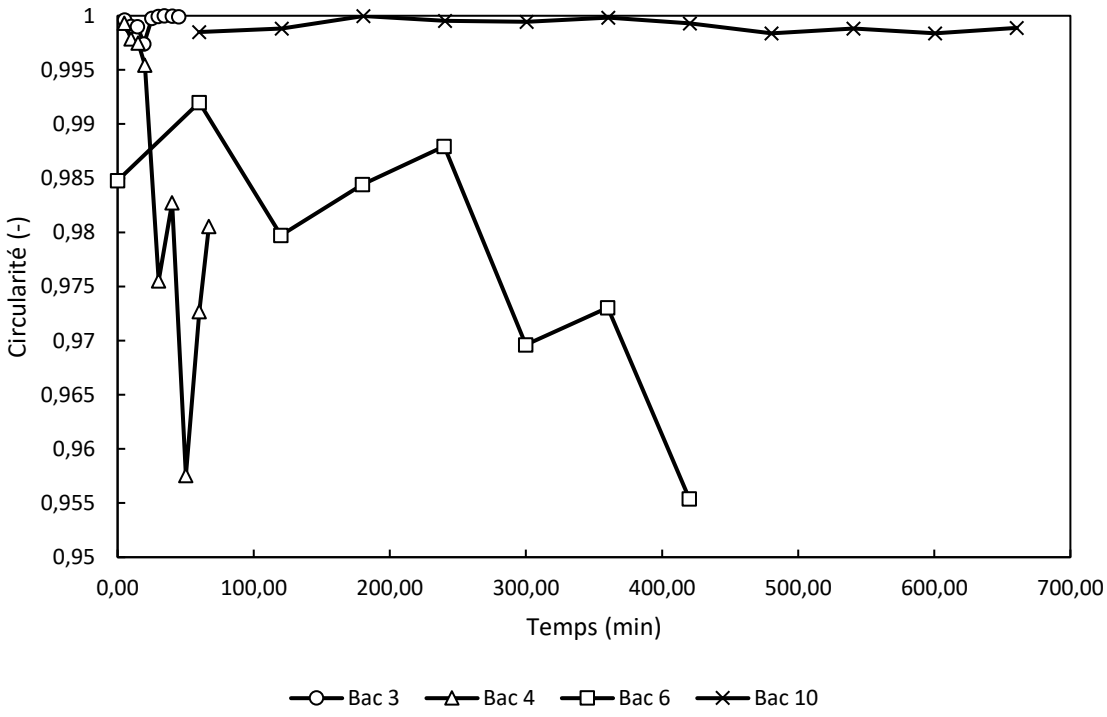


Figure 73. Circularité pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions. Bac S. Ecoulement latéral 10 m/jour.

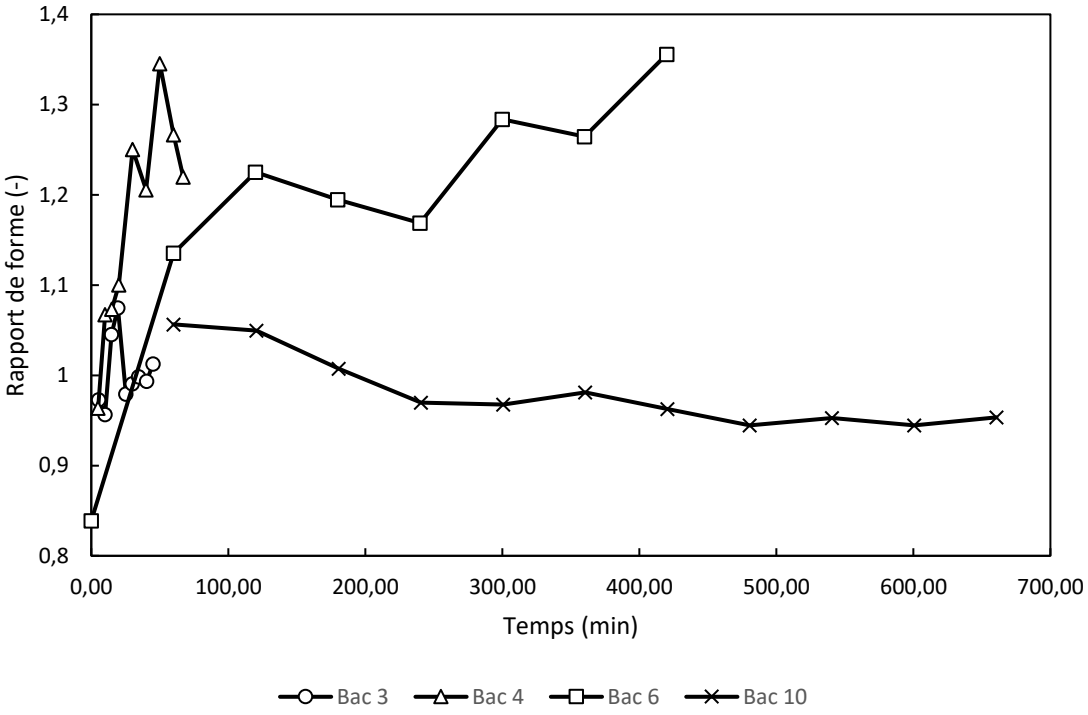


Figure 74. Rapport de forme pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions. Bac S. Ecoulement latéral 10 m/jour.

2.1.3. Observations générales

2.1.3.1. Evolution temporelle du rayon d'action

Les dynamiques du rayon d'action, bien que non totalement répétables, suivent une évolution proche d'une fonction puissance. Dans le cas théorique où aucun phénomène de coalescence ne se produirait, le rayon d'action évoluerait suivant une relation du type $ROI = a\sqrt{t}$, par définition géométrique (le débit d'injection étant constant). Par les phénomènes de coalescence, une partie du volume de gaz injecté s'échappe et n'est pas inclut dans le massif de mousse forte. Ainsi, les rayons d'actions suivent une loi puissance avec un exposant inférieur à 0,5 (0,35 – 0,46), dépendant du taux de coalescence (voir Figure 75 et Tableau 13). Géométriquement, la fonction théorique maximale du rayon d'action en fonction du temps, dans le cas où 100% de la mousse serait convertie en mousse forte, serait $ROI = \sqrt{\frac{2Q\phi}{\pi e}}t^{0,5} = 1{,}75t^{0,5}$. Les coefficients des bacs 3 et 4 sont ici supérieurs à la théorie. Cependant, cela n'a d'impact que sur les deux premières minutes comme montré en Figure 76. Il s'agit donc d'imprécisions dans la régression puissance due à la faible durée de ces expériences.

Tableau 13. Evolution du rayon d'action en fonction du temps pour les expériences en bac S avec écoulement latéral de 10 m/jour.

Numéro du bac	$ROI = f(t)$
3	$1{,}76t^{0{,}40}$
4	$1{,}92t^{0{,}36}$
6	$1{,}44t^{0{,}35}$
9	$1{,}51t^{0{,}46}$
10	$0{,}96t^{0{,}44}$

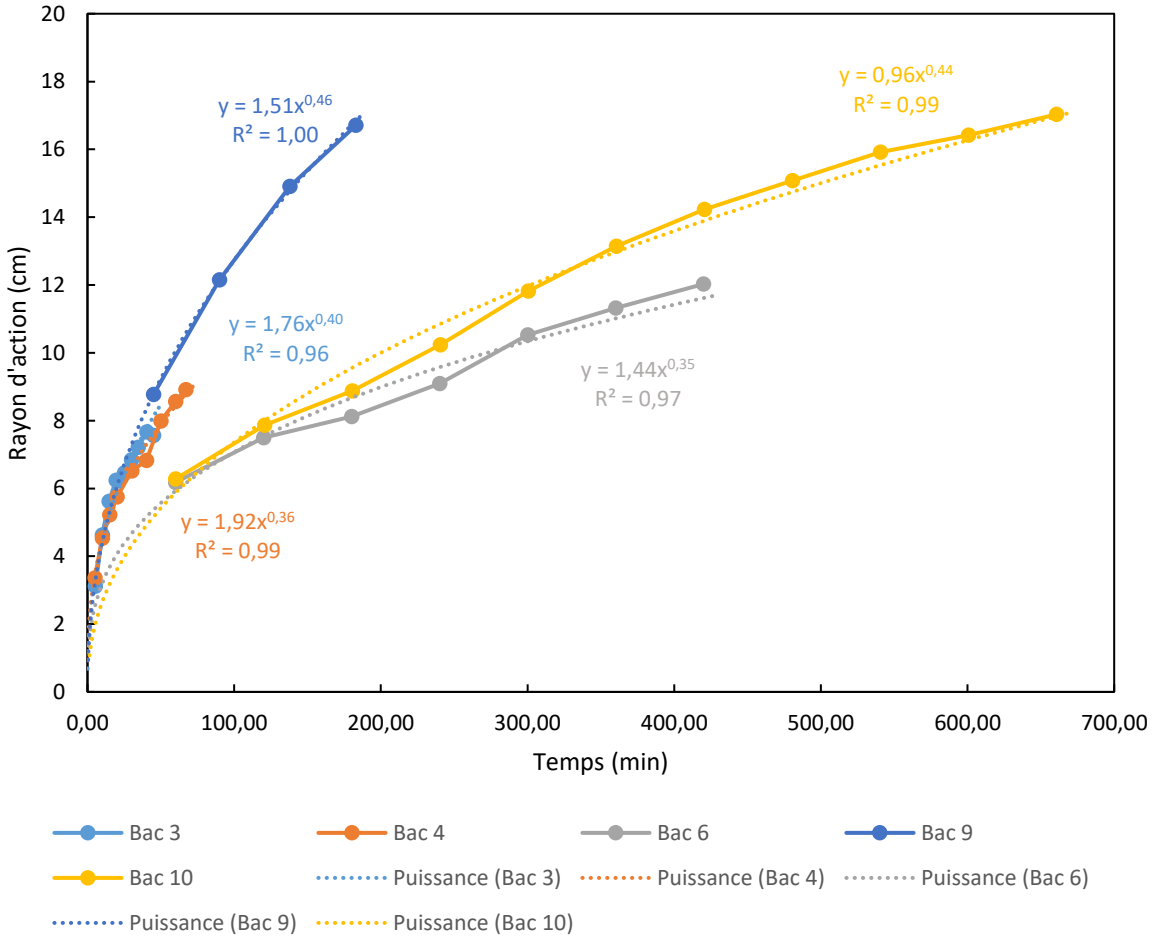


Figure 75. Régression en loi puissance de l'évolution temporelle du ROI.

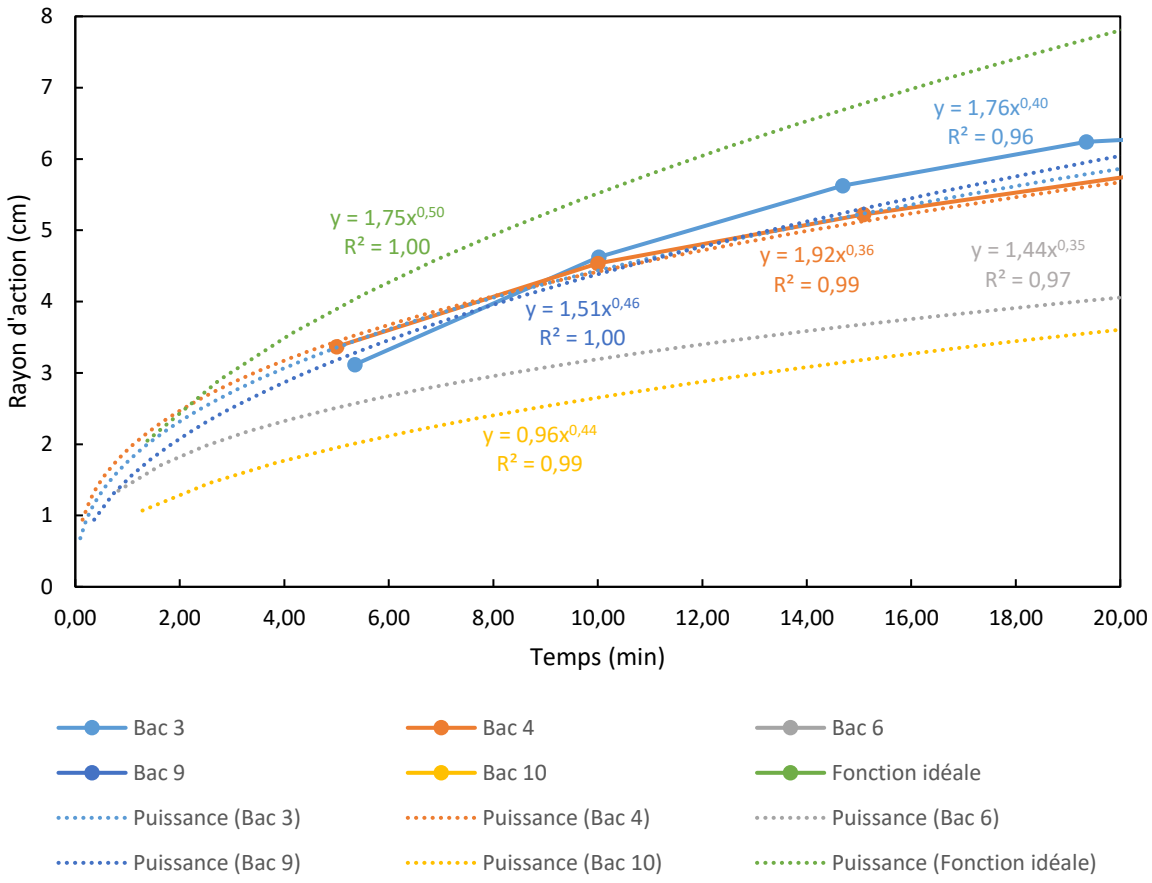


Figure 76. Régression en loi puissance de l'évolution temporelle du ROI. Zoom sur les premières minutes.

2.1.3.2. Circularité et rapport de forme

La circularité (Figure 73) est proche de 1 dans les cinq cas, montrant que la forme du massif se rapproche d'un demi-cercle. Le rapport de forme (Figure 74) est supérieur à 1 pour la quasi-totalité des expériences. Cela signifie que l'élongation de la demi-ellipse est horizontale. Ces résultats montrent que la gravité n'a pas d'impact lors de la propagation du front de mousse. Cela confirme les résultats obtenus au Chapitre 4 qui montrent que dans le cas de l'écoulement d'une mousse forte en milieu poreux, les forces visqueuses sont dominantes sur les forces gravitaires. L'élongation mesurée dans la direction horizontale est attribuée à des effets de bords. Près des parois du bac, la perméabilité est plus importante qu'au cœur du milieu poreux à cause d'un empilement non-optimal des billes de verre.

2.1.3.3. Mousse faible et gaz libre

En Figure 77 est présenté un exemple de photographie montrant le type de coalescence survenant pendant l'injection de mousse conjointement à un écoulement horizontal. La Figure 71 est également un autre exemple de ce type de coalescence. Les motifs présentés ici se

retrouvent dans l'intégralité des expériences effectuées dans ces conditions, pour toutes les tailles de bacs (voir Annexe F).

Deux zones de coalescence sont identifiées : au coin inférieur gauche et sur le flanc droit de la mousse forte. De la mousse faible s'échappe dans ces zones. Cette mousse faible est moins visqueuse et se déplace par gravité. Elle sature également moins efficacement le milieu poreux en raison de sa faible viscosité, ce qui est directement visible par une couleur plus sombre que celle de la mousse forte. Du gaz libre s'échappe principalement de ces zones mais également de toute l'interface entre la mousse forte et l'eau. La majorité du gaz libre remonte directement à la surface. Une faible quantité est piégée dans le milieu poreux par effet de capillarité.

Les zones sur les deux flancs du massif de mousse sont les lieux de coalescence car il s'agit des lieux offrant le moins de perte de charge. La mousse faible est générée au cours de l'injection suite aux phénomènes de coalescence et de mûrissement ayant lieu dans la mousse. Cette mousse faible est moins visqueuse et s'écoule donc par le chemin offrant le moins de perte de charge. Les zones en contact avec la paroi inférieure du bac sont plus perméables car l'empilement des billes est moins compact. Ces effets de bords offrent ainsi un chemin préférentiel à la mousse faible. Ces interprétations expliquent l'observation de mousse faible aux coins de la mousse forte.

Pour ce qui concerne le flanc droit, la mousse faible possède une faible viscosité et est ainsi soumise aux effets gravitaires. Cette zone correspond à au chemin préférentiel emprunté par la mousse faible. En effet, l'écoulement latéral d'eau qui a lieu dans le bac de la gauche vers la droite, applique ainsi une pression supplémentaire sur le flanc gauche, ce qui augmente les pertes de charges et inhiber l'échappement de mousse faible sur ce côté gauche. Ainsi, la majeure partie de l'écoulement de mousse faible s'écoule et s'échappe au niveau du flanc droit de la mousse forte.

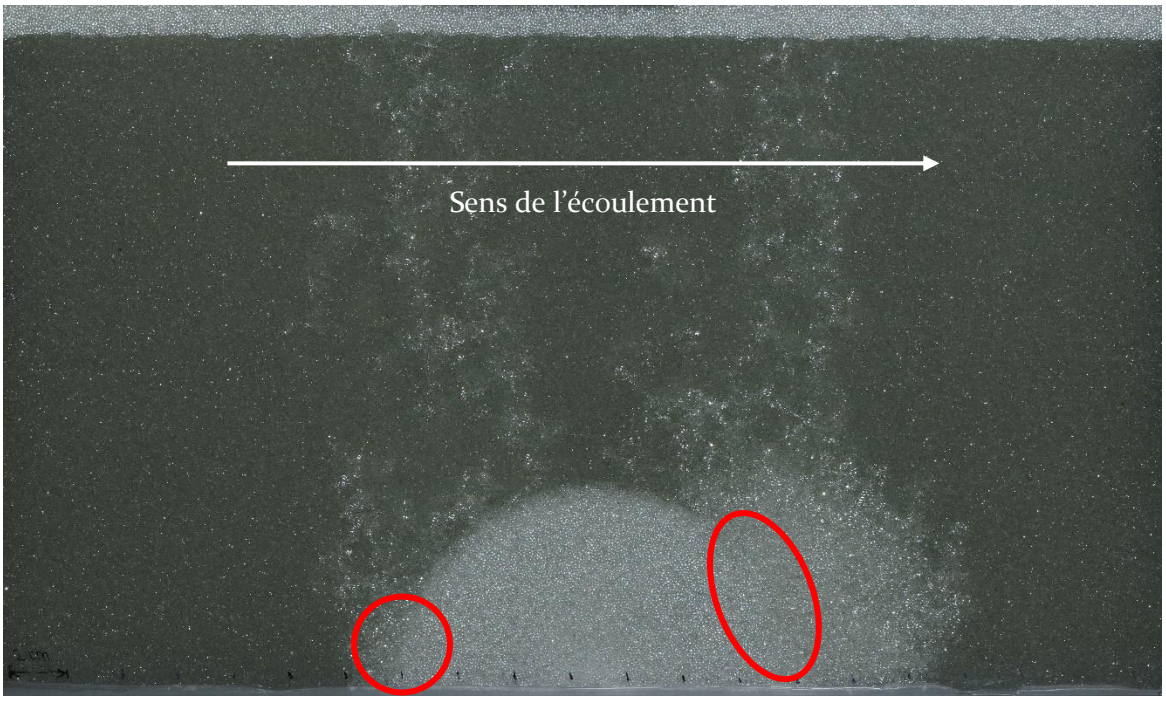


Figure 77. Exemple des phénomènes de coalescence lors de l'injection. En rouge sont identifiées les zones de coalescence. (Bac S #3).

2.2. Blocage de l'écoulement

En Figure 78 sont montrés les résultats des traçages effectués avant et après injection dans le bac S #10. Avant injection, le traceur s'écoule uniformément. L'élargissement de la forme est dû à la diffusion du traceur dans le milieu poreux. Après la fin de l'injection de mousse, le traceur s'écoule autour de la mousse forte. L'écoulement latéral d'eau est donc totalement détourné par la mousse forte. Dans ce cas, l'injection de mousse a été prolongée pour que celle-ci atteigne la zone non-saturée du bac. Les photographies montrent qu'en réaction, le niveau d'eau augmente en amont afin de permettre à l'eau de s'écouler par-dessus la mousse.

Le principal responsable de ce phénomène est la forte viscosité attribuée à la mousse forte. Déplacer la mousse demanderait une très haute pression en amont de l'écoulement latéral. Il est donc plus aisé pour l'eau de s'écouler autour de la mousse. Celle-ci permet également de réduire la perméabilité relative à l'eau en réduisant la saturation en liquide, ce qui vient renforcer le blocage de la mousse. Ces résultats démontrent que la mousse est capable de détourner un écoulement d'eau, agissant comme un fluide bloquant.

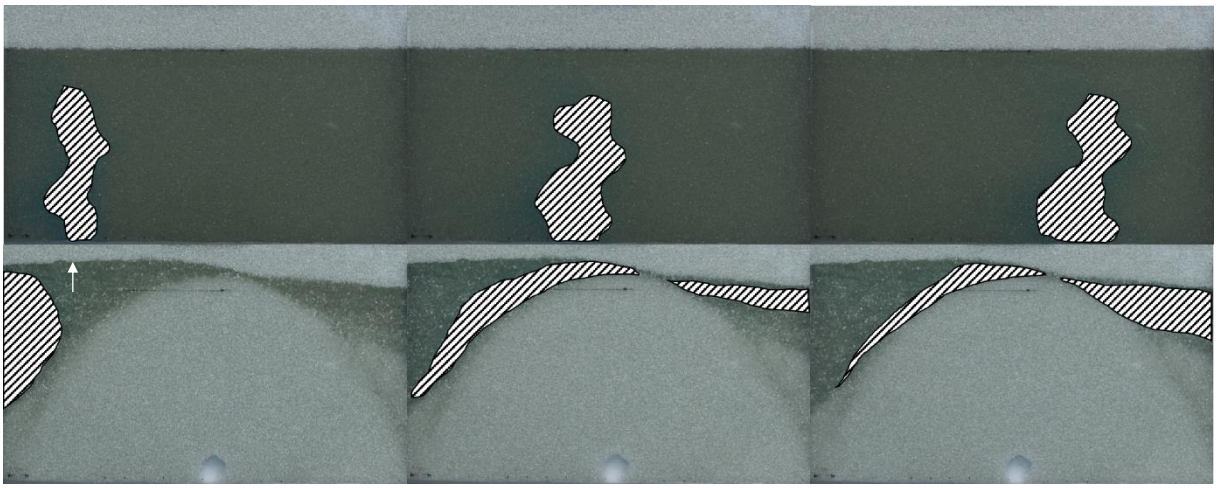


Figure 78. Traçages avant et après injection de mousse. Le traceur est identifié par la zone hachurée. Bac S #10.
Haut : Avant injection. 15 minutes entre chaque photographie.
Bas : Après injection. 5 minutes entre chaque photographie.

2.3. Stabilité de la mousse en milieu poreux

Après la fin de l'injection, la stabilité temporelle de la mousse est étudiée. Lors de cette phase de l'expérience, l'écoulement latéral est maintenu dans le bac.

En Tableau 14 sont présentées les photographies de la destruction de la mousse dans le bac M #18 pendant la phase de stabilité. La mousse forte est totalement détruite après 53 heures. Celle-ci laisse place à un milieu poreux fortement saturé en gaz qui évolue peu après ce stade de la destruction de mousse. L'essentiel du gaz dans le milieu poreux est alors piégé par capillarité dans les pores.

La Figure 79 présente l'évolution du volume de gaz dans le bac avec le temps, obtenue par imagerie. Après un court délai, le volume de gaz diminue et atteint une valeur limite correspondant au volume de gaz dans le bac une fois que toute la mousse forte est détruite. Il est intéressant de noter que le volume de gaz diminue peu au cours de la destruction de la mousse forte (de 1150 mL à 955 mL). 83% du gaz apporté par l'écoulement de mousse reste donc bloqué dans le milieu poreux, soit à l'emplacement initial de la mousse, soit au-dessus en remontant par flottabilité. La photographie du bac après destruction montre ainsi une distribution de la saturation en gaz beaucoup plus homogène que lors de la fin de l'injection. Les tests de traçage effectués à la fin de la destruction de la mousse montrent que l'écoulement est ralenti dans la zone d'injection de la mousse mais que celui-ci traverse cette zone à nouveau (voir Figure 80).

Le délai avant le début de la destruction de la mousse semble indiquer que celle-ci est due à un manque de tensioactif. En effet, durant les premiers instants de la phase de stabilité, la solution de tensioactif est suffisamment concentrée pour garantir la stabilité de la mousse. Avec le phénomène d'advection-diffusion à l'interface, la concentration en tensio

actif dans la solution diminue en dessous de la CMC, ce qui favorise la coalescence.

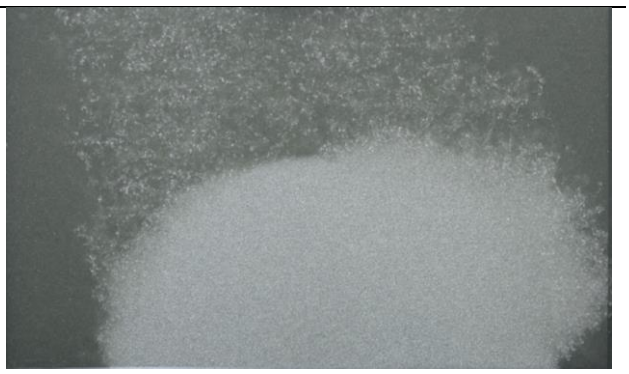
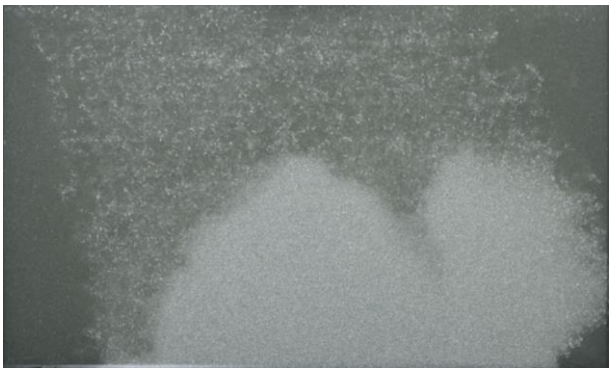
Grâce à la prise de photographies, il est également possible de mesurer la hauteur des colonnes d'eau dans les cavités « entrée » et « sortie ». Les différences de hauteurs correspondent à la perte de charge nécessaire pour générer l'écoulement latéral dans le milieu poreux. Ces pertes de charge sont dues au fait qu'un certain nombre de pores sont occupés par du gaz libre ou de la mousse. Elles correspondent à une réduction de la mobilité moyenne de l'eau dans le bac. Ce coefficient de réduction de la mobilité $RF_{eau,lat}$ (-) est défini tel que :

$$RF_{eau,lat}(t) = \frac{\Delta h(t)}{\Delta h_{init}} \quad (74)$$

Avec Δh_{init} la différence de hauteur d'eau due à l'écoulement latéral avant l'injection de mousse (m) et Δh la différence de hauteur d'eau due à l'écoulement latéral à l'instant t (m).

En Figure 81 est présentée l'évolution temporelle de $RF_{eau,lat}$ pour le bac M #18. A la fin de la phase d'injection, la mobilité est logiquement réduite à cause de l'espace occupé par la mousse forte qui détourne l'écoulement latéral. Durant la phase de stabilité, la mobilité continue de diminuer malgré la destruction de la mousse forte. Comme expliqué précédemment à partir de la Figure 79 et du Tableau 14, une grande partie du gaz apporté par la mousse reste présent dans le bac. De plus, le gaz qui s'échappe de la mousse forte lorsque celle-ci coalesce remonte vers la surface et se piège dans des pores qui étaient précédemment remplis de liquide au-dessus de la mousse. Ainsi, la saturation en gaz augmente dans cette zone au-dessus de la mousse forte et reste élevée dans la zone précédemment occupée par la mousse forte. Ainsi, la réduction de la mobilité moyenne dans le bac augmente lors de la coalescence de la mousse forte.

Tableau 14. Evolution du massif de mousse pendant la phase de stabilité. Bac M #18.

Temps après fin de l'injection	Photographies
0 h	
10 h	
29,5 h	
53,5 h	

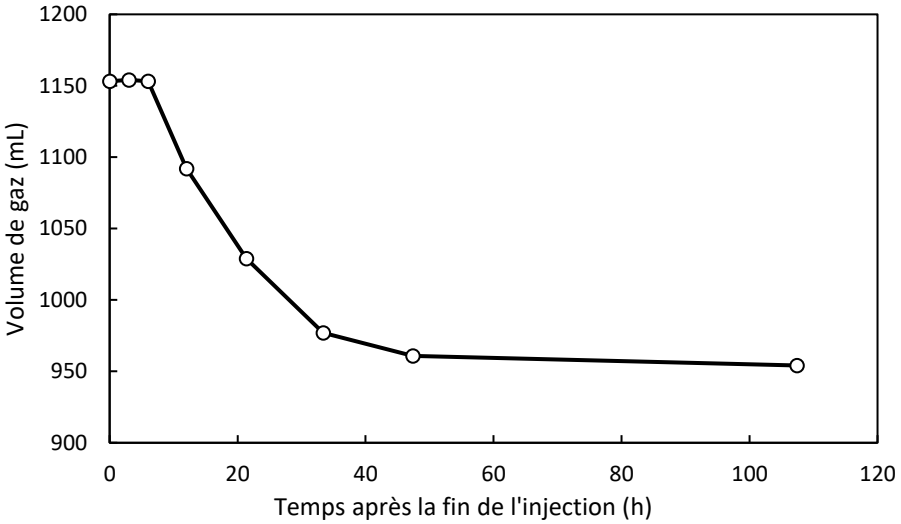


Figure 79. Evolution du volume de gaz dans le bac après la fin de l'injection. Bac M #18.

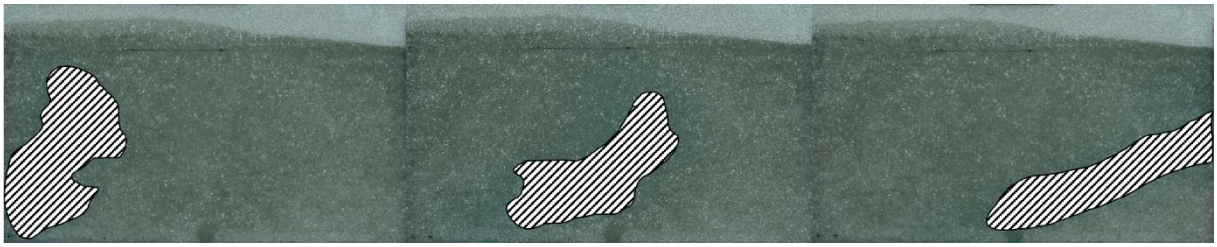


Figure 80. Traçage après destruction de la mousse. Le traceur est identifié par la zone hachurée. 15 minutes entre chaque photographie. Bac S#10.

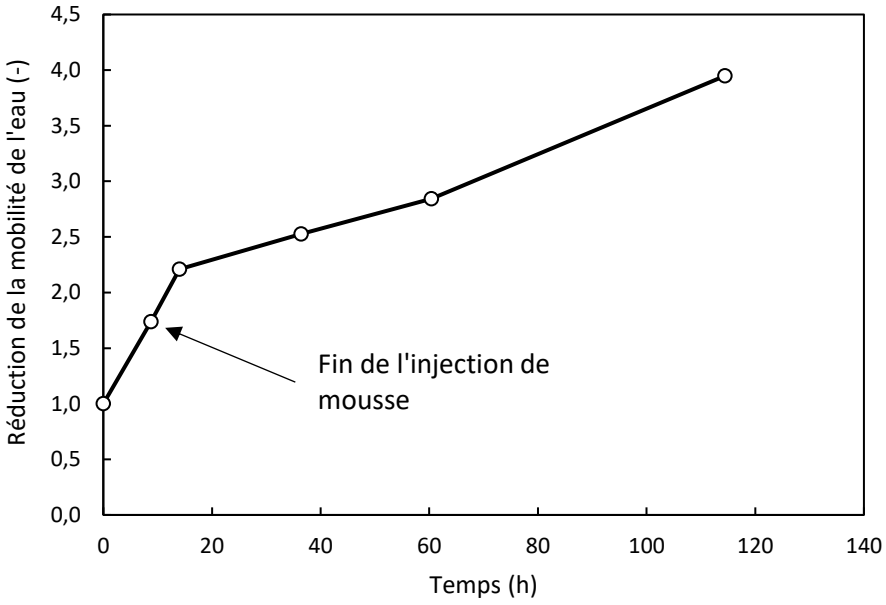


Figure 81. Réduction de la mobilité en fonction du temps. Bac M #18.

La mousse forte détourne strictement l'écoulement lors de la phase d'injection mais celle-ci est rapidement détruite après l'arrêt de l'injection. Après cette destruction, la mobilité de l'eau diminue grandement grâce à l'homogénéisation de la saturation en gaz. L'écoulement latéral génère davantage de différence de pression pour s'écouler dans le bac après la destruction de la mousse. Ainsi, la mousse conserve ses propriétés bloquantes même après sa destruction. Le principal intérêt de la mousse pour bloquer une zone pourrait donc d'être un moyen de transporter du gaz dans un milieu poreux de manière homogène grâce à sa forte viscosité. Une fois la zone occupée par la mousse, celle-ci peut se détruire pour laisser place au gaz piégé qui maintiendra une perméabilité relative faible.

2.4. Evolution des champs de pression et de saturation

2.4.1. Pression d'injection

En Figure 82 est présentée l'évolution de la pression d'injection en fonction du temps pour les trois bacs S, M et L. Pour les bacs S et L, la pression se stabilise bien que le rayon d'action continue d'augmenter. Pour le bac M, la phase d'injection n'est pas assez longue pour que la pression atteigne sa valeur d'équilibre.

La stabilisation du signal de pression montre qu'un état de pseudo équilibre est atteint entre génération et destruction de la mousse. La mousse est injectée dans les mêmes conditions tout au long de l'expérience. On note, dans un premier temps, une augmentation régulière de la pression suivie, dans un second temps, d'une stabilisation du signal. Ce phénomène peut s'expliquer de deux manières complémentaires : un mûrissement de la mousse au niveau du front de déplacement qui entraîne une diminution locale de la viscosité apparente, et une réduction de la saturation en eau au niveau de la zone d'injection qui conduit à une augmentation de la pression capillaire locale jusqu'à sa valeur critique.

Si on considère que le mûrissement de la mousse au niveau du front de déplacement est faible, la mesure du champ de pression peut conduire à une évaluation de la valeur de la pression capillaire critique. Celle-ci dépend de la formulation de la mousse, de la qualité et des propriétés du milieu poreux. Toutes les expériences ayant été réalisées avec ces mêmes paramètres, il est possible d'en déduire la pression capillaire critique p_c^*.

$$p_c^* = p_{mousse}^* - p_l \qquad (75)$$

Avec p_{mousse}^* la pression de stabilisation de la mousse durant les expériences et p_l la pression du liquide, égale à la pression hydrostatique dans le bac car il n'y a pas d'écoulement d'eau au niveau du point d'injection.

$$p^*_{c,bac\ S} = 215 - 20 = 195\ mbar \quad (76)$$

$$p^*_{c,bac\ L} = 245 - 60 = 195\ mbar \quad (77)$$

Ainsi, il est possible de conclure que la pression capillaire critique de cette mousse dans un milieu poreux de billes de verre de 1 mm est d'environ $1{,}9.10^2$ mbar.

Lors des premiers temps de l'injection, l'évolution de la pression suit une loi logarithmique (voir Figure 83). Cette observation n'a pas été possible sur le bac S où la pression d'équilibre est atteinte très rapidement car la faible épaisseur du bac augmente la vitesse de l'écoulement et la pression en conséquence. Une évolution de la pression en loi logarithmique est le comportement qui devrait être observé dans le cas de l'injection d'un fluide visqueux, conjointement à une propagation sous la forme d'un demi-disque parfait. Ces mesures sont donc en accord avec les observations formulées en Partie 2.1.3.2 qui montrent que la forme de la mousse forte est un demi-disque.

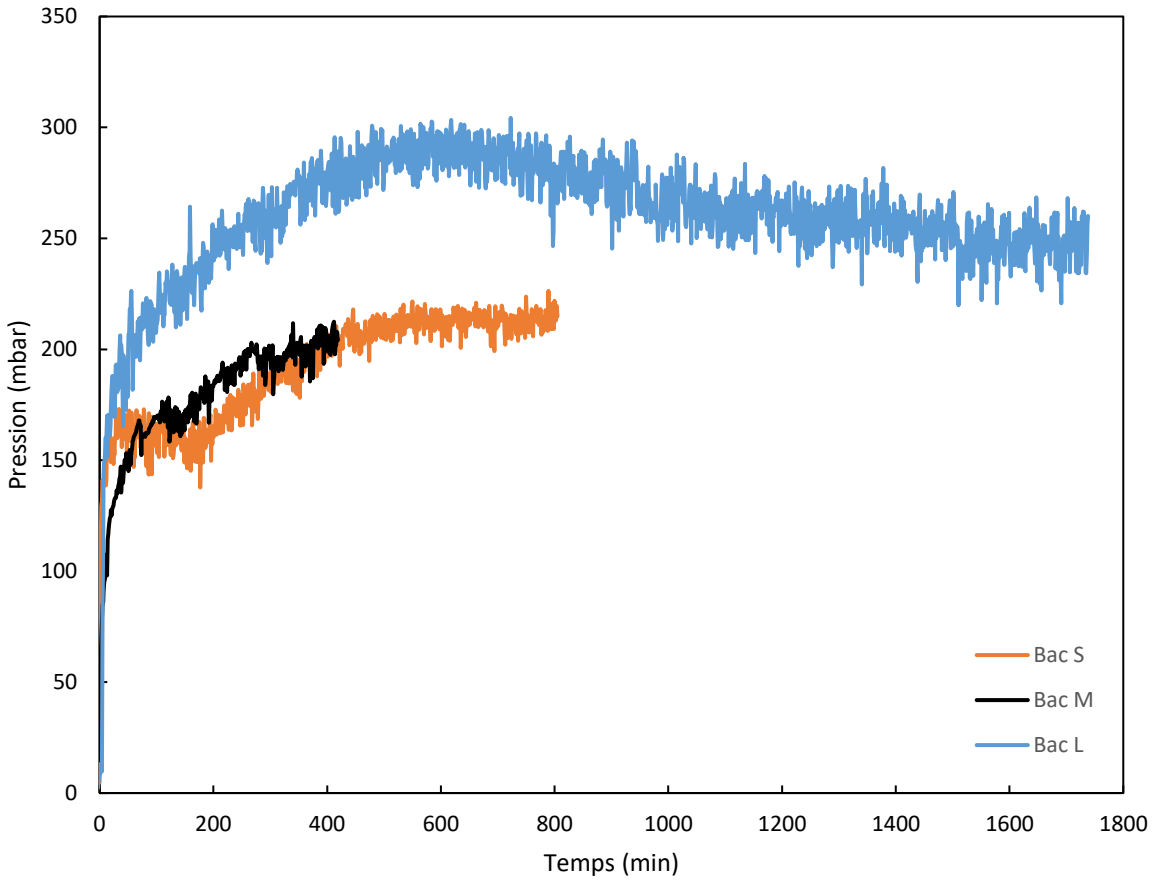


Figure 82. Evolution de la pression en fonction du temps pour les trois tailles de bac.

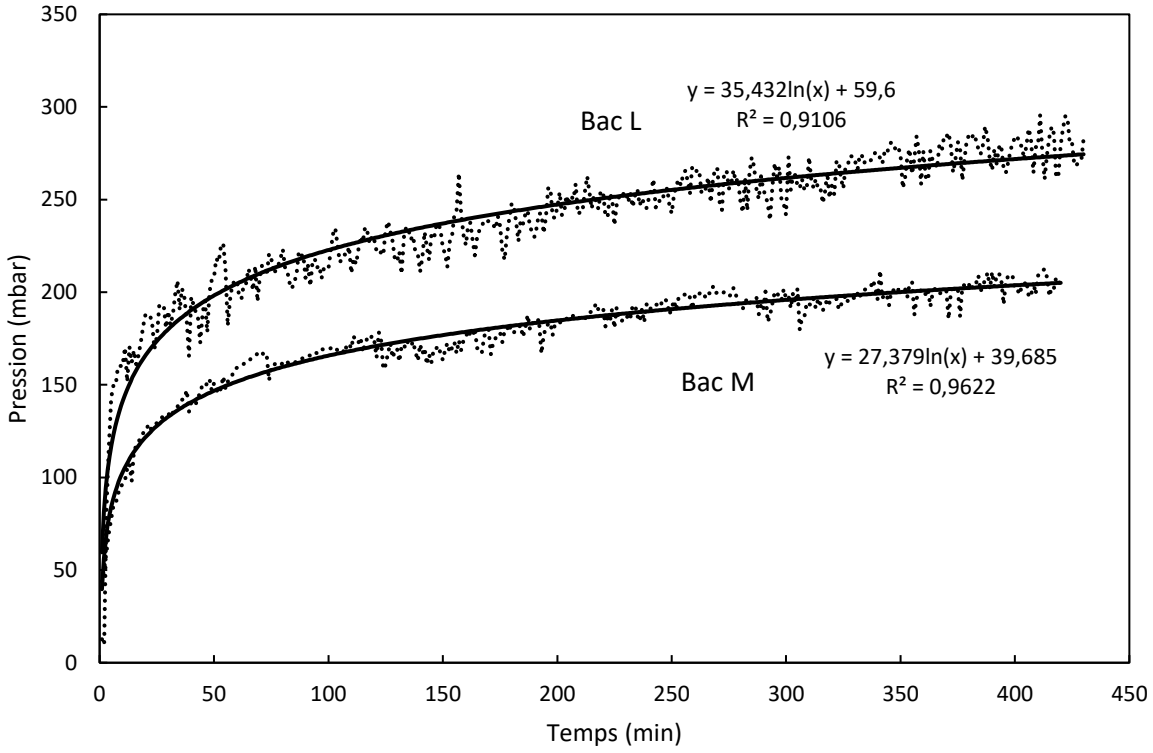


Figure 83. Evolution des pressions au début de l'injection. Courbe du haut : Bac L. Courbe du bas : Bac M.

2.4.2. Champs de pression

En Figure 84, Figure 85 et Figure 86 sont représentés les champs de pression mesurés dans le bac L après 10 h, 20 h et 29 h d'injection respectivement. Ces champs sont calculés en soustrayant la pression hydrostatique de manière à ne présenter que les variations de pression dues à l'injection de mousse et à l'écoulement latéral. L'interpolation spatiale entre les capteurs a été effectuée avec la méthode de krigeage (Davis, John C and Sampson, 1986).

Conformément à ce qui a été observé avec les pressions d'injection présentées ci-dessus, le champ de pression reste stable bien que la propagation du front se poursuive. La pression capillaire critique étant atteinte au point d'injection, qui correspond à la pression maximale du bac, le champ de pression se stabilise conformément à cette valeur. Ces champs montrent également que la pression générée par l'écoulement latéral est négligeable par rapport à la pression générée par l'écoulement de mousse. Il peut donc être extrapolé que le champ de pression n'évoluera pas dans le cas d'une injection prolongée. De la mousse faible sera générée en plus grande quantité pour compenser l'augmentation du rayon par une perte de viscosité, et ainsi garder la pression constante.

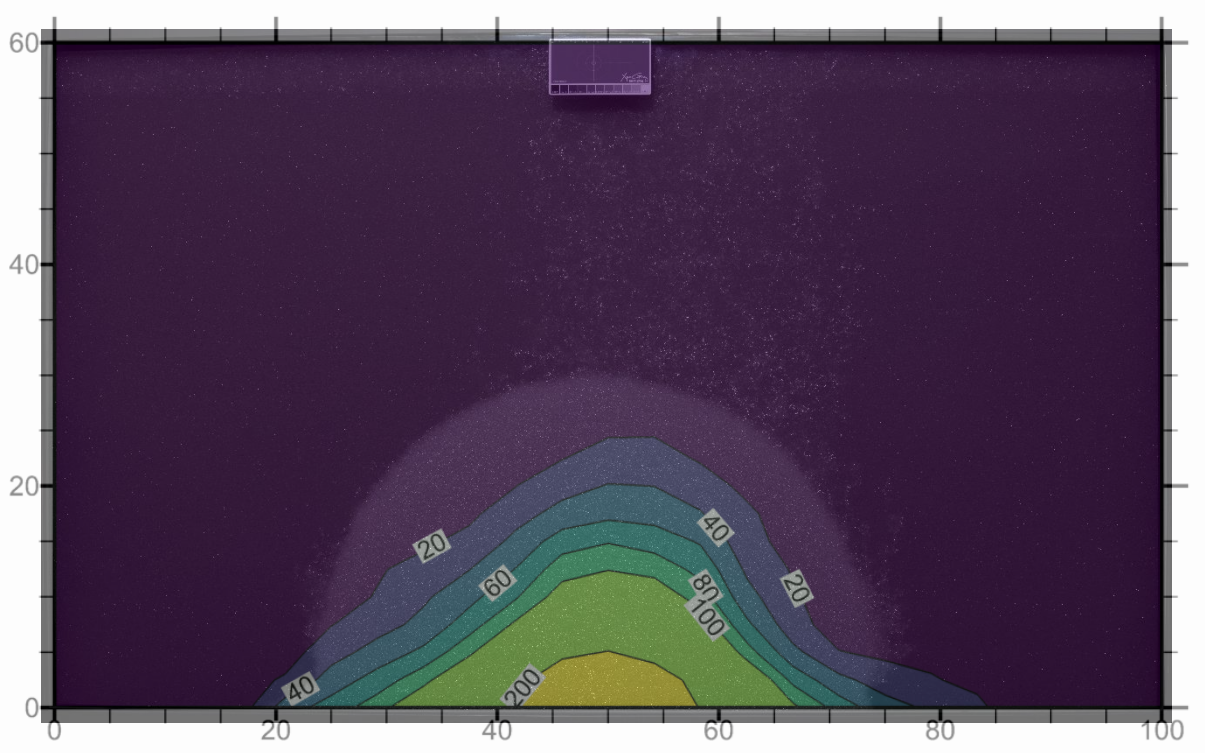


Figure 84. Champ de pression relatif dans le bac L #22. $t = 10\,h$. Les valeurs sont exprimées en mbar.

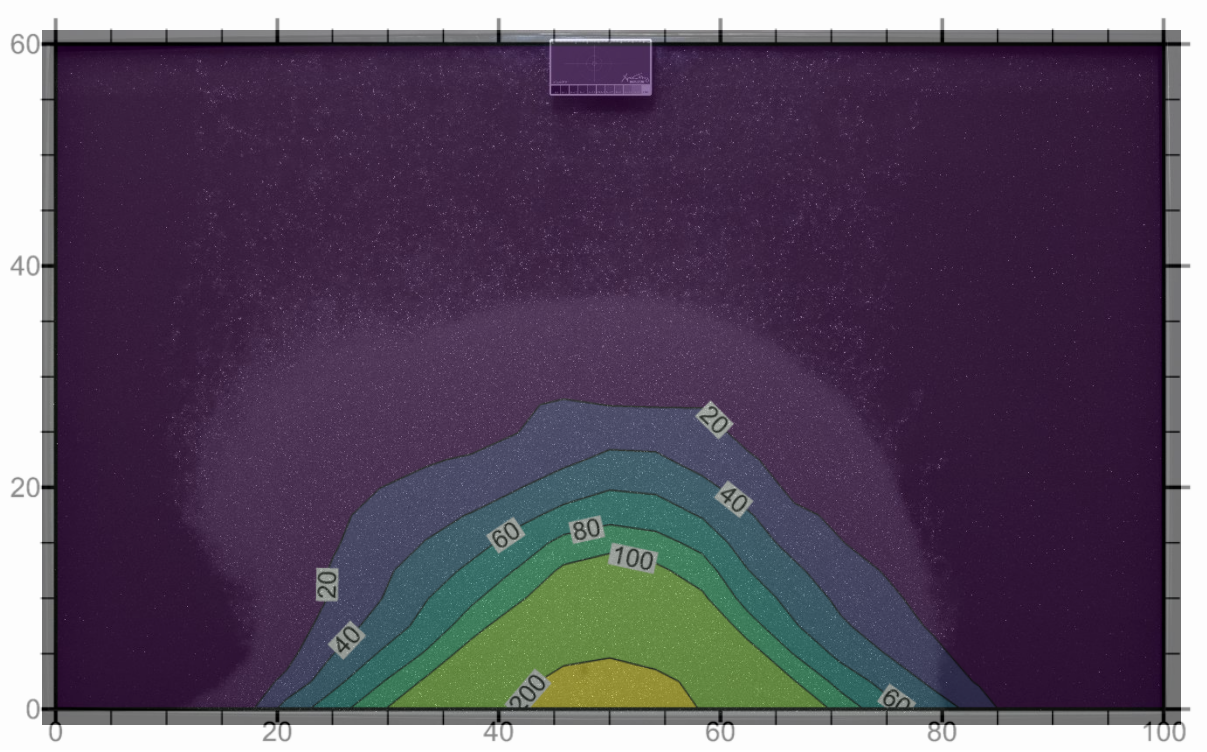


Figure 85. Champ de pression relatif dans le bac L #22. $t = 20\,h$. Les valeurs sont exprimées en mbar.

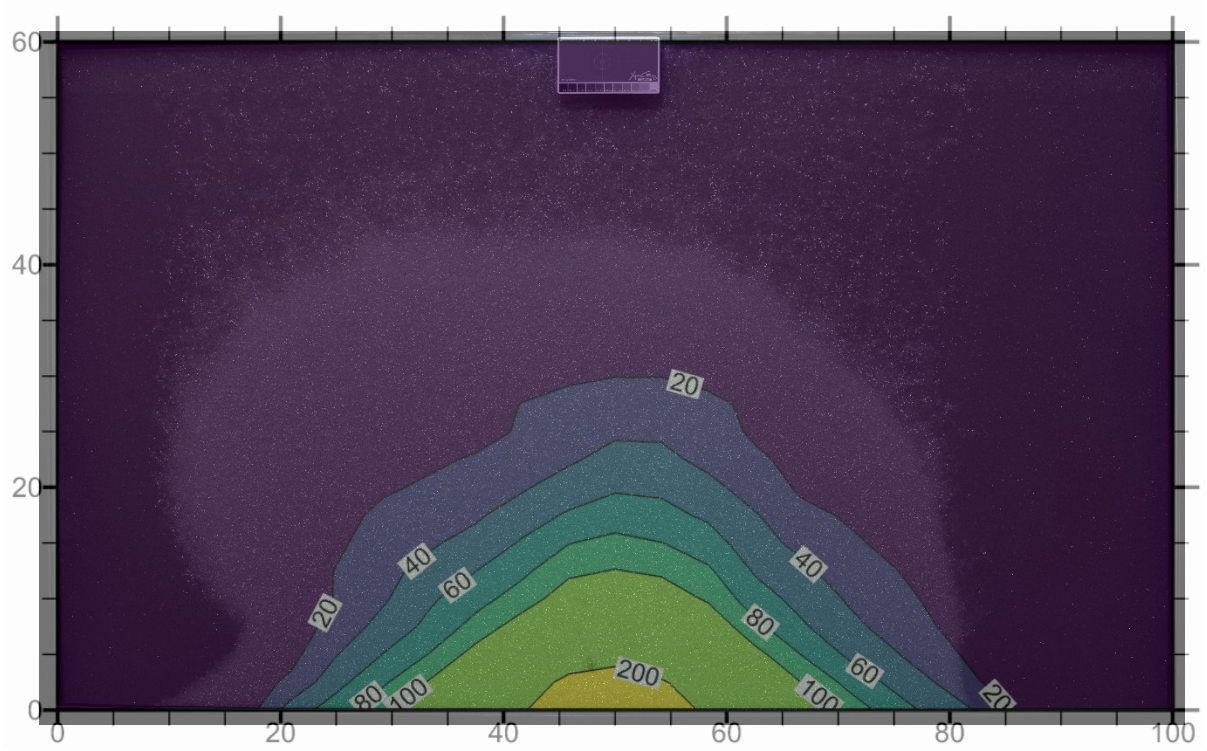


Figure 86. Champ de pression relatif dans le bac L #22. $t = 29\,h$. Les valeurs sont exprimées en mbar.

2.4.3. Champs de saturation

En Figure 87 est présentée l'évolution temporelle de la saturation en liquide sur la ligne 3 des sondes TDR du bac L. La ligne 3 se situe environ à la moitié du bac. Les valeurs supérieures à 1 et inférieures à 0 sont dues à l'incertitude des mesures. Elles doivent être considérées comme égales à 1 pour les premières, et proches de 0 pour les secondes.

Tout d'abord, il est à noter qu'une fois que la mousse atteint et remplit le rayon de mesure d'une sonde, la valeur de la saturation diminue jusqu'à atteindre une valeur proche de 0. L'incertitude de mesure étant de 0,1, il est conclu que la saturation en liquide après le passage de la mousse est comprise entre 0 et 0,1. Ces valeurs sont en parfait accord avec les mesures effectuées en colonnes (Chapitre 4) où la saturation en liquide était comprise entre 0,03 et 0,1 après écoulement de la mousse.

Ces valeurs montrent également la forme de propagation de la mousse. La sonde centrale de la ligne « (3,3) » est la première à mesurer une diminution de la saturation et à atteindre la valeur finale de la saturation en liquide. Les capteurs « (3,2) », « (3,4) » puis « (3,1) » suivront dans cet ordre. La sonde « (3,5) » n'est quasiment pas impactée par l'écoulement de mousse. Cela montre que la mousse doit avoir une forme sphérique avec une extension asymétrique sur le côté gauche.

Cela est évidemment confirmé par la photographie où l'asymétrie de la forme de la mousse due à l'écoulement latéral est directement visible.

La diminution rapide et lisse de la saturation sur la sonde « (3,3) » montre que la mousse s'écoule ici sous la forme d'une mousse forte, avec un front défini. La sonde « (3,1) » montre un comportement se rapprochant davantage d'un mélange de mousse faible et de gaz. La diminution de la saturation est plus lente et marquée par des variations soudaines. Cela est dû à l'arrivée d'un train de bulles de gaz dans la zone de la sonde qui diminue abruptement la saturation en liquide. Le front de mousse faible se propageant de manière plus diffuse que la mousse forte, la diminution de la saturation observée est lente. Néanmoins, la saturation diminue jusqu'à atteindre une valeur proche de celles mesurées pour la mousse forte. Le déplacement de l'eau par la mousse faible est donc comparable à celui effectué par la mousse forte, mais il prend davantage de temps.

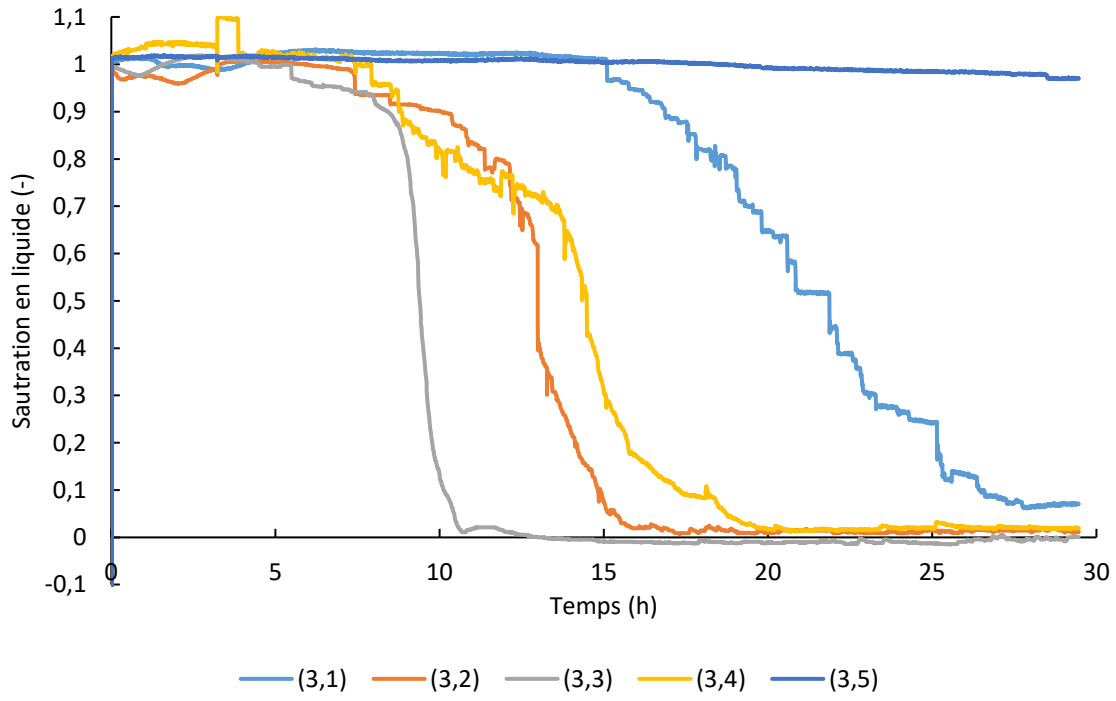


Figure 87. Evolution de la saturation en liquide en fonction du temps sur la ligne 3. Bac L #22.

En Figure 88, Figure 89 et Figure 90 sont représentés les champs de saturation pour t = 10 h, 20 h et 29 h en utilisant les données des 25 sondes. L'interpolation spatiale entre les sondes a été effectuée avec la méthode de krigeage (Davis, John C and Sampson, 1986). Ces champs sont comparés aux photographies par fondu.

L'interpolation des données sur l'ensemble du domaine spatial ne permet pas de calculer avec précision la position du front. En effet, il est impossible de connaître la position précise du front

entre deux sondes. La méthode d'interpolation par krigeage crée donc un dégradé entre les deux valeurs.

Mise à part la localisation précise du front, le réseau de sondes permet d'obtenir une image fidèle de la réalité de la propagation de la mousse. Les valeurs des saturations dans la mousse forte sont inférieures à 0,1. La saturation est également très basse dans la mousse faible avec des valeurs comprises entre 0,1 et 0,3 qui sont particulièrement visibles sur la Figure 90. Enfin, la valeur de la saturation en liquide diminue très peu dans les zones où seules des remontées de gaz libre s'écoulent, au-dessus du massif de mousse. Sur les Figure 89 et Figure 90, les valeurs sont d'environ 0,9 dans ces zones.

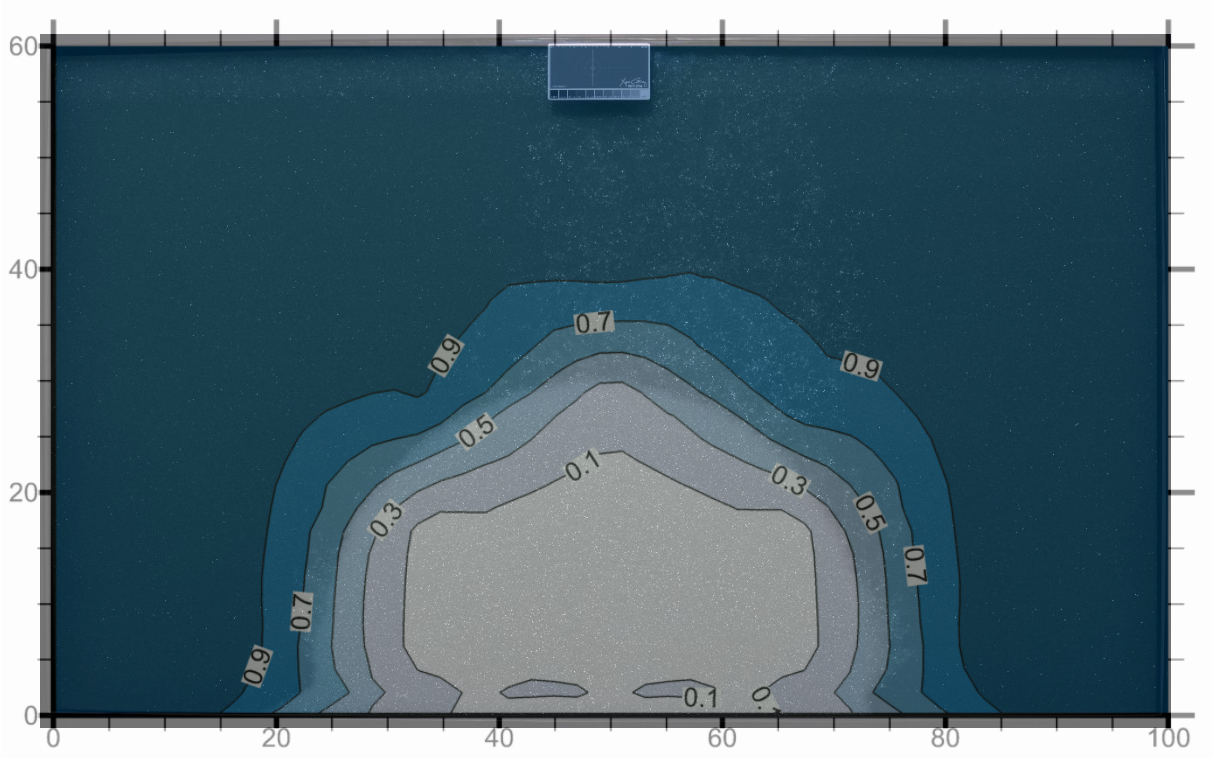


Figure 88. Champs de saturation en liquide à t=10 h. Les axes sont en cm. Bac L #22.

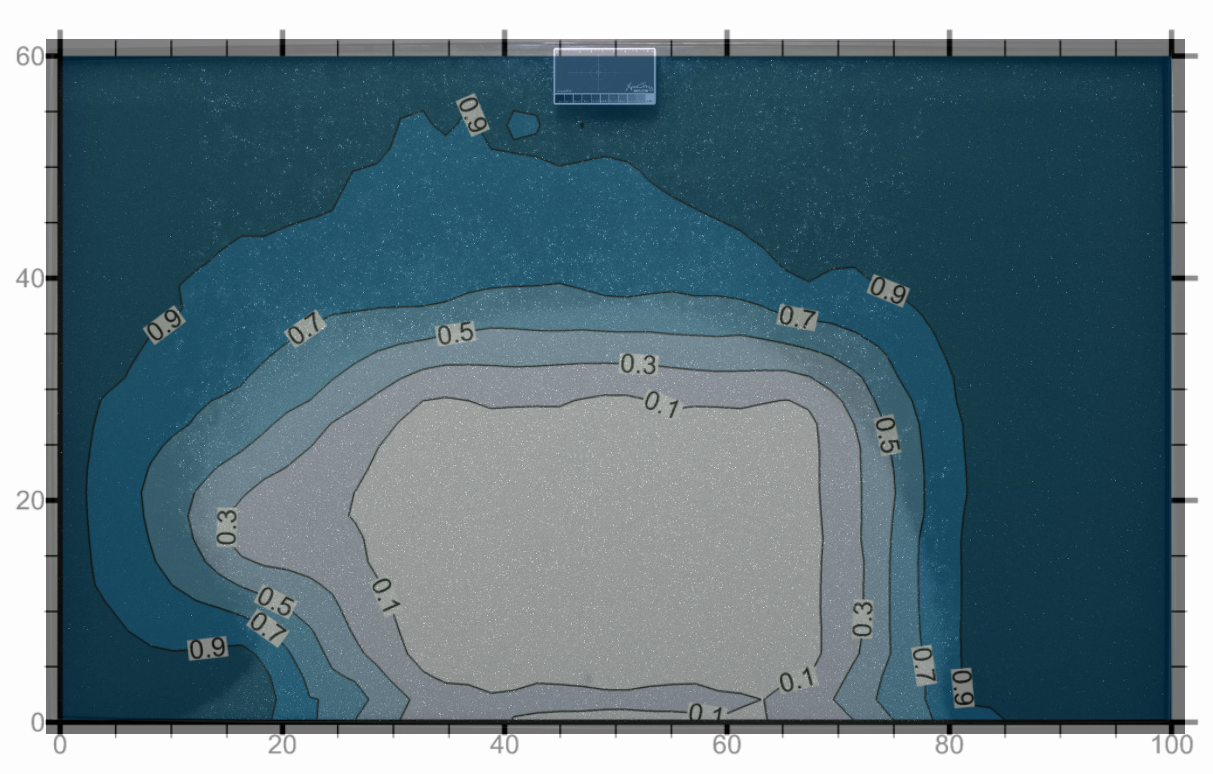


Figure 89. Champs de saturation en liquide à t=20 h. Les axes sont en cm. Bac L #22.

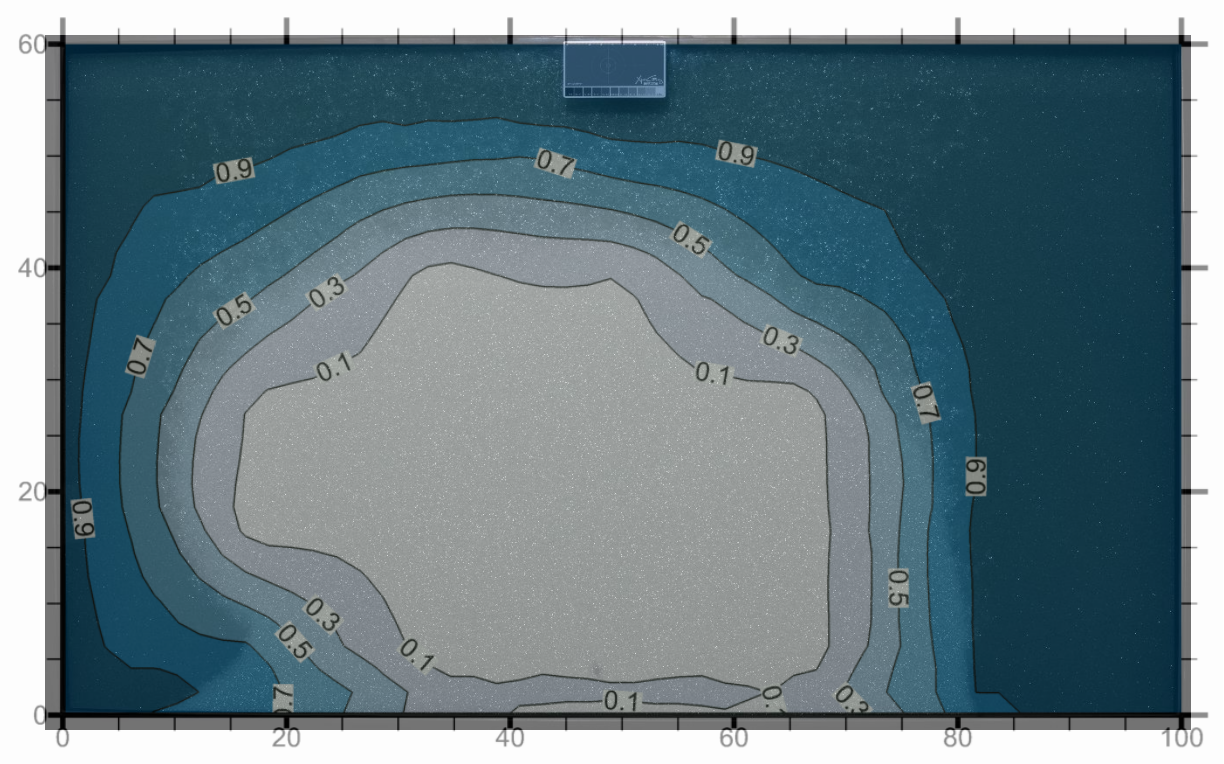


Figure 90. Champs de saturation en liquide à t=29 h. Les axes sont en cm. Bac L #22.

En Figure 91 est représentée l'évolution de la saturation au niveau de la sonde 53, située 6 cm au-dessus du point d'injection. Cette courbe montre que la saturation calculée à partir de la permittivité diminue grandement en dessous de 0, jusqu'à -2,7 environ. Cette valeur aberrante est trop faible pour être due à l'incertitude de mesure.

Il s'agit en réalité d'une modification importante de la structure du milieu poreux sous l'effet de la pression d'injection. La permittivité relative du verre étant plus élevée que celle de l'air, la permittivité correspondant à une saturation de 0 d'après la calibration prend largement en compte la valeur du verre. Il s'agit donc ici d'un déplacement des billes de verre, causé par la pression générée par l'écoulement. Les billes s'écartent au niveau du point d'injection, laissant la zone autour de la sonde constituée essentiellement d'air et non plus de verre. La permittivité mesurée est donc très faible et la saturation déduite est inférieure à 0, et donc incorrecte. Pour calculer les champs de saturation, les valeurs de saturations négatives sont remplacées par une valeur de 0. L'interprétation de ce résultat est confirmée visuellement par les photographies (voir Figure 92). Des observations visuelles similaires ont également été effectuées sur les bacs S et M.

La pression générée par l'écoulement de mousse est donc suffisante pour modifier légèrement la matrice d'un milieu poreux non-consolidé tel que des billes de verres ou plus largement des sols silico-graveleux. Il est donc primordial d'être attentif à la pression générée par l'écoulement dans le cas d'une application terrain car celui-ci pourrait provoquer des modifications de la matrice (soulèvements, fractures).

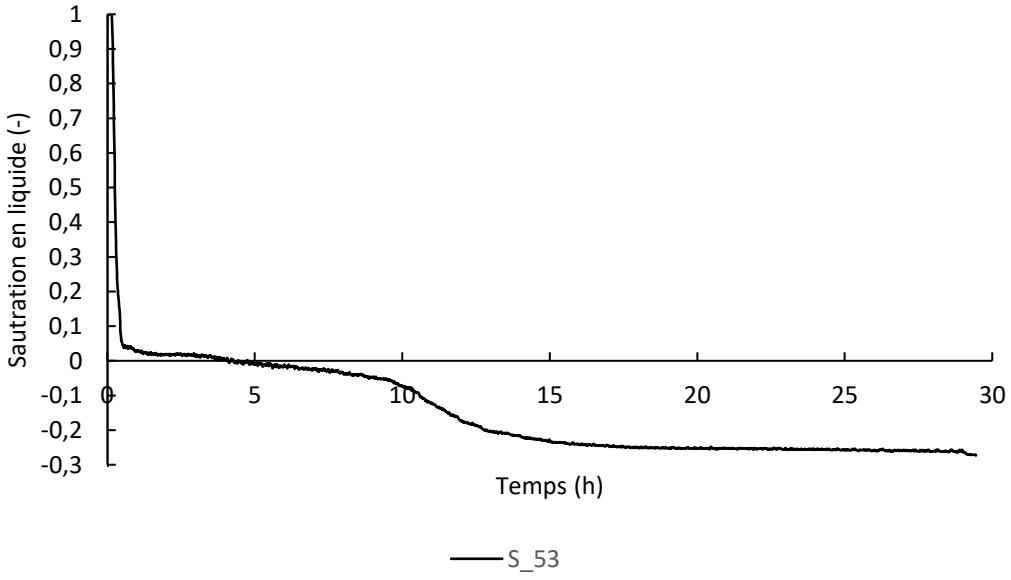


Figure 91. Evolution temporelle de la saturation en liquide au niveau de la sonde (5,3), la plus proche du point d'injection. Bac L #22.

Figure 92. Mise en évidence de la modification du milieu poreux au niveau du point d'injection. Photographie prise à la fin de l'injection (t=29 h).

2.4.3.1. Comparaison entre mesures TDR et analyse photographique

Afin de comparer les résultats obtenus par les sondes TDR et par l'analyse photographique, les saturations en liquide moyenne sur une maille carrée de 5 cm centrée sur la position de chaque sonde TDR ont été calculées par imagerie. A cause du changement d'objectif de l'appareil photo et de la taille du bac L, la valeur de I_{ref} n'était pas satisfaisante pour utiliser la calibration précédemment obtenue pour traiter ces photographies. Une nouvelle calibration a donc été effectuée sur le Bac L #22. Les paramètres issus de cette calibration sont présentés en Tableau 15.

Tableau 15. Paramètres de calibration de l'analyse par imagerie. Bac L #22.

α	-1,5434
β	2,9800
I_{ref}	19

La Figure 93 présente ces résultats pour la ligne 3 du bac L #22. Les saturations calculées à partir des sondes TDR sont représentées en trait plein et les saturations calculées à partir de l'analyse photographique sont représentées en trait pointillés avec marqueurs. Les dynamiques d'évolution de la saturation sont les mêmes avec les deux méthodes. Cependant, les valeurs calculées par imagerie sont légèrement décalées dans le temps par rapport à celles calculées par les TDR. Cela pourrait être expliqué par une plus grande sensibilité de l'imagerie aux

déplacements de gaz libre qui précèdent l'arrivée du front de mousse ou à un possible effet de bord 3D, par lequel les bulles de gaz se dirigeraient d'abord vers la vitre. Par ce biais, le gaz serait entièrement capté par l'analyse photographique alors que la sonde TDR ne capterait que peu de gaz dans sa zone d'influence.

Cette Figure 93 montre donc les limites de ces méthodes de mesures qui sont très utiles pour percevoir les variations et les dynamiques de l'évolution de la saturation, et les lier aux phénomènes physiques impliqués, mais qui restent limitées pour mesurer quantitativement avec précision ces champs de saturations.

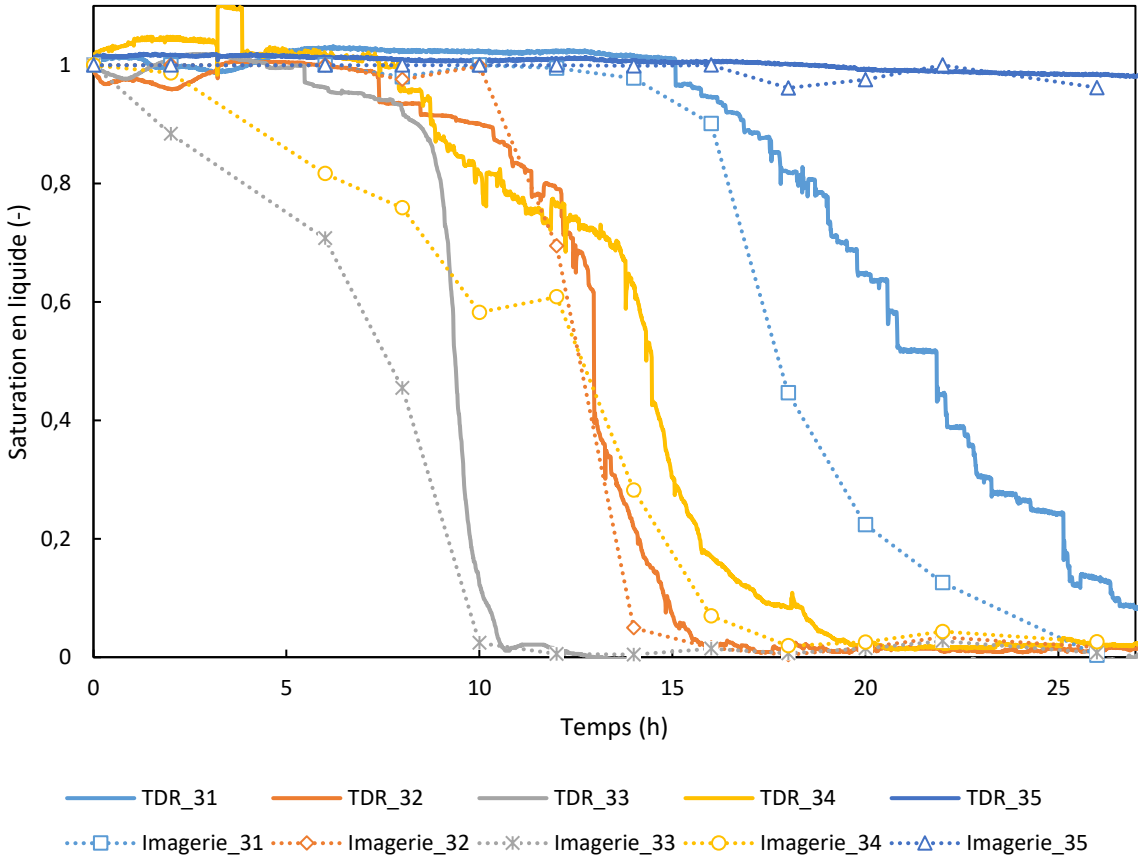


Figure 93. Estimations de la saturation en fonction du temps par les relevés de sondes TDR (traits pleins) et par l'analyse photographique (traits pointillés). Bac L#22.

En Figure 94 et Figure 95 sont représentés les champs de saturation dans leur globalité, obtenus par analyse photographique et des sondes TDR respectivement. Les mêmes couleurs sont utilisées pour représenter les mêmes gammes de saturation. Comme remarqué précédemment, les champs de saturation obtenus grâce aux sondes TDR ne permettent pas de visualiser précisément le front de mousse à cause de la quantité limitée de capteurs. L'analyse photographique permet d'identifier clairement les zones de mousse forte et les zones de mousse

faible et les transitions entre ces zones. La méthode d'analyse photographique calcule globalement des saturations en liquide plus basses, notamment dans la zone de propagation de la mousse par coalescence à gauche du bac. Cette comparaison met en lumière le fait que la saturation en liquide est légèrement plus faible sur la partie inférieure du bac, autour du point d'injection. Cette observation est valable pour les deux méthodes. Cette observation montre la présence du phénomène de drainage à ces échelles de temps et d'espace. La phase liquide s'écoule vers le bas du bac par gravité ce qui donne une mousse plus humide qu'au centre du bac.

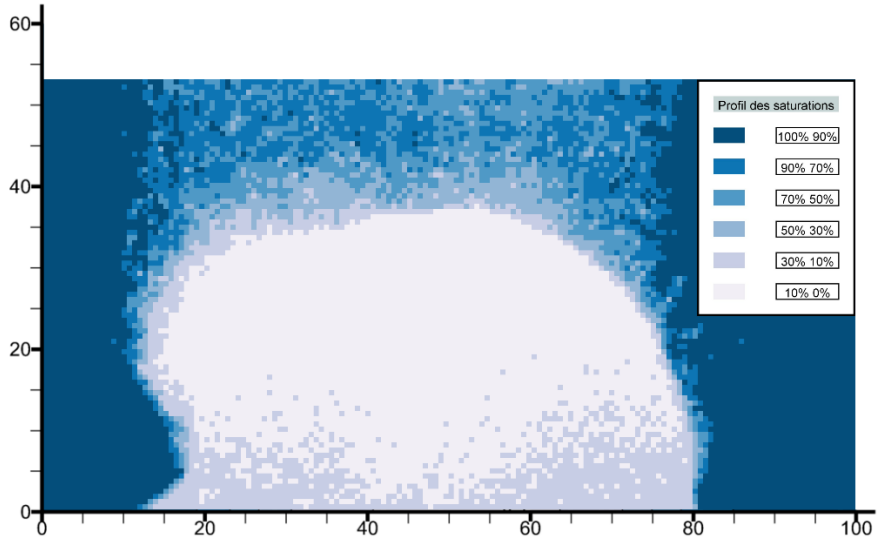


Figure 94. Champs de saturation en liquide calculé par analyse photographique à t=20 h. Les axes sont en cm. Bac L #22.

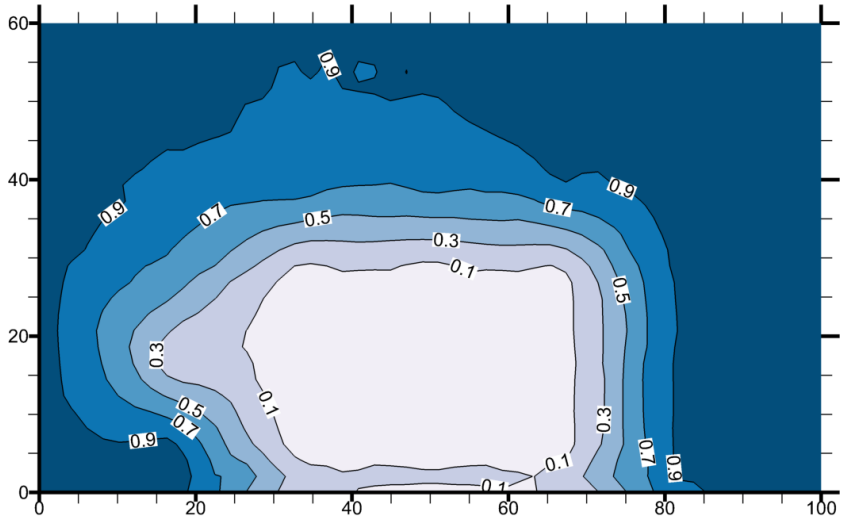


Figure 95. Champs de saturation en liquide calculé par analyse des sondes TDR à t=20 h. Les axes sont en cm. Bac L #22.

3. Influence de l'écoulement latéral

Afin d'évaluer plus précisément l'influence de l'écoulement latéral sur la propagation et la stabilité de la mousse, plusieurs séries d'expériences ont été menées pour identifier l'influence du type d'écoulement latéral et de sa vitesse. Ces résultats peuvent également être utilisés pour évaluer la pertinence de l'injection de mousse dans des situations hydrogéologiques différentes du cas principalement étudié dans ce manuscrit.

3.1. Influence du type d'écoulement

Dans cette partie sera discutée l'influence du type d'écoulement latéral sur la propagation et la stabilité de la mousse. Comme décrit en Partie 1.2.4, celui-ci peut être de 10 m/jour en circuit ouvert (cas présenté en Partie 2), de 10 m/jour en circuit fermé, ou sans écoulement latéral. Les comparaisons seront effectuées pour des expériences réalisées dans le bac S et dans le bac L.

3.1.1. Bac S

3.1.1.1. Influence sur la propagation du front

En Figure 96 est présentée l'évolution temporelle du rayon d'action pour de multiples expériences réalisées avec les trois types d'écoulement latéral étudiés. Suivant les réflexions sur la répétabilité développées en Partie 2.1.2 et en remarquant que les valeurs pour un écoulement de type « fermé » et pour un type « sans écoulement » sont encadrées par les valeurs pour un écoulement de type « ouvert », il est conclu que le type d'écoulement n'a pas d'influence sur la vitesse de propagation du front.

La mousse forte est donc suffisamment visqueuse pour s'écouler indépendamment de la présence ou non d'un écoulement latéral (dans la limite d'une vitesse apparente de 10 m/jour). Cela montre également que la dilution du tensioactif à l'interface mousse-eau n'a pas d'impact pour une injection réalisée à une concentration de 4xCMC.

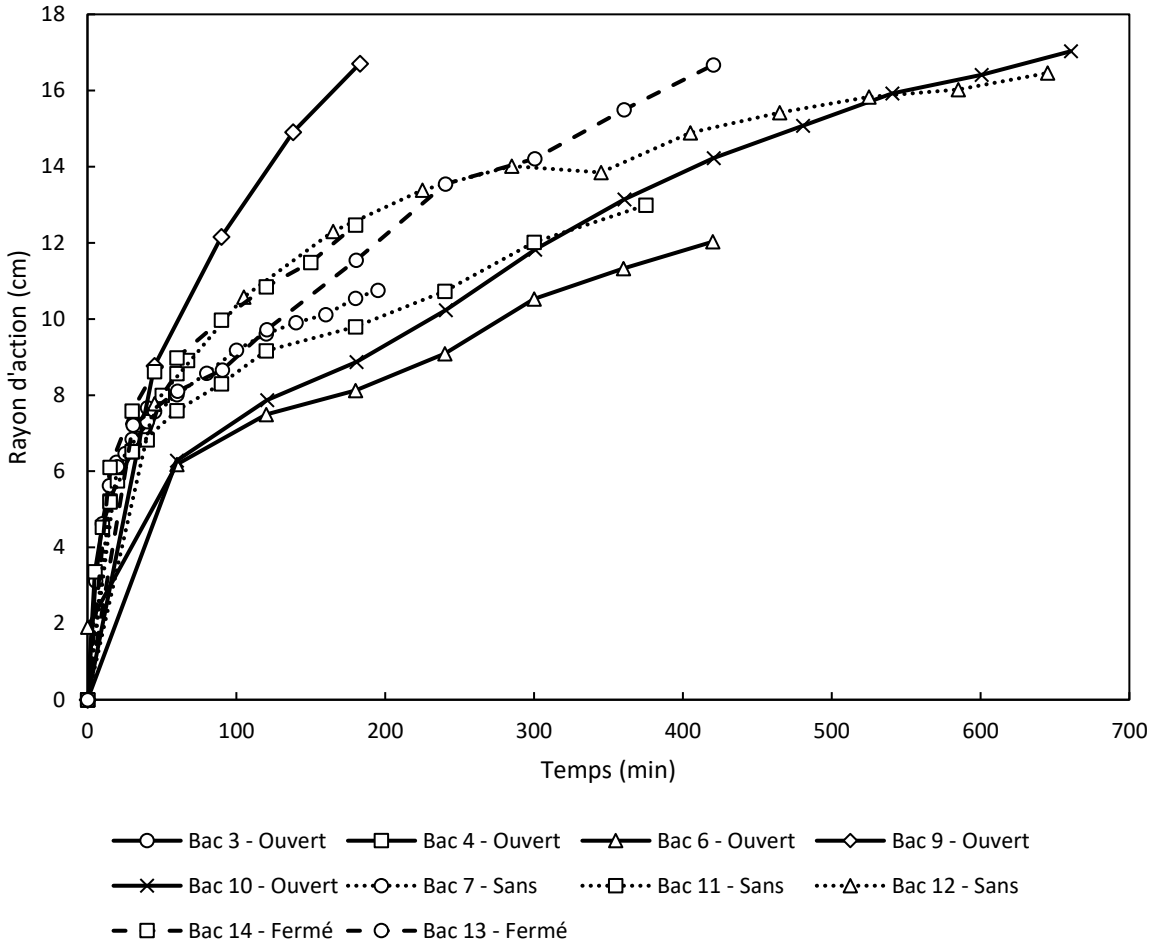
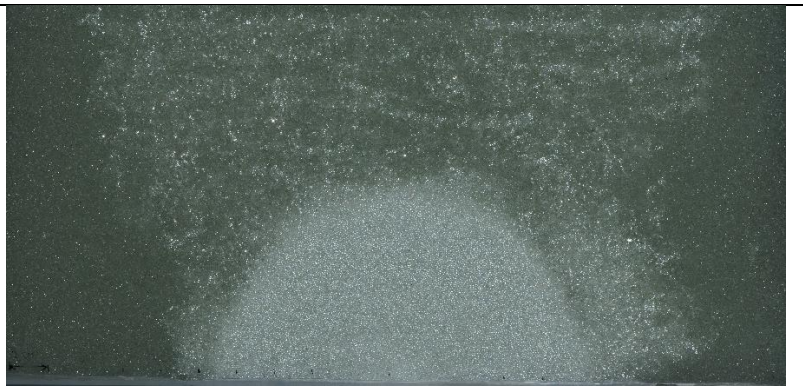


Figure 96. Evolution du rayon d'action en fonction du temps pour des expériences réalisées dans le bac S avec un type d'écoulement latéral différent.

De plus, le Tableau 16 montre une comparaison des motifs de mousse faible lors des trois types d'écoulement. Ces types de motifs sont observés systématiquement pour chacune des répétitions effectuées dans les mêmes conditions. Les photographies présentées au Tableau 16 ont été prises à des volumes de gaz piégé égaux pour chaque expérience.

Pour un écoulement ouvert ou fermé, la mousse faible est générée principalement sur le flanc droit de la mousse forte, conformément aux interprétations formulées en Partie 2.1.3.3. L'écoulement latéral provoque une asymétrie du motif. En écoulement fermé, le réapprovisionnement en tensioactif dans l'écoulement latéral permet de mieux stabiliser les échappements de gaz libre, provoquant une augmentation de la présence de gaz et de mousse faible dans le bac. Pour les expériences effectuées sans écoulement latéral, un motif plus symétrique est observé avec une coalescence sur les flancs gauche et droit de la mousse forte. Le sommet de la mousse forte n'est pas une zone de coalescence à cause de la force de gravité s'exerçant dans la même direction que l'écoulement de mousse, réduisant la pression capillaire.

Tableau 16. Comparaison des motifs de mousse faible (de haut en bas, Bac S #10, Bac S #14, Bac S #7). Photographies prises à volume de gaz piégé égal.

Ecoulement ouvert	
Ecoulement fermé	
Sans écoulement	

3.1.1.2. Influence sur la stabilité

Afin d'étudier l'influence du type d'écoulement latéral sur la stabilité de la mousse, les injections ont été stoppées à un temps correspondant à une même masse mesurée en sortie du bac, c'est-à-dire à la même quantité de gaz dans le bac. Après l'arrêt de l'injection de mousse, l'écoulement latéral a été poursuivi à la même vitesse que lors de l'injection. Le Tableau 17 présente les photographies prises pendant la phase de stabilité. Le temps est relatif à la fin de l'injection.

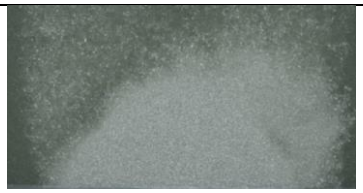
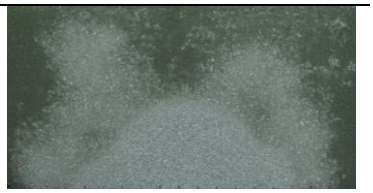
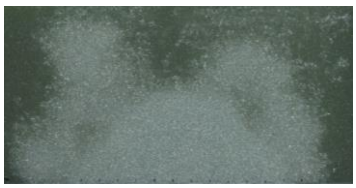
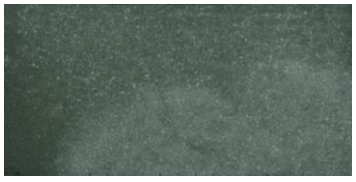
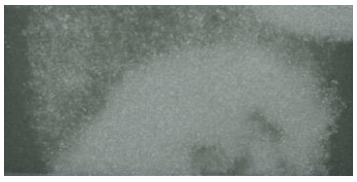
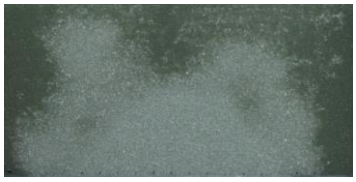
Avec un écoulement de type « ouvert », la mousse forte est rapidement détruite, comme décrit en Partie 2.3. En revanche, la destruction de la mousse est bien plus limitée dans le cas d'un écoulement de type « fermé ». Pour une expérience sans écoulement, il est observé uniquement

une légère « diffusion » du gaz, fondant les contours du massif de mousse forte. Aucune destruction n'est observable.

L'absence de destruction de mousse pour une expérience sans écoulement latéral montre que c'est celui-ci qui est responsable des phénomènes de coalescence et donc de la destruction de la mousse forte. Les expériences avec un écoulement latéral de type « ouvert » et « fermé » ont été effectuées avec la même vitesse d'écoulement latéral et présentent donc les mêmes contraintes visqueuses sur la mousse forte. Le fait que la destruction de la mousse soit fortement réduite pour un écoulement fermé prouve que les interactions visqueuses dues à l'écoulement jouent un rôle très limité dans la destruction de la mousse. Le principal intérêt d'utiliser un écoulement de type « fermé » est de réalimenter en tensioactif l'eau s'écoulant latéralement. La différence observée est donc due à la présence de tensioactif dans l'écoulement latéral.

Il est donc conclu que c'est le phénomène d'advection-diffusion du tensioactif qui domine la dynamique de coalescence de la mousse forte.

Tableau 17. Influence du type d'écoulement sur les motifs de mousse durant la phase de stabilité. Temps après la fin de l'injection.

Temps	Ouvert	Fermé	Sans écoulement
0 h			
24 h			
48 h			
72 h			

3.1.2. Bac L

3.1.2.1. Influence sur la propagation du front

En Figure 97 sont présentées les mesures de l'évolution du rayon d'action pour des expériences avec ou sans écoulement latéral dans le bac L. Bien que la première partie du graphe ($t <$ 600 min) confirme les conclusions effectuées en Partie 3.1.1.1 sur le bac S (pas de différence entre une injection avec ou sans écoulement latéral), la seconde partie du graphe permet de mettre en évidence un comportement unique. Pour la circularité et le rapport de forme, les trois expériences présentent des valeurs et des évolutions très similaires, montrant que la présence de l'écoulement n'influe pas sur la forme globale de la mousse forte (voir Figure 99 et Figure 100).

Autour de 600 min, le rayon d'action de la mousse forte pour les injections sans écoulement latéral se stabilise à une valeur limite de 26 cm en moyenne. Après 600 minutes, l'intégralité de la mousse se propage sous la forme d'une mousse faible avec des échappements de gaz libre (voir Figure 98).

Il est conclu que le champ de pression généré par l'écoulement latéral maintient la pression capillaire inférieure à la pression capillaire critique, permettant à la mousse de continuer sa propagation sous la forme d'une mousse forte. Ce phénomène n'est identifiable que dans le bac L, de grandes dimensions, car il est nécessaire d'atteindre un rayon d'action élevé (ici 26 cm) pour que la pression capillaire atteigne la pression capillaire critique.

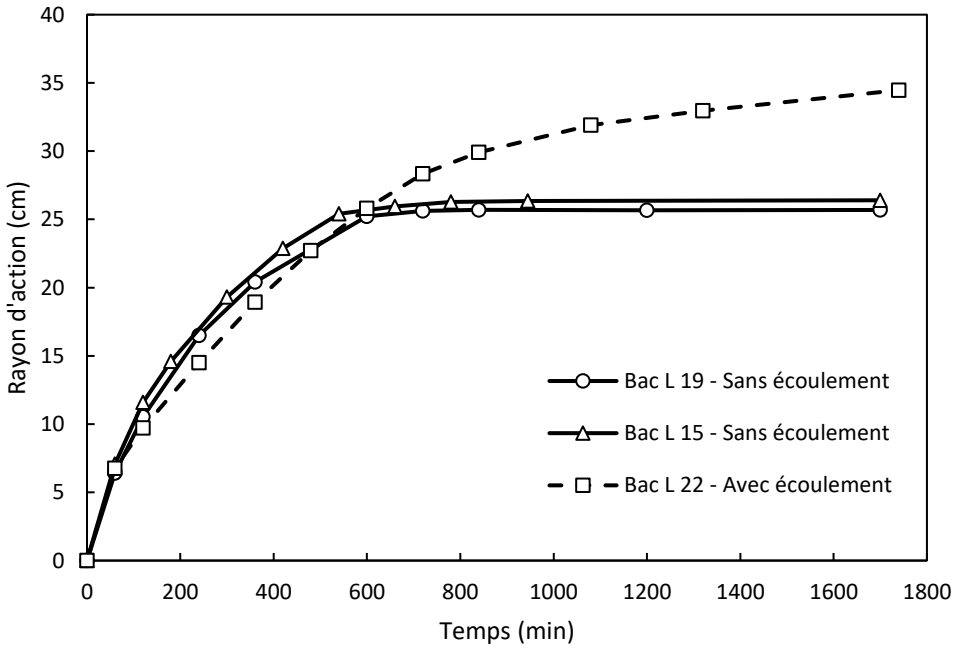


Figure 97. Evolution du rayon d'action avec le temps pour les expériences en bac L.

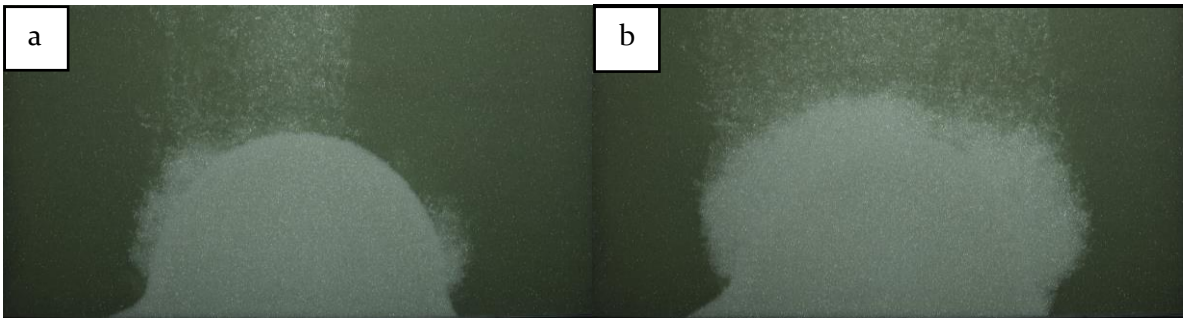


Figure 98. Evolution du motif de mousse pour le bac L sans écoulement #15.
a) t = 660 min. b) t = 1245 min.

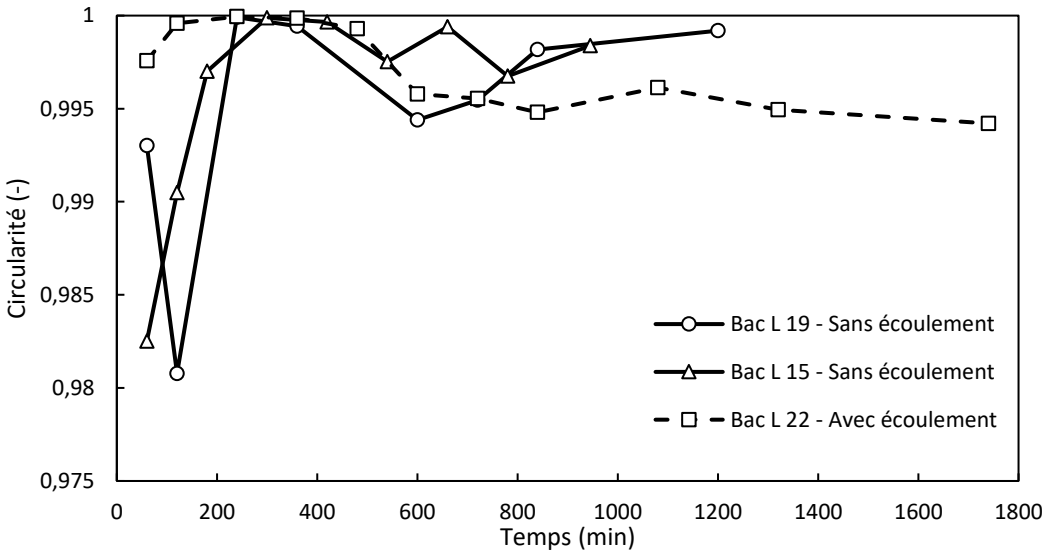


Figure 99. Evolution de la circularité avec le temps pour les expériences en bac L.

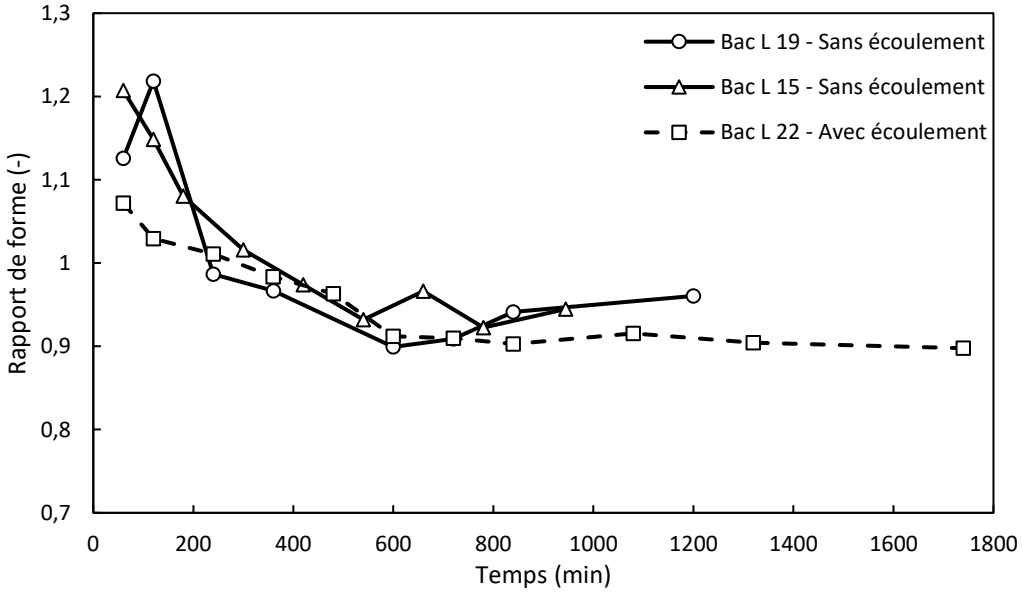


Figure 100. Evolution du rapport de forme avec le temps pour les expériences en bac L.

3.2. Influence de la vitesse de l'écoulement

Des expériences ont été menées dans le bac M pour évaluer l'influence de la vitesse de l'écoulement latéral. Pour cela, quatre expériences ont été menées avec des vitesses d'écoulement latéral de 5, 7,5 et 10 m/jour ainsi qu'une expérience sans aucun écoulement latéral. Les résultats de ces expériences sont présentés ci-dessous.

3.2.1. Influence sur la propagation du front

En Figure 101, Figure 102 et Figure 103 sont présentés les résultats concernant respectivement le rayon d'action, la circularité et du rapport de forme. En considérant l'incertitude de répétabilité, ces mesures montrent l'absence d'influence de la vitesse de l'écoulement latéral tant sur la propagation du front que sur la forme de la mousse forte.

Ces résultats confirment à nouveau les conclusions présentées en Partie 3.1.1.1. La viscosité de la mousse forte lui permet de s'affranchir totalement des forces générées par l'écoulement latéral. Du point de vue de la dilution du tensioactif, celle-ci n'a pas non plus d'influence sur la phase de propagation grâce à la concentration en tensioactif supérieure à la CMC et au réapprovisionnement en tensioactif par l'injection constant de mousse.

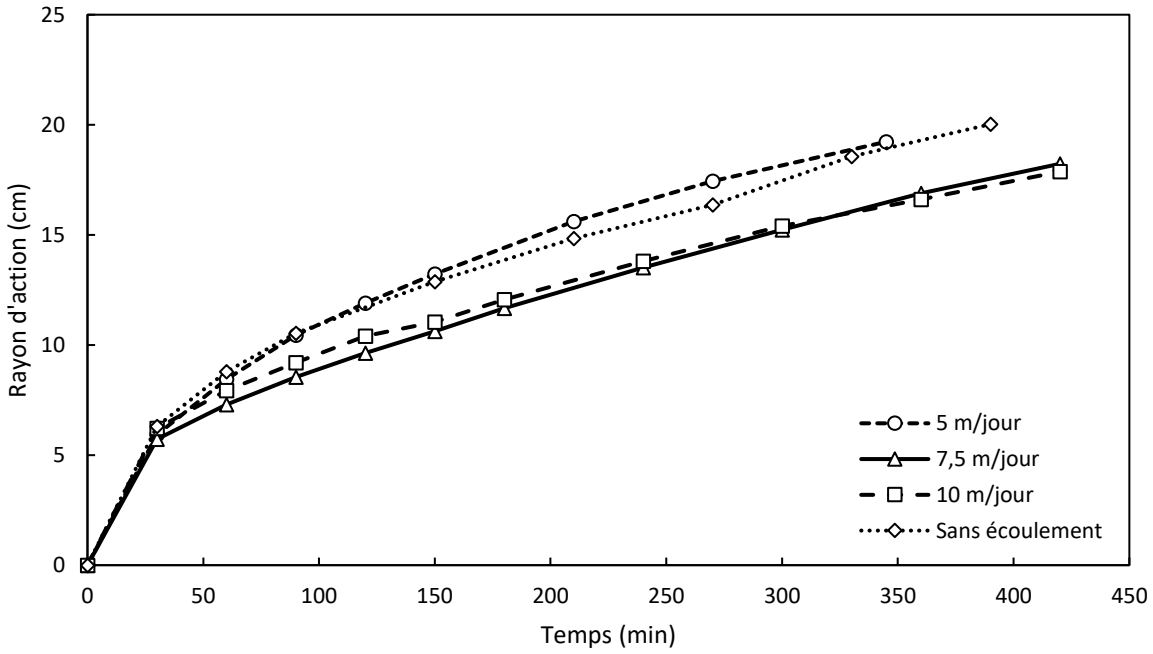


Figure 101. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle du rayon d'action.

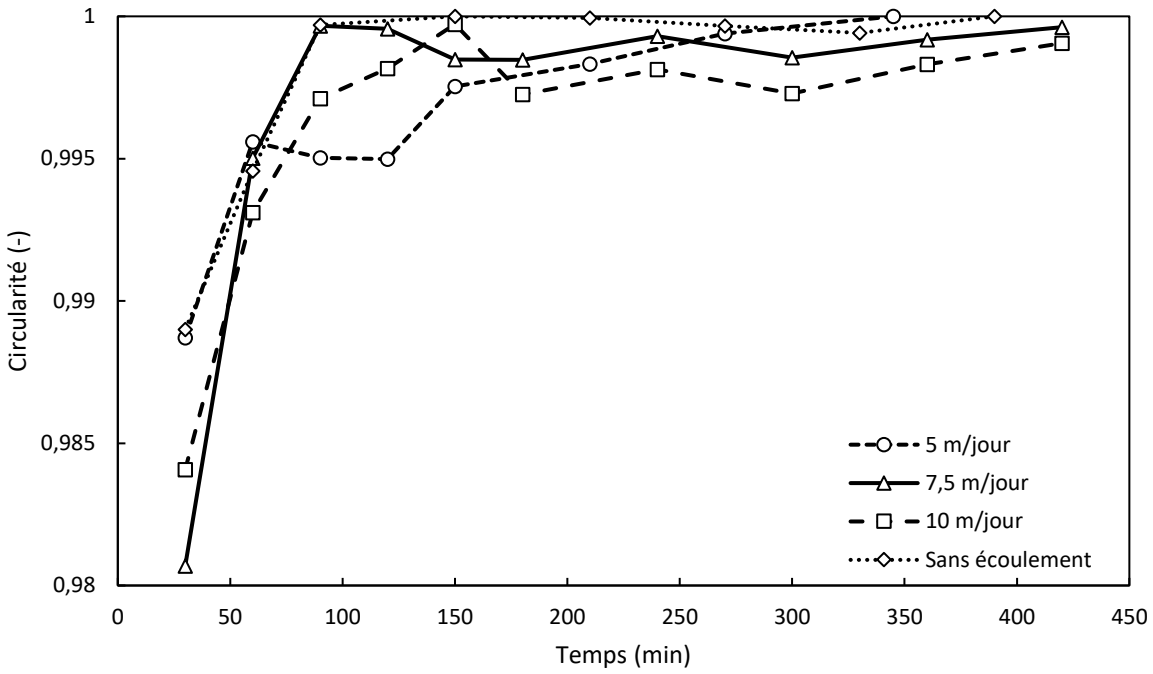


Figure 102. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle de la circularité.

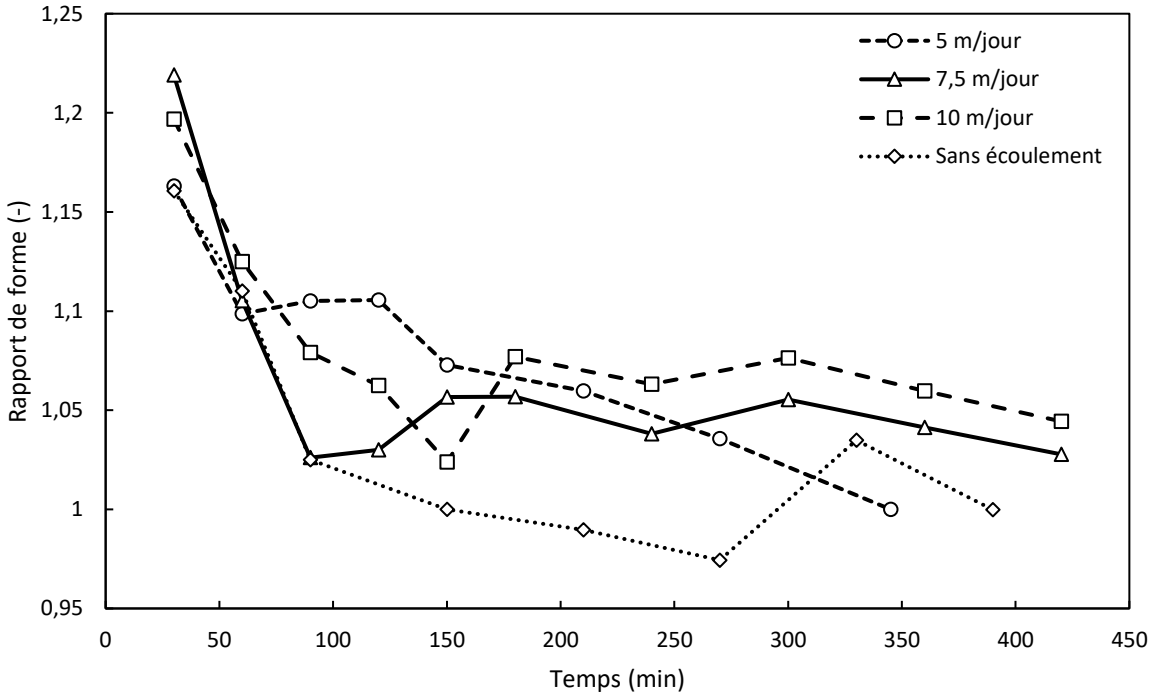


Figure 103. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle du rapport de forme.

3.2.2. Transport du tensioactif dû à l'écoulement latéral

En Figure 104 sont présentés les résultats des mesures de masse de carbone organique réalisées avec un analyseur de carbone organique total (COT) dans la cavité « sortie ». Ces mesures représentent la quantité de tensioactif diluée et déplacée par l'écoulement latéral, ce qui correspondrait à d'éventuels rejets dans la nappe souterraine. Une valeur inférieure à 8,68 mg.L^{-1} est inférieure à la limite de quantification et doit donc être interprétée par rapport à cette limite.

Le Rhodacal® LSS-40/AX, tensioactif industriel utilisé, est composé de 38,8 % de C14-16 Alpha Olefin Sulfonate (AOS) et d'eau. Les formules chimiques des molécules actives composant ce tensioactif sont donc $C_nH_{2n-1}SO_3Na$ avec n=14,16. Pour une molécule à 14 carbones, 56,35 % de la masse provient des atomes de carbones. Pour une molécule à 16 carbones, 58,86 %. Pour analyser les résultats, la moyenne de ces deux valeurs a été considérée : 57,61 %.

Les courbes montrent une augmentation de la concentration en tensioactif au cours de l'injection, avec un pic au moment de l'arrêt de l'injection. Les valeurs diminuent ensuite rapidement sous le seuil de détection. Bien que ces mesures aient été obtenues avec trois vitesses d'écoulement latéral différentes, la valeur maximale mesurée est toujours similaire : environ 48 mg.L^{-1}. Comme montré en Partie 3.2.1, le rayon d'action, et donc la surface d'échange est similaire pour toutes les expériences. L'indépendance des résultats à la vitesse de l'écoulement latéral prouve que l'advection du tensioactif est dominante sur sa diffusion.

Ces mesures de concentration permettent de calculer le débit massique de tensioactif en sortie :

$$\dot{m} = cQ_{lat} \qquad (78)$$

Avec $\dot{m}$ le débit massique (kg.s^{-1}), c la concentration (kg.m^{-3}) et Q_{lat} le débit de l'écoulement latéral (m^3.s^{-1}). En considérant la concentration maximale et le débit correspondant à un écoulement apparent de 10 m/jour, la valeur du débit massique maximum calculé est $\dot{m}_{max} = 91\, mg.h^{-1}$. Le débit massique de tensioactif injecté sous forme de mousse est de $\dot{m}_{in} = 10 \times 10^{1}\, mg.h^{-1}$.

La quantité de tensioactif injectée est donc suffisante pour compenser la perte due à l'écoulement latéral au maximum de l'injection. Ces valeurs sont en revanche très proches et il est donc possible qu'une injection prolongée et/ou qu'une vitesse latérale supérieure puisse appauvrir l'interface mousse/eau en tensioactif et ainsi modifier la dynamique d'évolution du front de mousse.

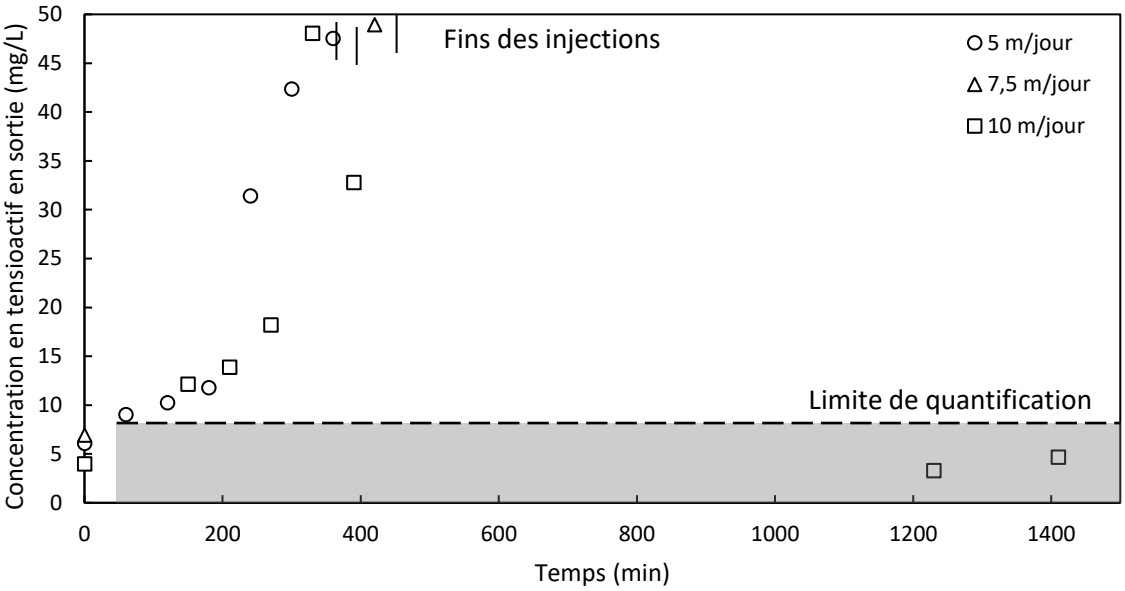


Figure 104. Evolution de la concentration en tensioactif dans la cavité « sortie », en aval de l'écoulement latéral.

3.2.3. Influence de la vitesse sur la stabilité de la mousse

Afin d'étudier l'influence de la vitesse de l'écoulement latéral sur la stabilité de la mousse, les injections ont été stoppées à la même masse mesurée en sortie du bac, c'est-à-dire à la même quantité de gaz dans le bac. Après l'arrêt de l'injection de mousse, l'écoulement latéral a été poursuivi à la même vitesse que lors de l'injection.

En Annexe G sont présentées les photographies des bacs en fonction du temps écoulé depuis l'arrêt de leurs injections respectives. Il est clairement visible que la vitesse de l'écoulement a un impact important sur la stabilité de la mousse forte. Plus la vitesse d'écoulement est important, plus la destruction de la mousse forte est rapide. Ces observations confortent l'hypothèse d'une destruction principalement contrôlée par la dilution du tensioactif par l'écoulement latéral.

Les volumes de gaz dans le bac pour chacune des expériences ont été mesurés par la technique d'imagerie. Les résultats de ces analyses sont présentés en Figure 105. Les volumes de gaz initiaux étant légèrement différents, les volumes sont présentés sous la forme de volume de gaz relatif égal au rapport entre le volume de gaz à l'instant t et le volume de gaz mesuré à la fin de l'injection. Les valeurs supérieures à 1 correspondent à un défaut de calcul de l'algorithme lorsque le gaz se diffuse dans le bac. Pour l'expérience à 10 m/jour, le volume de gaz restant dans le bac à l'état final est assez élevé en comparaison des autres expériences. Néanmoins, la pertinence de ce graphe réside dans la phase de destruction et non dans la valeur du volume de gaz à l'état final.

Les résultats montrent que la vitesse de l'écoulement influe principalement sur le temps avant que le volume de gaz commence à diminuer. Il n'y a pas de différence significative de vitesse de destruction entre les expériences une fois ce délai atteint. Ce délai pourrait correspondre au temps nécessaire pour faire diminuer la concentration en tensioactif en dessous de la CMC par un phénomène d'advection-diffusion. Le flux de masse advectif étant proportionnel à la vitesse de l'écoulement, celui-ci accélère la perte de tensioactif et la coalescence est initiée plus rapidement. Quand la concentration en tensioactif diminue, la mousse forte coalesce en commençant par les zones les moins riches en tensioactif, c'est-à-dire l'interface mousse/eau et en particulier le flanc du côté amont de l'écoulement latéral. Le délai avant le début de la destruction en fonction de la vitesse de l'écoulement est tracé en Figure 106.

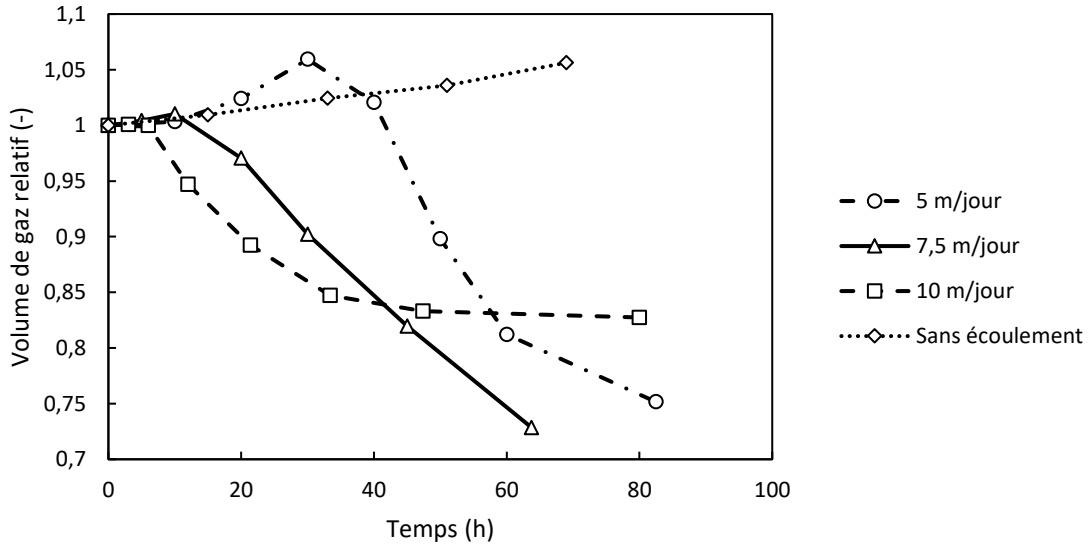


Figure 105. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle du volume de gaz relatif après la fin de l'injection.

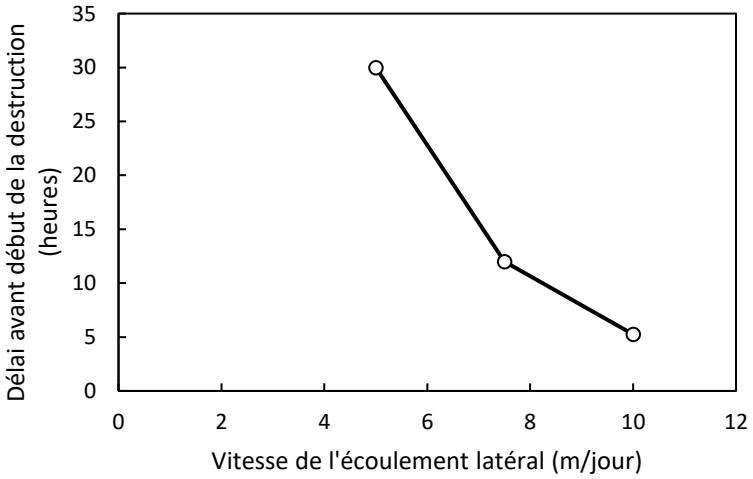


Figure 106. Délai avant le début de la destruction du mousse en fonction de la vitesse de l'écoulement.

4. Conclusions intermédiaires

Au cours de ce chapitre, l'écoulement de mousse en milieu poreux de forte perméabilité a été étudié expérimentalement dans des milieux poreux aux échelles décimétriques et métriques. Les interprétations des résultats ont été effectuées en supposant des écoulements à deux dimensions à l'échelle de Darcy, l'épaisseur du milieu poreux étant faible par rapport à sa hauteur. Les résultats ont été obtenus par mesure de la masse d'eau déplacée par la mousse, analyse photographique, et mesure de la pression. Sur le bac de taille L, 25 sondes TDR et 25 capteurs de pression permettent également de calculer les champs de saturation en liquide et les champs de pression dans le bac.

Une technique d'analyse par imagerie a été mise au point pour calculer la saturation en liquide dans le milieu à partir des intensités lumineuses mesurées par photographie. Cette technique permet d'obtenir une représentation globale des niveaux de saturations dans le bac, de comparer des expériences entre elles et d'observer les dynamiques d'évolution de la saturation. Cette technique rencontre cependant des limites dans le calcul précis des valeurs de saturation locales et est sensible aux éventuels effets de bords.

Les expériences menées ont permis d'étudier le comportement de la mousse lorsque celle-ci s'écoule dans un milieu en présence d'un écoulement d'eau, de façon semblable à l'injection de mousse dans une nappe souterraine. L'influence de cet écoulement et de sa vitesse sur la propagation et la stabilité de la mousse a été étudiée en détails.

Il a été montré que la présence ou non dans un écoulement latéral dans le bac, quelle que soit sa vitesse, avait peu d'influence sur la vitesse de propagation du front de mousse. Cependant, cette propagation dépend fortement des conditions expérimentales et est peu répétable expérimentalement.

La forme de la zone occupée par la mousse lors de sa propagation peut être divisée en deux parties. Un écoulement de mousse forte, d'une couleur très blanche, se propageant sous la forme d'une demi-ellipse quasi-circulaire ; et un écoulement de mousse faible et de gaz libre apparaissant sur les flancs de la mousse forte, où la pression capillaire est la plus élevée. La forme quasi-circulaire de la mousse forte montre la viscosité de celle-ci et la domination des effets visqueux sur les effets gravitaires. La mousse faible s'écoule en revanche vers le haut du bac, témoignant ainsi d'une plus faible viscosité. L'écoulement latéral crée une asymétrie du motif de mousse faible en inhibant la coalescence sur le flanc amont de la mousse forte.

La pression nécessaire pour assurer l'écoulement de mousse se stabilise lors de la propagation de la mousse. Cette situation correspond à un équilibre entre l'injection d'une mousse prégénérée et sa destruction au niveau du front de propagation qui stabilise la pression d'injection.

Des tests de traçage ont permis de montrer que la totalité de l'écoulement latéral était détourné par la mousse forte lors de l'injection. La mousse présente donc les propriétés bloquantes recherchées grâce à sa forte viscosité.

Les phases post-injection, au cours desquelles l'injection de mousse est arrêtée tout en continuant de générer un écoulement latéral, ont montré que la totalité de la mousse forte est détruite en quelques dizaines d'heures. Une vitesse d'écoulement latéral faible permet de retarder le début de la coalescence de la mousse. Les observations croisées lors de l'étude de l'influence du type d'écoulement latéral et de sa vitesse ont permis de démontrer que la coalescence était principalement contrôlée par le phénomène d'advection-diffusion du tensioactif. Lorsque la concentration en tensioactif diminue en dessous de la CMC, la mousse forte commence à coalescer.

Lors de la destruction de la mousse forte, la viscosité de celle-ci diminue mais la saturation en gaz dans le milieu poreux reste très élevée. La destruction génère même des échappements de gaz libre vers le haut du bac qui permettent d'augmenter la saturation en gaz dans la zone au-dessus de la mousse forte. Après destruction, cette saturation en gaz élevée et plus homogène qu'auparavant permet de diminuer encore davantage la mobilité de l'eau le milieu poreux. La mousse a donc un double effet bloquant : le premier est un blocage « strict » causé par la viscosité de la mousse forte ; le second est un blocage « relatif » causé par la forte saturation en gaz dans le milieu poreux. Le gaz reste piégé dans le milieu poreux et ralentit les écoulements si ceux-ci sont générés par une charge constante comme c'est le cas pour les écoulements souterrains.

Chapitre 6

Modélisation numérique

Une fois tous les résultats expérimentaux acquis, il est maintenant nécessaire de développer un modèle numérique afin de vérifier les interprétations théoriques formulées dans les chapitres précédents. Ce modèle sera basé sur ces observations expérimentales auquel il donnera un cadre formel. Les objectifs d'un tel modèle numérique est, d'une part d'identifier les phénomènes physiques dominants par confrontation aux résultats expérimentaux, et d'autre part de valider et généraliser un modèle pouvant ensuite être utilisé à grande échelle.

1. Modélisation des écoulements diphasiques en milieu poreux

1.1. Equations de base

Afin de modéliser des écoulements diphasiques en milieux poreux, il est utile de reformuler les équations les décrivant afin que celles-ci puissent être résolues facilement numériquement. Ces équations ont été présentées au Chapitre 2 et sont rappelées ci-dessous.

Loi de darcy diphasique :

$$\boldsymbol{q_i} = -\frac{\kappa_{int} k_{r,i}}{\mu_i}(\boldsymbol{\nabla} p_i - \rho_i \boldsymbol{g}) \quad (79)$$

Avec $\boldsymbol{q_i}$ la vitesse de Darcy de la phase i (m.s^{-1}), κ_{int} la perméabilité intrinsèque du sol (m^2), $k_{r,i}$ la perméabilité relative de la phase i (-), μ_i la viscosité dynamique (Pa.s), p_i la pression (Pa), ρ_i la densité (kg.m^{-3}) et $\boldsymbol{g}$ l'accélération de la gravité (m.s^{-2}). $i = w$ pour la phase mouillante et $i = nw$ pour la phase non-mouillante.

Conservation de la masse :

$$\phi \frac{\partial(\rho_i S_i)}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla} \cdot (\rho_i \boldsymbol{q_i}) = 0 \quad (80)$$

Avec ϕ la porosité (-) et S_i la saturation de la phase i (-).

Relation entre les saturations des deux phases :

$$S_{nw} + S_w = 1 \quad (81)$$

Définitions de la pression capillaire :

$$p_c = p_{nw} - p_w \quad (82)$$

Définition de la saturation effective :

$$Se_w = \frac{S_w - S_{r,w}}{S_{s,w} - S_{r,w}} \quad (83)$$

$$Se_w + Se_{nw} = 1 \quad (84)$$

Avec $S_{r,w}$ la saturation résiduelle de la phase mouillante (-) et $S_{s,w}$ la saturation maximale de la phase mouillante (-). La saturation effective varie de 0 à 1 et simplifie la modélisation.

Modèle de Van Genuchten-Mualem :

$$Se_w = (1 + (\alpha_{VG} p_c)^{n_{VG}})^{-m_{VG}} \quad (85)$$

Avec α_{VG} (m^{-1}), n_{VG} (-) et m_{VG} (-) trois paramètres expérimentaux et la relation :

$$m = 1 - \frac{1}{n} \quad (86)$$

$$k_{r,w} = Se_w{}^{l} \left(1 - \left(1 - Se_w{}^{1/m}\right)^{m}\right)^2 \quad (87)$$

$$k_{r,nw} = (1 - Se_w)^{l} \left(1 - Se_w{}^{1/m}\right)^{2m} \quad (88)$$

Avec l un paramètre sans dimension (-).

1.2. Formulation du modèle « pression-pression »

Cette formulation a pour objectif de transformer les deux lois de Darcy afin d'obtenir des formulations dépendant uniquement de la pression de chaque phase. Le développement mathématique est présenté en Annexe H. Ces équations sont couplées et utilisent uniquement les dérivées spatiales et temporelles des pressions des phases :

$$C_{p,w} \frac{\partial p_w}{\partial t} + \boldsymbol{\nabla} \cdot \left(-\frac{\kappa_{int} k_{r,w}}{\mu_w} (\boldsymbol{\nabla} p_w + \rho_w \boldsymbol{g}) \right) = C_{p,w} \frac{\partial p_{nw}}{\partial t} \quad (89)$$

$$C_{p,w} \frac{\partial p_{nw}}{\partial t} + \boldsymbol{\nabla} \cdot \left(-\frac{\kappa_{int} k_{r,nw}}{\mu_g} (\boldsymbol{\nabla} p_{nw} + \rho_{nw} \boldsymbol{g}) \right) = C_{p,w} \frac{\partial p_w}{\partial t} \quad (90)$$

La capacité spécifique de la phase mouillante $C_{p,w}$ est définie :

$$C_{p,w} = -\phi (S_{s,w} - S_{r,w}) \frac{\partial Se_w}{\partial p_c} \quad (91)$$

Ce système de deux équations à trois inconnues (p_w, p_{nw} et Se_w) est fermé par le modèle de Van Genuchten, équation (85).

1.3. Formulation du « *mixture model* »

Le couplage présenté dans la partie 1.2 précédente (modèle « pression – pression ») n'est pas la seule formulation possible pour résoudre ce problème. La formulation appelée « *mixture model* » développée par Wang et Beckermann (1993) est présentée dans cette partie. Ce modèle est basé sur la définition d'un « mélange » des deux phases possédant une densité, une viscosité, une vitesse, etc. basé sur les propriétés des deux phases. Cela permet de calculer plus aisément les variables du « mélange » et ensuite de déduire les variables de chaque phase. Le cheminement mathématique menant à la formulation du « *mixture model* » est présenté ci-dessous.

La densité du mélange est défini par :

$$\rho = S_w \rho_w + S_{nw} \rho_{nw} \quad (92)$$

Avec ρ la densité du mélange (kg.m^{-3}).

La vitesse de Darcy du mélange est définie à partir de la conservation du flux massique :

$$\rho \boldsymbol{q} = \rho_w \boldsymbol{q_w} + \rho_{nw} \boldsymbol{q_{nw}} \quad (93)$$

Avec $\boldsymbol{q}$ la vitesse de Darcy du mélange (m.s^{-1}).

En reprenant les équations de la conservation de la masse (80) pour chaque phase et en les sommant, la loi de conservation de la masse du mélange est obtenue :

$$\phi \frac{\partial \rho}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla}(\rho \boldsymbol{q}) = 0 \quad (94)$$

La viscosité cinématique du mélange est définie en tant que moyenne cinématique :

$$\nu = \frac{1}{\frac{k_{r,w}}{\nu_w} + \frac{k_{r,nw}}{\nu_{nw}}} \quad (95)$$

Avec ν la viscosité cinématique du mélange (m^2.s^{-1}), ν_w la viscosité cinématique de la phase mouillante (m^2.s^{-1}) et ν_{nw} la viscosité cinématique de la phase non-mouillante (m^2.s^{-1}).

Afin de manipuler plus facilement ces quantités physiques, les mobilités relatives des phases sont définies telle que :

$$\lambda_{r,i} = \nu \frac{k_{r,i}}{\nu_i} \quad (96)$$

Avec $\lambda_{r,i}$ la mobilité relative de la phase i (-).

Par définition, ces mobilités relatives vérifient la propriété suivante :

$$\lambda_{r,w} + \lambda_{r,nw} = 1 \quad (97)$$

En reprenant la loi de Darcy diphasique (79) en la définissant pour chaque phase :

$$\boldsymbol{q_w} = -\frac{\kappa_{int} k_{r,w}}{\mu_w}(\boldsymbol{\nabla} p_w - \rho_w \boldsymbol{g}) \quad (98)$$

$$\boldsymbol{q_{nw}} = -\frac{\kappa_{int} k_{r,nw}}{\mu_{nw}}(\boldsymbol{\nabla} p_{nw} - \rho_{nw} \boldsymbol{g}) \quad (99)$$

En faisant l'opération $\rho_w \times$ (98) + $\rho_{nw} \times$ (99), il vient :

$$\rho \boldsymbol{q} = -\frac{\kappa_{int}}{\nu}\left[\left(\lambda_{r,w}\nabla p_w + \lambda_{r,nw}\nabla p_{nw}\right) - \left(\lambda_{r,w}\rho_w + \lambda_{r,nw}\rho_{nw}\right)\boldsymbol{g}\right] \quad (100)$$

La pseudo pression de mélange, formulée par Chavent (1976), est définie par :

$$p = \frac{p_w + p_{nw}}{2} + \frac{1}{2}\int_0^{p_c}\left(\lambda_{r,nw}(\xi) - \lambda_{r,w}(\xi)\right)d\xi \quad (101)$$

Le gradient de la pseudo-pression de mélange s'obtient par dérivation de l'expression précédente (101) :

$$\nabla p = \nabla\left(\frac{p_w + p_{nw}}{2}\right) + \frac{1}{2}\left(\lambda_{r,nw} - \lambda_{r,w}\right)\nabla p_c$$

$$\nabla p = \nabla\left(\frac{p_w + p_{nw}}{2}\right) + \frac{1}{2}\left(1 - 2\lambda_{r,w}\right)\nabla(p_{nw} - p_w)$$

$$\nabla p = \lambda_{r,w}\nabla p_w + (1 - \lambda_{r,w})\nabla p_{nw}$$

$$\nabla p = \lambda_{r,w}\nabla p_w + \lambda_{r,nw}\nabla p_{nw} \quad (102)$$

La viscosité dynamique de mélange est définie par :

$$\mu = \rho \cdot \nu \quad (103)$$

Avec μ la viscosité dynamique de mélange (Pa.s).

La densité cinétique du mélange est définie par :

$$\rho_k = \lambda_{r,w}\rho_w + \lambda_{r,nw}\rho_{nw} \quad (104)$$

Avec ρ_k la densité cinétique du mélange (kg.m^{-3}), différente de la densité statique ρ.

A l'aide des définitions (102), (103) et (104), l'équation (100) devient finalement la loi de Darcy du mélange :

$$\boldsymbol{q} = -\frac{\kappa_{int}}{\mu}\left[\boldsymbol{\nabla} p - \rho_k \boldsymbol{g}\right] \quad (105)$$

L'objectif est à présent de déterminer une équation régissant la saturation. Les calculs menant à cette équation sont explicités en Annexe I.

$$\phi\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}}+\boldsymbol{\nabla}\cdot\left[\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}\right]=\boldsymbol{\nabla}\cdot\left[D\boldsymbol{\nabla}S_w-\frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\Delta\rho\boldsymbol{g}\right] \quad (106)$$

Avec $\Delta\rho$ la différence de densité entre la phase mouillante et non-mouillante (kg.m^{-3}), et avec D_c, appelé coefficient de diffusion capillaire (Pa.s), défini tel que :

$$D_c=-\frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\frac{\partial p_c}{\partial S_w} \quad (107)$$

Les équations (105), (106) et (107) décrivent donc l'écoulement diphasique en association avec l'équation de conservation de la masse du mélange (94), avec trois inconnues : S_w, p et p_c. Le système est fermé grâce au modèle de Van Genuchten, équation (85), reliant S_w à p_c.

Avec cette formulation, il est possible de recalculer les variables de chaque phase une fois que les variables du mélange ont été calculées. En utilisant la définition de la pseudo pression de mélange, équation (102), et la définition de la pression capillaire, équation (82), il est possible de calculer les gradients de pression de chaque phase :

$$\nabla p_w=\nabla p-\lambda_{r,nw}\nabla p_c \quad (108)$$

$$\nabla p_{nw}=\nabla p+\lambda_{r,w}\nabla p_c \quad (109)$$

Bien qu'elle soit avant tout basée sur des considérations mathématiques, il est intéressant de noter que la forme de l'équation (106) est proche de celle d'une équation d'advection-diffusion avec $\boldsymbol{\nabla}\cdot\left[\left[\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}\right]+\frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\Delta\rho\boldsymbol{g}\right]$ comme terme d'advection, lié à la vitesse des fluides et à la gravité ; et $\boldsymbol{\nabla}[D_c\boldsymbol{\nabla}S_w]$ comme terme de diffusion, lié aux effets capillaires. Cette formulation permet donc de mettre en valeur et de préciser le rôle de chaque phénomène physique sur l'évolution du champ de saturation.

Cette formulation est également intéressante pour la modélisation car elle simplifie le calcul des champs de saturation tout à préservant les propriétés de chaque phase si celles-ci ont besoin d'être interprétées. Elle sera ainsi utilisée dans la suite de ce chapitre pour modéliser les écoulements de mousse.

Une autre formulation, basée sur la même philosophie, a été proposée par Chen, Huan et Ma (2006). Cette formulation est nommée « *global pressure* ». Celle-ci pose des définitions des propriétés du mélange différentes et aboutit à des équations différentes. Ce modèle n'étant pas utilisé dans ce manuscrit, sa démonstration ne sera pas abordée. Les définitions principales et

équations sont présentées ci-après avec une comparaison au modèle de Wang. La principale spécificité de ce modèle est qu'il utilise la somme de la vitesse des deux phases pour définir la vitesse du mélange.

Tableau 18. Comparaison des modèles de Chen et de Wang.

	Chen (2006)	**Wang (1993)**
Densité statique	/	$\rho = S_w\rho_w + S_{nw}\rho_{nw}$
Vitesse de Darcy	$\boldsymbol{q} = \boldsymbol{q_w} + \boldsymbol{q_{nw}}$	$\rho\boldsymbol{q} = \rho_w\boldsymbol{q_w} + \rho_{nw}\boldsymbol{q_{nw}}$
Viscosité	$\mu = \frac{1}{\frac{k_{r,w}}{\mu_w} + \frac{k_{r,nw}}{\mu_{nw}}}$	$\nu = \frac{1}{\frac{k_{r,w}}{\nu_w} + \frac{k_{r,nw}}{\nu_{nw}}}; (\mu = \rho\nu)$
Mobilité relative	$\lambda_{r,i} = \mu\frac{k_{r,i}}{\mu_i}$	$\lambda_{r,i} = \nu\frac{k_{r,i}}{\nu_i}$
Pression	$\nabla p = \lambda_{r,w}\nabla p_w + \lambda_{r,nw}\nabla p_{nw}$	$\nabla p = \lambda_{r,w}\nabla p_w + \lambda_{r,nw}\nabla p_{nw}$
Densité cinétique	$\rho_k = \lambda_{r,w}\rho_w + \lambda_{r,nw}\rho_{nw}$	$\rho_k = \lambda_{r,w}\rho_w + \lambda_{r,nw}\rho_{nw}$
Conservation de la masse	$\boldsymbol{\nabla q} = 0$	$\phi\frac{\partial\rho}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla}(\rho\boldsymbol{q}) = 0$
Loi de Darcy	$\boldsymbol{q} = -\frac{\kappa_{int}}{\mu}[\nabla p - \rho_k\boldsymbol{g}]$	$\boldsymbol{q} = -\frac{\kappa_{int}}{\mu}[\nabla p - \rho_k\boldsymbol{g}]$
Equation de la saturation	$\phi\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla}[\lambda_{r,w}\rho_w\boldsymbol{q}] = \boldsymbol{\nabla}\left[D_c\boldsymbol{\nabla}S_w - \frac{\kappa_{int}\rho_w}{\mu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\Delta\rho\boldsymbol{g}\right]$	$\phi\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla}[\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}] = \boldsymbol{\nabla}\left[D_c\boldsymbol{\nabla}S_w - \frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\Delta\rho\boldsymbol{g}\right]$
Diffusion capillaire	$D_c = -\frac{\kappa_{int}\rho_w}{\mu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\frac{\partial p_c}{\partial S_w}$	$D_c = -\frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\frac{\partial p_c}{\partial S_w}$

1.4. Formulation « *fractional flow* »

La formulation « *fractional flow* » utilise une approche similaire aux formulations « *mixture model* », notamment à celle de Chen. Elle utilise cependant davantage d'hypothèses simplificatrices : déplacement unidimensionnel, gravité négligeable, effets capillaire négligeables ($\frac{\partial p_c}{\partial S_w} = 0$) (Zhang, Freedman and Zhong, 2009).

En écrivant l'équation différentielle de la saturation du modèle de Chen en utilisant ces hypothèses et en l'adimensionnalisant, il est obtenu :

$$\frac{\partial S_w}{\partial t_D} + \frac{\partial f_w}{\partial x_D} = 0 \quad (110)$$

Avec t_D le temps adimensionalisé (-) et x_D la distance adimensionalisée (-) définis par :

$$t_D = \frac{qt}{\phi L} \quad (111)$$

$$x_D = \frac{x}{L} \quad (112)$$

Avec L la longueur du milieu poreux (m).

f_w est appelé le « *fractional flow* ». Sa définition est donnée ici :

$$f_w = \frac{{k_{r,w}}/{\mu_w}}{{k_{r,w}}/{\mu_w} + {k_{r,nw}}/{\mu_{nw}}} \quad (113)$$

Ce modèle utilise la relation entre la saturation en eau et le « *fractional flow* », c'est-à-dire le rapport entre le débit d'eau et le débit total, pour décrire le déplacement des phases et résoudre les équations différentielles régissant les écoulement diphasiques en utilisant la méthode des caractéristiques.

Le premier modèle « *fractional flow* » a été utilisé pour un système eau-huile et développé par Buckley et Leverett (Buckley and Leverett, 1942). Un premier modèle pour un système eau-mousse appelée modèle « *fixed-*p_c^* » a été développé par Zhou et Rossen (1995), où la pression capillaire critique p_c^* est indépendante des débits de gaz et de liquide. Ce modèle a été modifié par Dholkawala, Sarma et Kam (2007) qui ont ajouté le phénomène de génération et de coalescence de la mousse.

Le modèle « *fractional flow* » n'est pas adapté à certains écoulements de mousse à cause d'hypothèses trop contraignantes (Zhang, Freedman and Zhong, 2009). Dans le cas de cette étude, ce modèle ne sera pas considéré, notamment à cause de la nature bidimensionnelle de l'écoulement de Darcy considéré.

2. Modélisation de la mousse en milieu poreux

Une fois que les équations régissant les écoulements diphasiques en milieu poreux ont été établies, il est nécessaire de modéliser le comportement mécanique de la mousse en milieu poreux.

Trois hypothèses sont communément admises comme point de départ des modèles :

- La mousse est considérée comme une unique phase gazeuse (Zhou and Rossen, 1995);
- La mobilité de l'eau dépend de la saturation en eau, qu'il existe ou non de la mousse (Zhou and Rossen, 1995) ;
- La mobilité du gaz est contrôlée par la texture de la mousse (Falls *et al.*, 1989).

Il y a deux approches majeures de la modélisation de la mousse en milieu poreux (Zhang, Freedman and Zhong, 2009) : empirique ou mécanistique. Les modèles empiriques représentent les mécanismes de formation et de destruction de la mousse à une échelle macroscopique mais nécessitent moins de paramètres. L'approche mécanistique utilise les modèles de bilan de population de bulles pour évaluer précisément la formation et la destruction des bulles. La meilleure façon de modéliser la mousse dépend des données expérimentales disponibles, des objectifs et des ressources numériques.

2.1. Modèles empiriques

Selon Kovscek (1998), un modèle correct pour modéliser l'écoulement de la mousse en milieu poreux doit au moins respecter ces propriétés :

- La mobilité du gaz est réduite quand de la mousse est créée
- La mousse est décrite comme un fluide non-Newtonien
- Les propriétés de la mousse dépendent de la concentration en tensioactif
- Le modèle doit incorporer une représentation exacte du transport de tensioactif, y compris l'adsorption.

Les équations régissant les écoulements diphasiques distinguent la phase mouillante, dans ce cas l'eau environnante, et la phase non-mouillante, dans ce cas le gaz composant la mousse. Cependant, comme vu dans les chapitres précédents, la mousse dispose d'une forte viscosité pouvant varier en fonction de sa génération et sa destruction. Il faut donc intégrer ces propriétés dans les équations. Ainsi, la mousse ne sera pas modélisée comme une structure à deux phases, mais sera modélisée comme une unique phase non-mouillante affectée d'un coefficient de réduction de mobilité variable, *MRF* (*Mobility Reduction Factor*), modifiant la mobilité de la

phase. Dans les équations, la phase mouillante représentera uniquement l'eau autour de la mousse et non la solution de tensioactif qui fait partie de la mousse. En somme, dans cette modélisation la phase gazeuse de la mousse est considérée comme continue et l'effet des lamelles est symbolisée par le MRF.

La mobilité d'une phase est définie par l'expression suivante :

$$\lambda_i = \frac{k_{r,i}}{\mu_i} \quad (114)$$

Avec λ_i la mobilité de la phase i ($Pa^{-1}.s^{-1}$).

Le MRF est appliqué à la mobilité du gaz pour obtenir celui de la mousse.

$$\lambda_{fm} = \frac{\lambda_g}{MRF} \quad (115)$$

Avec λ_{fm} la mobilité de la mousse ($Pa^{-1}.s^{-1}$) et λ_g la mobilité du gaz ($Pa^{-1}.s^{-1}$).

Par définition du « Resistance Factor » donnée aux Chapitres précédents, il découle :

$$MRF = RF \times \frac{\mu_w}{\mu_g} \quad (116)$$

Donc $MRF = RF \times 5{,}6 \times 10^1$ dans le cas de l'eau et du diazote à 20°C.

Le MRF peut varier de quelques dizaines pour des mousses avec une texture grossière (mousse faible) à des centaines de milliers pour les mousses avec une texture fine (Lee, 2014). Le cas $MRF = 1$ correspond à un écoulement classique de gaz sans mousse.

En milieu poreux, la pression capillaire est un élément clé pour déterminer la texture de la mousse. La texture de la mousse regroupe les descriptions de tailles, de forme et de distribution des bulles. Khatib, Hirasaki et Falls (1988) ont expérimentalement montré qu'il existe une transition de la mousse forte à la mousse faible à une pression capillaire critique p_c^*. Sachant que la pression capillaire évolue de façon monotone avec la saturation (voir Figure 107), il est possible de lier cette pression capillaire critique à une saturation critique. La valeur de la saturation critique dépend de plusieurs paramètres tels que la perméabilité du milieu poreux, le tensioactif et sa concentration ou la nature du fluide environnant la mousse. Cette valeur doit donc être mesurée expérimentalement. Quand la pression dépasse p_c^*, il est supposé que la mousse est détruite, affectant sa mobilité.

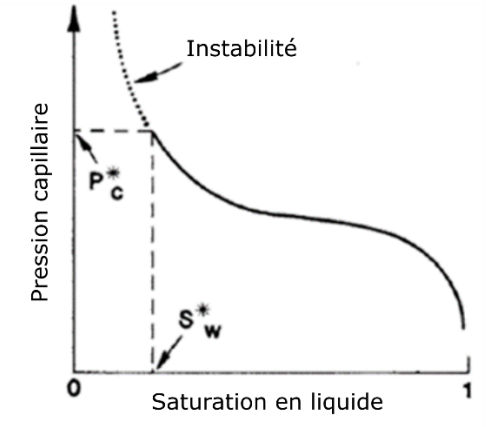


Figure 107. Courbe pression capillaire – saturation pour l'écoulement de mousse en milieu poreux, adapté de Khatib et al., (1988) (Khatib, Hirasaki and Falls, 1988).

D'autres paramètres tels que la concentration en tensioactif, la perméabilité ou la température, qui ont été présenté au Chapitre 2, influent également sur la valeur du MRF.

Rossen *et al.* 1994 ont développé un modèle permettant de calculer MRF en tenant compte de la concentration en tensioactif et de la saturation critique :

$$MRF = 1 \qquad si \quad S_w < S_w{}^* - \varepsilon \qquad ou \;\; c < c^0 \qquad (117)$$

$$MRF = 1 + (R' - 1)\left(\frac{S_w - S_w{}^* + \varepsilon}{2\varepsilon}\right) \; si \;\; S_w{}^* - \varepsilon \leq S_w \leq S_w{}^* + \varepsilon \;\; et \;\; c \geq c^0 \qquad (118)$$

$$MRF = R' \qquad si \quad S_w > S_w{}^* + \varepsilon \qquad et \;\; c \geq c^0 \qquad (119)$$

Avec c^0 le seuil de concentration nécessaire pour former de la mousse (mol.m^{-3}), ε la moitié de l'étendue de la zone de transition (-) et R' la valeur maximale du MRF (-).

Cheng *et al.* (2000) ont ajouté le comportement non-newtonien à ce modèle en modifiant R' :

$$R' = R_{ref}\left(\frac{u_g}{u_{g,ref}}\right)^{n-1} \qquad (120)$$

Avec u_g la vitesse superficielle du gaz (m.s^{-1}), R_{ref} la valeur de R' (-) à une vitesse superficielle de référence $u_{g,ref}$ (m.s^{-1}) et n l'exposant de la loi de puissance pour un fluide non-Newtonien (-). Dans la cas où le comportement serait Newtonien, n = 1. Dans le cas rhéofluidifiant (Khatib, Hirasaki and Falls, 1988; Osterloh and Jante, 1992), $n < 1$. Ce modèle est utilisé dans le logiciel UTCHEM® (Boeije and Rossen, 2013).

Dans STARS®, un logiciel commercial permettant de modéliser les écoulements de mousse en milieu poreux, la même approche empirique est utilisée sous une autre forme (Cheng *et al.*, 2000) :

$$MRF = 1 + fmmob.F_1F_2F_3F_4F_5F_6 \quad (121)$$

Le paramètre $fmmob$ représente la réduction de mobilité maximum (-). Les facteurs F_i représentent l'influence de certains phénomènes et varient entre 0 et 1. F_1 représente l'effet de la concentration en tensioactif, F_2 l'effet de la saturation en eau, F_3 l'effet de la saturation en huile, si présente, F_4 la vitesse du gaz, F_5 le nombre capillaire et F_6 l'effet du nombre capillaire critique. Voici l'expression de certains de ces facteurs :

$$F_1 = \left(\frac{c}{c^{max}}\right)^{epsur} \text{ (Mohammadi, Coombe and Stevenson, 1993)} \quad (122)$$

Avec $epsur$ un exposant (-) caractérisant l'évolution du MRF en fonction de la concentration en tensioactif.

$$F_2 = 0.5 + \frac{\arctan\left(epdry(S_w - fmdry)\right)}{\pi} \text{ (Cheng } et\ al.\text{, 2000)} \quad (123)$$

Avec $epdry$ un facteur (-) représentant l'étendue de la zone de transition, et $fmdry$ la saturation en eau critique (-), précédemment notée $S_w{}^*$.

$$F_5 = \left(\frac{N_{ca}^{min}}{N_{ca}}\right)^{epcap} \quad if\ N_{ca} \geq N_{ca}^{min} \text{ (Cheng } et\ al.\text{, 2000)} \quad (124)$$

$$N_{ca} = \frac{\kappa_{int}\nabla p}{\sigma_{wg}} \quad (125)$$

Avec N_{ca} le nombre capillaire (-), κ_{int} la perméabilité intrinsèque du milieu poreux (m²), σ_{wg} la tension de surface entre l'eau et de gaz (N.m^{-1}), N_{ca}^{min} un paramètre (-) représentant un nombre capillaire en dessous duquel un comportement Newtonien est attendu et $epcap$ un exposant (-) représentant le comportement non-Newtonien de la mousse.

Kapetas *et al.* (2016) ont montré que $fmdry$ augmente avec la température et p_c^* diminue avec la température.

Certaines pseudo relations peuvent être obtenues entre les paramètres du modèle STARS® et les paramètres du modèle UTCHEM®.

$$epdry \approx 1/2\varepsilon \quad (126)$$

$$R_{ref} \approx fmmob \quad (127)$$

$$n = \frac{1}{1+epcap} \quad (128)$$

De plus, le comportement non-Newtonien est basé sur la vitesse du gaz dans le modèle UTCHEM® et sur le gradient de pression dans le modèle STARS®. Ainsi, il est possible de choisir le modèle le plus pratique en fonction des contraintes de modélisation.

2.2. Modèles mécanistiques

Les modèles mécanistiques sont basés sur une description de la formation et de la destruction des lamelles pour calculer la mobilité du gaz. Zhang, Freedman et Zhong (2009) ont listé quatre types de théories rentrant dans cette catégorie : les modèles de bilan de population des bulles, les théorie de la catastrophe, les théories de la percolation et les théories de la filtration.

Les modèles de bilan de population des bulles décrivent la génération et la coalescence des bulles pour représenter la texture de la mousse. De nombreux travaux ont été mené pour trouver les meilleurs modèles mathématiques décrivant ces phénomènes. Un modèle utilisant cette théorie peut être écrit ainsi (Kovscek and Radke, 1994; Falls *et al.*, 2007) :

$$\frac{\partial\left[\phi\left(S_f n_f + S_t n_t\right)\right]}{\partial t} = -\frac{\partial\left(v_f n_f\right)}{\partial x} + \phi S_g\left(r_g - r_c\right) + Q_b \qquad (129)$$

Les indices f et t représentent la mousse s'écoulant librement et la mousse piégée, respectivement. n représente le nombre de bulles (-), Q_b est le terme source/puit pour les bulles crées/détruites (s^{-1}), r_g est le taux de génération (s^{-1}) et r_c est le taux de coalescence (s^{-1}).

La théorie de la catastrophe étudie les phénomènes et les variations des paramètres menant à un changement brutal du comportement de la mousse. Cette théorie a été décrite par Kam (2008).

La théorie de la percolation modélise le milieu poreux comme un réseau de pore connectés par des tubes capillaires, et utilise une approche statistique. Un modèle utilisant cette théorie a été développé par Rossen (1990).

Enfin, la théorie de la filtration modélise la mousse comme un ensemble de bulles sphériques, c'est-à-dire une mousse fine et humide. Les bulles sont considérées comme des colloïdes et le milieu poreux comme un filtre. Les détails de cette théorie peuvent être trouvés dans les travaux de Wan *et al.* (2001).

L'ensemble de ces théories modélise les phénomènes à l'échelle de pore et nécessite une puissance de calcul considérable. Ils sont utiles pour modéliser précisément le comportement des mousses à petite échelle et étudier l'influence de certains paramètres sur leurs comportements mais ils sont totalement inadaptés à une étude à une échelle macroscopique ou mésoscopique comme c'est le cas dans cette étude.

3. Approche utilisée dans cette étude

Pour la suite de ce chapitre, le choix est porté sur la formulation « mixture model » de Wang couplée à un modèle empirique pour représenter la mobilité de la mousse (Wang and Beckermann, 1993). Ce choix est motivé par le fait que le problème est étudié à l'échelle de Darcy, en deux dimensions. La formulation « mixture model » est la plus simple à résoudre numériquement car le couplage entre les équations est faible. Enfin, la formulation de Wang est la plus simple à intégrer dans le logiciel COMSOL®.

L'objectif est de modéliser uniquement le comportement de la mousse forte observé en bac an chapitre 5. Les remontées de gaz libre et la mousse faible ne seront pas modélisées.

3.1. Ecoulements diphasiques en milieu poreux : Hypothèses et paramètres

Il a été observé expérimentalement aux chapitres 4 et 5 que la gravité n'a pas d'impact sur les écoulements de mousse forte. Ainsi, pour simplifier la modélisation, la gravité ne sera pas prise en compte dans les équations.

De la même façon, il a été également montré que les effets visqueux sont dominants sur les effets capillaires. Lors d'un écoulement de mousse forte, un volume élémentaire représentatif (VER) passe directement d'une saturation de 100% en eau à une saturation de 100% en mousse. Cela signifie que $\frac{\partial p_c}{\partial S_w} = 0$. Dans le modèle de Van Genuchten-Mualem, équations (87) et (88), cela signifie que m tend vers 1. Le paramètre l a été considéré comme égal à 0,5, ce qui est communément admis dans ce type de milieu poreux (Mualem, 1976).

Cela donne les expressions des perméabilités relatives suivantes :

$$k_{r,w} = {Se_w}^{2,5} \quad (130)$$

$$k_{r,nw} = {Se_{nw}}^{2,5} \quad (131)$$

En suivant ces hypothèses, le coefficient de diffusion capillaire D devrait être nul d'après l'équation (107). Cependant, il a été tout de même considéré non-nul, faible et constant afin de stabiliser la résolution numérique des équations. En effet la viscosité importante de la mousse implique de fort gradients de saturation à l'interface de la mousse forte qui rendent la convergence du modèle numérique complexe. Ce coefficient est donc une considération technique et non théorique.

Les hypothèses précédemment évoquées donnent le système d'équation suivant :

$$\begin{cases} \phi \dfrac{\partial \rho}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla} \cdot (\rho \boldsymbol{q}) = 0 \\ \boldsymbol{q} = -\dfrac{\kappa_{int}}{\mu} \boldsymbol{\nabla} p \\ \phi \rho_w \dfrac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla} \cdot \left[\lambda_{r,w} \rho \boldsymbol{q}\right] = \boldsymbol{\nabla} \cdot [D_c \boldsymbol{\nabla} S_w] \\ D_c = constante \end{cases} \quad (132)$$

Les valeurs des paramètres intervenant dans les équations régissant les écoulements diphasiques sont listés en Tableau 19. La phase mouillante étant l'eau, sa viscosité et sa densité sont celles de l'eau à 20°C. La phase non-mouillante est la mousse. Celle-ci est injecté à une qualité de 85%, il est considéré que sa densité est de 150 kg.m^{-3}. Comme vu précédemment, sa viscosité est celle du gaz multiplié par un coefficient de réduction de mobilité (MRF). La perméabilité et la porosité du milieu sont issues des mesures effectuées aux chapitres 4 et 5. La valeur de D_c sera étudiée en Partie 5.

Tableau 19. Valeurs des paramètres du modèle diphasique en milieu poreux.

Paramètres	Valeurs
ρ_w	1×10^{3} kg.m^{-3}
ρ_{nw}	$1{,}5\times10^{2}$ kg.m^{-3}
μ_w	1×10^{-3} Pa.s
μ_{nw}	$MRF\times1{,}8\times10^{-5}$ Pa.s
κ_{int}	$8{,}4\times10^{-10}$ m^2
ϕ	0,37

3.2. Modèle de MRF

D'après les résultats expérimentaux, trois principaux phénomènes ont un impact sur la viscosité de la mousse : le comportement non-Newtonien (mis en évidence au chapitre 4), la pression capillaire critique et la concentration en tensioactif (mis en évidence au chapitre 5). L'objectif est donc d'incorporer ces trois phénomènes dans le modèle de RF .

3.2.1. Comportement non-Newtonien

Le comportement non-Newtonien est modélisé à partir de la loi puissance mesurée au chapitre 4 et rappelée ci-dessous :

$$\mu_{app} = 5{,}9\dot{\gamma}^{-0{,}60} \quad (133)$$

Avec μ_{app} la viscosité apparente de la mousse (Pa.s) et $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement (s^{-1}).

Cependant, le modèle numérique diphasique proposé dans cette étude utilise comme variable la pression et la saturation. En Figure 108 est tracée la viscosité apparente de la mousse en fonction des gradients de pression mesurés lors des expériences en colonnes, décrites et discutées au Chapitre 4. Les valeurs concordent avec une loi puissance :

$$\mu_{app} = 278\nabla p^{-0,39} \quad (134)$$

Avec ∇p le gradient de pression généré (Pa.m^{-1}) pendant l'écoulement de mousse en colonne.

Cette loi peut être reformulée en exprimant la viscosité apparente en fonction d'un cas « référence » et de la viscosité du gaz :

$$\mu_{app} = \mu_g MRF_{ref}\left(\frac{\nabla p}{\nabla p_{ref}}\right)^{n_p-1} \approx \mu_g\left(1 + R_{ref}\left(\frac{\nabla p}{\nabla p_{ref}}\right)^{n_p-1}\right) \quad (135)$$

Avec μ_g la viscosité du gaz (Pa.s), MRF_{ref} le coefficient de réduction de mobilité référence (-) au gradient de pression ∇p_{ref} (Pa.m^{-1}), n_p l'exposant de la loi puissance associée au gradient de pression (-), égal à 0,61. La presque-égalité est valide car avec la forte viscosité de la mousse, $MRF_{ref}\left(\frac{\nabla p}{\nabla p_{ref}}\right)^{n_p-1}$ est de l'ordre de $10^5 >> 1$.

Enfin, un gradient de pression minimum ∇p_{min} est introduit afin d'éviter que la viscosité ne tende vers l'infini pour les gradients de pression faible. Ainsi, si $\nabla p < \nabla p_{min}$, la viscosité devient constante au regard du comportement non-Newtonien telle que :

$$\mu_{app} = \mu_g\left(1 + MRF_{ref}\left(\frac{\nabla p_{min}}{\nabla p_{ref}}\right)^{n_p-1}\right) \quad (136)$$

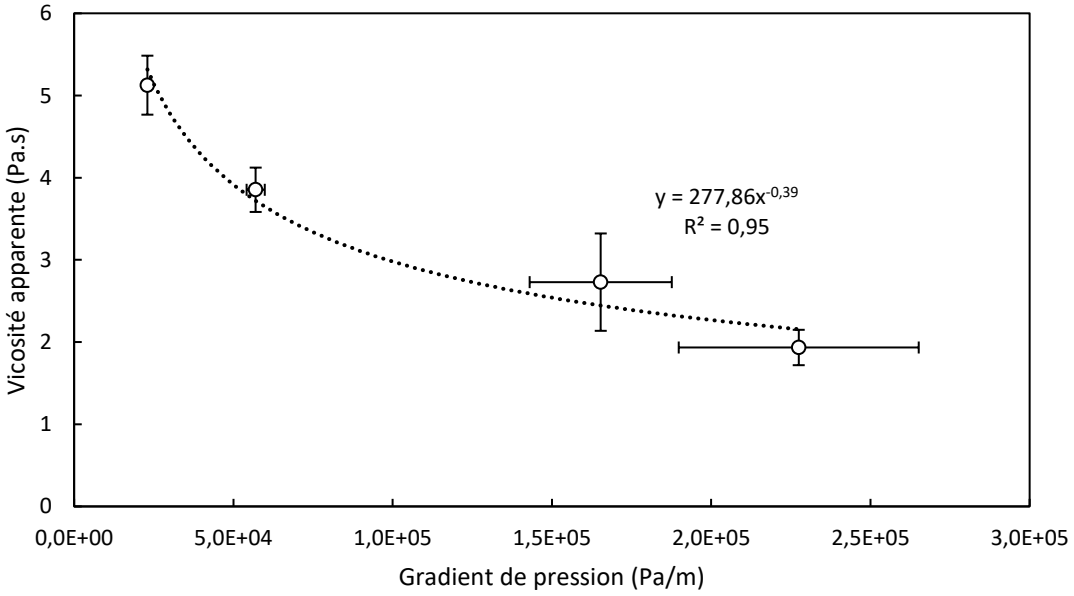


Figure 108. Viscosité apparente en fonction du gradient de pression.

3.2.2. Influence de la concentration en tensioactif

L'impact de la concentration en tensioactif n'a pas pu être directement mesuré expérimentalement. Celui-ci sera basé sur les résultats obtenus par Wang *et al.* (2012) (voir Figure 109). La viscosité apparente est égale à celle du gaz sans la présence de tensioactif et augmente avec la concentration jusqu'à la valeur de la CMC où elle se stabilise. La fonction f_c, tracée en Figure 110, représente l'influence de la concentration en tensioactif. Elle est composée en première parti d'une rampe allant du point (0 ; 0) au point (CMC ; 1) puis d'une stabilisation à 1 après la CMC. La fonction est lissée numériquement pour être dérivable deux fois en tout point.

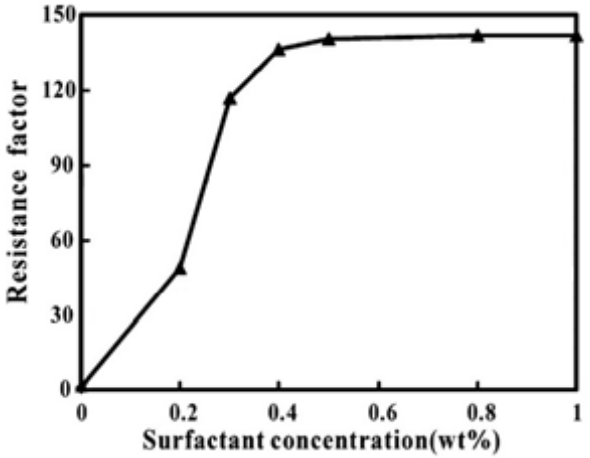


Figure 109. Evolution du « Resistance Factor » (représentant la viscosité apparente) en fonction de la concentration en tensioactif.

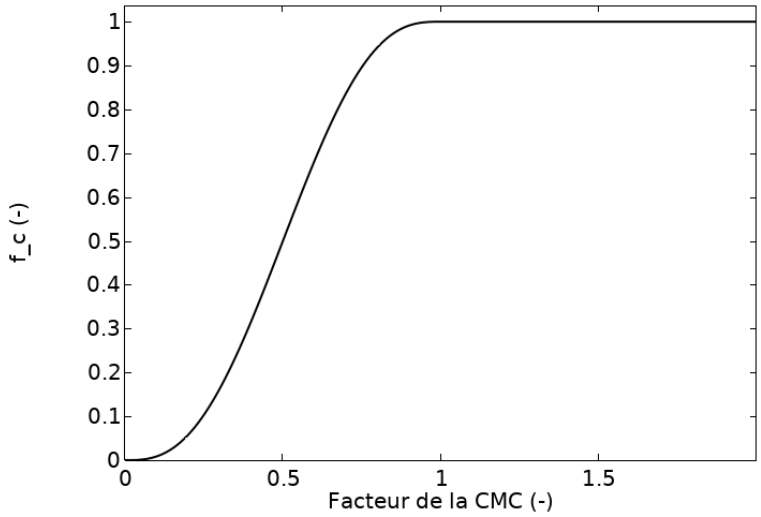


Figure 110. Evolution de la fonction f_c en fonction de la concentration, normalisée avec la CMC.

3.2.3. Influence de la pression capillaire critique

La viscosité apparente chute lorsque la pression capillaire dépasse la pression capillaire critique car la mousse coalesce et devient grossière. Comme observé au Chapitre 5, ce phénomène est responsable de la stabilisation de la pression d'injection. Pour représenter ceci, il est introduit une fonction f_p qui vaut 1 jusqu'à la pression capillaire critique, fixée à la valeur mesurée expérimentalement de 195 mbar, puis 0 après celle-ci. Pour les besoins de stabilité numérique, cette courbe est lissée numériquement sur une zone de transition de $p_c^*/5$ et est dérivable deux fois en tout point.

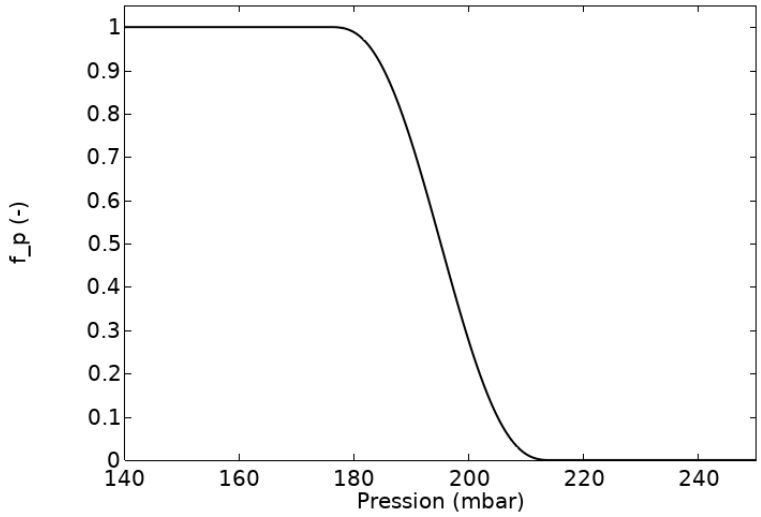


Figure 111. Evolution de la fonction f_p en fonction de la pression.

3.2.4. Expression finale du MRF

Le MRF complet incorporant ces trois phénomènes se présente donc la forme suivante.

Si $\nabla p \geq \nabla p_{min}$:

$$MRF = 1 + MRF_{ref}\left(\frac{\nabla p}{\nabla p_{ref}}\right)^{n_p - 1} f_c(c) f_p(p) \quad (137)$$

Si $\nabla p < \nabla p_{min}$:

$$MRF = 1 + MRF_{ref}\left(\frac{\nabla p_{min}}{\nabla p_{ref}}\right)^{n_p - 1} f_c(c) f_p(p) \quad (138)$$

Avec MRF_{ref} le coefficient de réduction de mobilité référence (-) au gradient de pression ∇p_{ref} (Pa.m^{-1}), ∇p le gradient de pression (Pa.m^{-1}), ∇p_{min} le gradient de pression minimale pour observer le comportement non-Newtonien (Pa.m^{-1}), n_p l'exposant de la loi puissance associée au gradient de pression (-), f_c et f_p deux fonctions variant entre 0 et 1, c la concentration en tensioactif (mol.m^{-3}), p la pression (Pa). Les valeurs de ces paramètres sont explicités en Partie 5.

3.3. Transport de soluté en milieu poreux : Hypothèses et paramètres

Le transport de soluté est régi par l'équation différentielle classique d'advection-dispersion en milieu poreux :

$$\frac{\partial(\theta c)}{\partial t} + \boldsymbol{q} \cdot \boldsymbol{\nabla} c - \boldsymbol{\nabla} \cdot (\boldsymbol{D_T} \cdot \boldsymbol{\nabla} c) = A \quad (139)$$

Avec θ la teneur volumétrique de la phase transportant le soluté (-), c la concentration en tensioactif (mol.m^{-3}), $\boldsymbol{D_T}$ le tenseur de dispersion total (m^2.s^{-1}), $\boldsymbol{q}$ le champ de vitesse de Darcy (m.s^{-1}) et A le terme représentant la perte de concentration par adsorption sur le milieu poreux (mol.m^{-3}.s^{-1}).

Les deux phases (mousse et eau) pouvant transporter le tensioactif, la teneur volumétrique est toujours égale à la porosité, $\theta = \phi$.

La perte de tensioactif par adsorption sur les billes de verre n'est pas considérée. L'AOS étant anionique, l'hypothèse est faite que l'adsorption est négligeable sur des billes de verre. Ainsi, $A = 0$.

Le tenseur de dispersion total inclue les contributions de la diffusion moléculaire et de la dispersion mécanique par l'effet de la vitesse de l'écoulement (Pfannkuch, 1962). Ainsi, $\boldsymbol{D_T}$ est exprimé comme la somme de deux termes :

$$\boldsymbol{D_T} = \boldsymbol{D_D} + \boldsymbol{D_e} \quad (140)$$

Avec $\boldsymbol{D_D}$ le tenseur de dispersion mécanique (m^2.s^{-1}) et $\boldsymbol{D_e}$ le tenseur de diffusion effectif (m^2.s^{-1}).

Le tenseur de diffusion effectif est isotrope, de valeur D_e défini par :

$$D_e = \frac{\phi}{\tau} D_m \quad (141)$$

Avec D_m le coefficient de diffusion moléculaire de l'AOS (m^2.s^{-1}) et τ la tortuosité du milieu, estimée par la relation de Millington et Quirk en milieu saturé (Millington and Quirk, 1961) :

$$\tau = \phi^{-1/3} \quad (142)$$

Le coefficient de diffusion moléculaire de l'AOS n'a pas pu être mesuré lors de cette étude. Les travaux sur ce sujet suggère une valeur moyenne de l'ordre de D_m égale à 10^{-10} m².s^{-1} (Movchan *et al.*, 2015; Wang *et al.*, 2017; Azmi *et al.*, 2019).

Les valeurs du tenseur de dispersion $\boldsymbol{D_D}$ dépendent du régime de transport du soluté. Pour évaluer ce régime, il faut calculer le nombre de Péclet massique Pe_m :

$$Pe_m = \frac{d_p u}{D_m} \quad (143)$$

Avec d_p le diamètre des particules du milieux poreux (m).

Le nombre de Péclet massique pour un écoulement de 10 m/jour = $1{,}16\times10^{-4}$ m.s^{-1} est $Pe_m = 3\times10^3$. Cette valeur de Péclet montre que les phénomènes de dispersion mécanique sont dominants ($300<Pe_m<10^5$) (Delgado, 2007). Le nombre de Péclet reste dans cette gamme de valeur même si la vitesse de l'écoulement diminue à 5 m/jour. Dans ce régime, une expression classique de la dispersion est (Delgado, 2007) :

$$D_{D,L} = 1{,}8 d_p u \quad (144)$$

$$D_{D,T} = 0{,}025 d_p u \quad (145)$$

Avec $D_{D,L}$ le coefficient de dispersion longitudinal (m².s^{-1}) et $D_{D,T}$ le coefficient de dispersion transverse (m².s^{-1}).

Ces expressions peuvent être exprimées sous la forme :

$$D_{D,L} = \alpha_L u \quad (146)$$

$$D_{D,T} = \alpha_T u \quad (147)$$

Avec α_L la dispersivité longitudinale (m) et α_T la dispersivité transverse (m). Le milieu poreux étudié étant composé de billes de 1 mm de façon homogène, les valeurs des dispersivités obtenues sont α_L = 1,8.10^{-3} m et α_T = 2,5.10^{-5} m.

4. Intégration numérique

Pour résoudre les équations présentées ci-dessus, celles-ci sont implémentées dans Comsol®, un logiciel commercial de modélisation numérique utilisant la méthode des éléments finis, spécialisé dans la modélisation de phénomènes multi-physiques.

4.1. Géométrie et maillage

L'objectif est de modéliser les résultats expérimentaux obtenus en bac et présentés dans le Chapitre 5 en conservant l'hypothèse d'un écoulement en deux dimensions. La géométrie (voir Figure 112) représentera la partie saturée du bac et sera donc un rectangle de longueur L (longueur du bac) et de hauteur h (hauteur effective du milieu poreux saturé). La géométrie est complétée par un segment de longueur d représentant le point d'injection de la mousse. Les paramètres L, h et d seront précisés en Partie 5 selon les modèles utilisés.

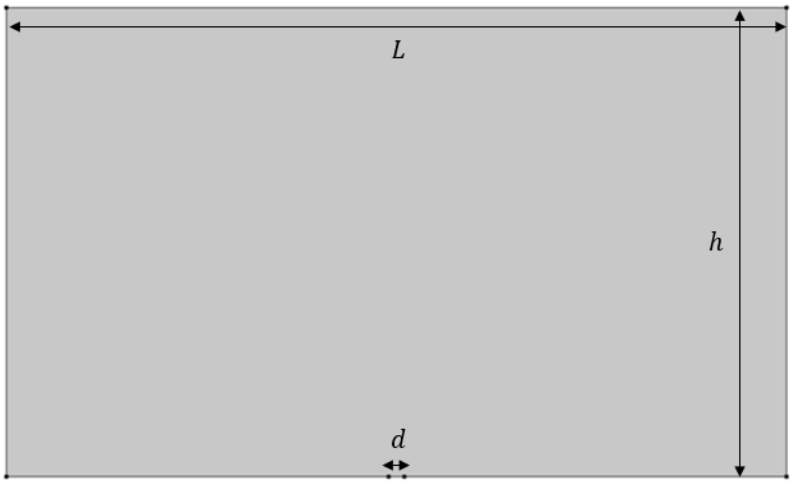


Figure 112. Exemple de géométrie du modèle.

Le maillage du modèle est composé de mailles triangulaires librement générées par Comsol® sous la contrainte d'une taille de maille maximale $mesh_{max}$. Le maillage est affiné au niveau du segment d'entrée de la mousse afin de permettre au modèle de mieux converger dans les premiers instants de l'injection. Il est également affiné sur la frontière droite du domaine pour éviter certains artefacts. Les taille de maille maximale à ces frontières sont respectivement $mesh_{inlet}$ et $mesh_{outlet}$. Le coefficient de grossissement maximum des mailles entre ces frontières et le reste du domaine est de 1,05. En Figure 113 est représenté un exemple de maillage avec $mesh_{max}$ = 0,016 m, $mesh_{inlet}$ = 0,008 m, $mesh_{outlet}$ = 0,008 m.

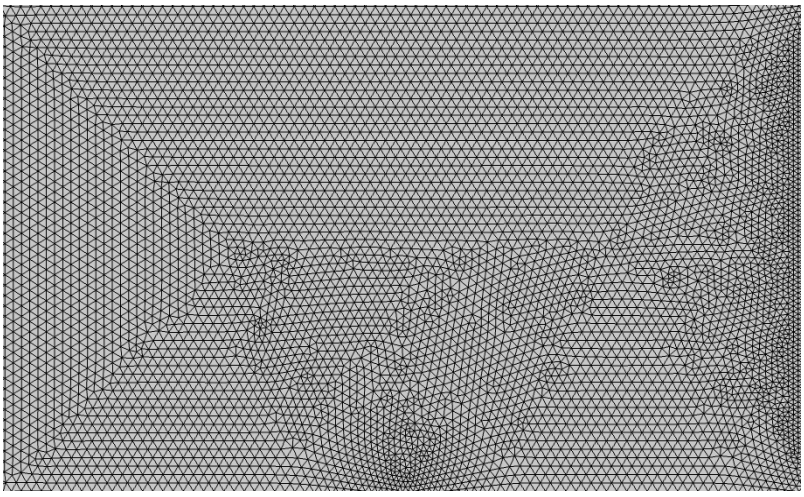


Figure 113. Exemple de maillage ($mesh_{max}$ = 0,016 m ; $mesh_{inlet}$ = 0,008 m ; $mesh_{outlet}$ = 0,008 m).

4.2. Equations, conditions limites et initiales

4.2.1. Ecoulement diphasique en milieu poreux

Comsol® propose un module pour résoudre les équations diphasiques en milieu poreux nommé « Two-Phase Darcy's Law ». Ce module est basé sur le squelette du « mixture model », sans prendre en compte la gravité. Cependant, ce module n'utilise pas les mêmes équations et a été modifié pour correspondre aux formulations choisis (voir Partie 3.1). Ces modifications sont présentées en Annexe J.

Comsol® propose un ensemble de conditions limites prédéfinies dans son module « Two-phase Darcy's Law ». Les conditions limites choisies sont présentées en Figure 114.

Sur les frontières inférieure (hors segment d'injection) et supérieure de la géométrie, il a été choisi de considérer que la vitesse de l'écoulement était nulle dans direction normale à la frontière. Les résultats expérimentaux présentés au Chapitre 5 montrent en effet que l'interface entre le milieu poreux insaturé et le milieu poreux saturé n'est pas modifié au cours de l'expérience. Il n'y a donc pas d'écoulement normal à cette interface. Les frontières inférieures correspondent à la paroi en verre du bac. Cette conditions limites est nommé « No Flux » dans Comsol® et s'écrit ainsi :

$$-\boldsymbol{n} \cdot \rho \boldsymbol{q} = 0 \qquad (148)$$

Avec $\boldsymbol{n}$ le vecteur normal unitaire à la frontière (-).

Pour la frontière gauche et le segment d'injection de mousse, les conditions limites correspondent à une entrée de fluide. La valeur de la saturation est imposée ainsi que celle de la

pression, indirectement par la vitesse. Cette condition limite est nommé « Inlet » dans Comsol® et s'écrit ainsi :

$$-\boldsymbol{n} \cdot \rho \boldsymbol{q} = (S_w \rho_w + S_{nw} \rho_{nw}) U_0 \quad (149)$$

Avec U_0 la vitesse totale d'injection des deux phases cumulées (m.s^{-1}). Les valeurs de S_w et U_0 sont paramétrées en fonction de la frontière considérée.

Enfin, la frontière droite correspond à la sortie des fluides, conformément aux expériences menées. La pression est donc imposée comme égale à la pression atmosphérique (la gravité est négligée) et la contribution de la diffusion capillaire dans la direction normale à la frontière est annulée. Cette condition limite est nommé « Outlet » dans Comsol® et s'écrit ainsi :

$$\begin{cases} -\boldsymbol{n} \cdot D_c \boldsymbol{\nabla} S_w = 0 \\ p = p_{atm} \end{cases} \quad (150)$$

Avec p_{atm} la pression atmosphérique (Pa).

Les conditions initiales de saturation et de pression correspondent au bac complètement saturé en eau et à un champ de pression nulle en l'absence d'écoulement et en négligeant la gravité :

$$\begin{cases} S_w = 1 \\ p = p_{atm} \end{cases} \quad (151)$$

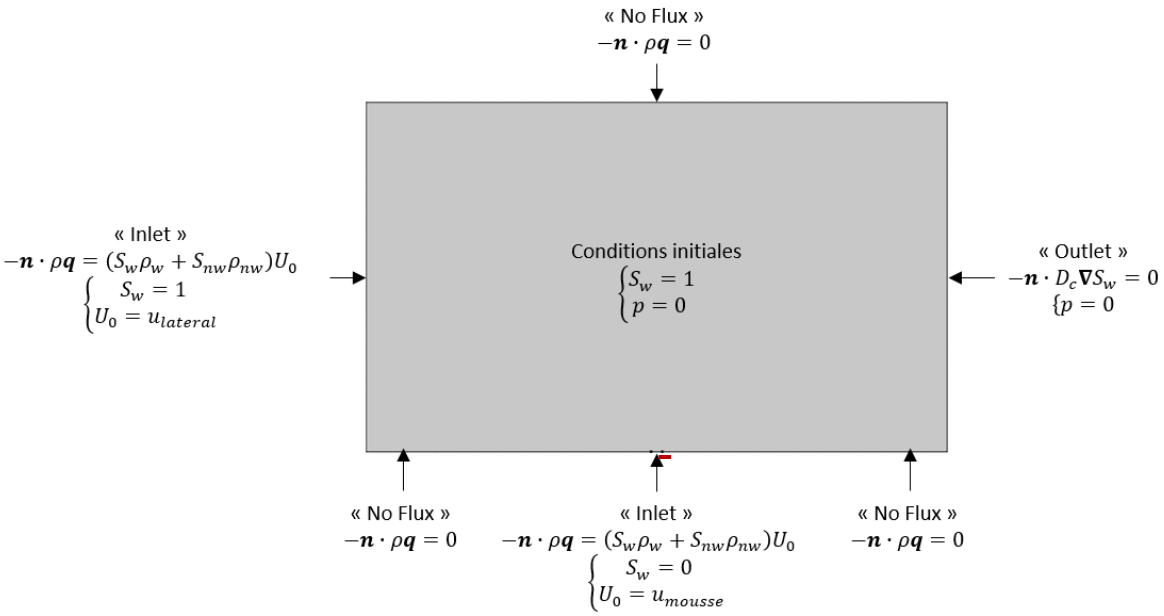


Figure 114. Conditions limites et initiales pour les équations de l'écoulement diphasique. Le vecteur $\boldsymbol{n}$ est le vecteur normal unitaire.

4.2.2.Transport de soluté en milieu poreux

Le transport de soluté est régi par l'équation différentielle d'advection-diffusion en milieu poreux. Comsol® propose un module nommé « Transport of Diluted Species in Porous Media » incorporant cette équation et les définitions associées.

Comsol® propose un ensemble de conditions limites prédéfinies dans son module « Transport of Dilluted Species in Porous Media ». Les conditions limites choisies sont présentées en Figure 115.

Sur les frontières inférieures (excepté le segment d'injection) et supérieure, il n'y a pas d'écoulement dans la direction normale aux frontières. Il n'y a également pas de diffusion dans cette direction. Cette condition limite est nommée « No Flux » dans Comsol® et s'écrit ainsi :

$$\boldsymbol{n} \cdot (D_D + D_e)\boldsymbol{\nabla} c = 0 \qquad (152)$$

Sur la frontière de segment d'injection, une concentration en tensioactif est apportée par l'injection de mousse. Un flux de concentration constant sur cette frontière est donc imposé. Cette condition limite est nommée « Inflow » dans Comsol® et s'écrit :

$$\boldsymbol{n} \cdot (-(D_D + D_e)\boldsymbol{\nabla} c + \boldsymbol{q} c) = \boldsymbol{n} \cdot (\boldsymbol{q} c_{in}) \qquad (153)$$

Sur la frontière gauche, l'écoulement d'eau pure n'apporte pas de tensioactif. La composante normale à la frontière du flux total de la masse de soluté est donc nulle. La condition limite est donc la même que précédemment mais sous la forme :

$$\boldsymbol{n} \cdot (-(D_D + D_e)\boldsymbol{\nabla} c + \boldsymbol{q} c) = 0 \qquad (154)$$

Sur la frontière droite, le tensioactif peut librement s'écouler hors du domaine. Cela correspond à supprimer la diffusion dans cette direction. Cette conditions limite est nommé « Outflow » dans Comsol et s'écrit de la même manière que la condition limite « No Flux » :

$$\boldsymbol{n} \cdot (D_D + D_e)\boldsymbol{\nabla} c = 0 \qquad (155)$$

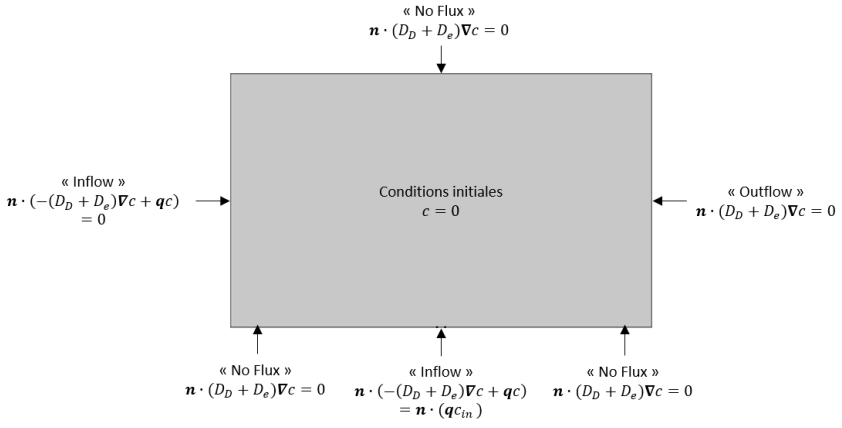


Figure 115. Conditions limites et initiales pour les équations de transport de soluté.

5. Estimation des paramètres

Les résultats présentés par la suite sont issus de deux modèles avec leurs propre géométrie et paramètres. Les modèles sont appelés « injection » et « stabilité », et simulent respectivement la phase d'injection dans le bac L avec écoulement et la phase d'injection puis de stabilité dans les bacs M, avec une variation de la vitesse de l'écoulement latéral.

5.1. Modèle « injection »

Le modèle « injection » est basé sur la géométrie du bac L. L'ouverture du segment d'injection d correspond au diamètre du point d'injection sur le dispositif expérimental. La vitesse d'injection est calculée à partir du débit en appliquant l'hypothèse d'un écoulement 2D et s'exprime donc $U_{inj} = Q_{inj}/(d \times e)$. La vitesse d'injection latéral correspond à la vitesse apparente imposée expérimentalement (1,4 m/jour) multipliée par la porosité car c'est la vitesse de Darcy qui est imposée numériquement. Dans ce modèle, l'écoulement latéral est inversé pour correspondre aux résultats expérimentaux (écoulement de la droite vers la gauche).

Pour stabiliser le calcul, la diffusion capillaire D a été fixée à 2×10^{-5} Pa.s. Cette diffusion capillaire crée artificiellement une frange capillaire à l'interface mousse/eau. La valeur choisie est la valeur la plus faible menant à une stabilisation du modèle. Le maillage choisi, affiné au niveau de l'injection de mousse et de la sortie des écoulements, permet d'obtenir un modèle stable. Un maillage plus fin et une réduction de la tolérance aux erreurs du modèle.

Le gradient de pression de référence a été choisi égal à $1{,}7\times10^{5}$ Pa.m^{-1} ce qui correspond expérimentalement à un MRF_{ref} de $1{,}5\times10^{5}$ (voir Figure 108). Cependant, cette valeur s'est trouvé être insuffisante pour faire correspondre la pression d'injection calculée numériquement à la pression d'injection mesurée expérimentalement. Il a été nécessaire de réévaluer ce paramètre et de le fixer à $4{,}4\times10^{5}$. Cette différence peut avoir de multiples sources comme l'hypothèse d'écoulement 2D ou les phénomènes qui ne sont pas pris en compte dans ce modèle. Néanmoins, MRF_{ref} est toujours de l'ordre de grandeur de 10^{5}. Le gradient de pression minimum a été fixé à 1×10^{4} Pa.m^{-1}, ce qui correspond à une viscosité apparente maximale de la mousse de 24,2 Pa.s.

Le Tableau 20 liste tous les paramètres utilisés pour la mise en place de ce modèle.

Tableau 20. Paramètres de la modélisation « injection ».

Paramètre	Définition	Valeur
L	Longueur du milieu poreux	1 m
h	Hauteur du milieu poreux saturé	0,6 m
d	Ouverture de l'injection de mousse	0,02 m
e	Épaisseur du milieu poreux	0,085 m
Q_{inj}	Débit d'injection de la mousse	8 ml.min^{-1} = 1,3×10^{-7} m^3.s^{-1}
$U_{inj} = Q_{inj}/(d \times e)$	Vitesse d'injection de la mousse	7,8×10^{-5} m.s^{-1}
$U_{lat} = U_{lat,app} \times \phi$	Vitesse de l'écoulement latéral	6,0×10^{-6} m.s^{-1}
$mesh_{max}$	Taille maximum des mailles	0,01 m
$mesh_{inlet}$	Maille maximale à l'injection de mousse	0,005 m
$mesh_{outlet}$	Maille maximale à la sortie du système	0,005 m
D_c	Coefficient de diffusion capillaire	2×10^{-5} Pa.s
MRF_{ref}	Facteur de réduction de mobilité référence	4,4×10^5
n_p	Exposant du comportement non-Newtonien	0,61
∇p_{ref}	Gradient de pression référence	1,7×10^5 Pa.m^{-1}
∇p_{min}	Gradient de pression minimum	1×10^4 Pa.m^{-1}

5.2. Modèle « stabilité »

Pour le modèle « stabilité », les paramètres concernant le MRF ont été repris du modèle « injection ».

La géométrie a été modifiée pour correspondre aux dimensions du bac M, ainsi que le débit d'injection de la mousse. La vitesse d'écoulement latérale est choisie selon les conditions expérimentales modélisées. Le maillage a été affiné davantage au niveau de la sortie où des artefacts peuvent se créer lors du transport de la saturation hors du domaine.

Le coefficient de diffusion capillaire est réduit après la fin de l'injection ($t > t_{inj}$). L'injection étant terminée, un coefficient aussi élevée n'est plus nécessaire pour stabiliser le calcul. Celui-ci est réduit d'un coefficient 20.

Le Tableau 21 liste tous les paramètres utilisés pour la mise en place de ce modèle.

Tableau 21. Paramètres de la modélisation « stabilité ».

Paramètre	Définition	Valeur
L	Longueur du milieu poreux	0,5 m
h	Hauteur du milieu poreux saturé	0,3 m
d	Ouverture de l'injection de mousse	0,01 m
e	Épaisseur du milieu poreux	0,04 m
Q_{inj}	Débit d'injection de la mousse	4 ml.min^{-1} = 6,7×10^{-8} m^3.s^{-1}
$U_{inj} = Q_{inj}/(d \times e)$	Vitesse d'injection de la mousse	$t \leq t_{inj}$: 8,3×10^{-5} m.s^{-1} $t > t_{inj}$: 0 m.s^{-1}
$U_{lat} = U_{lat,app} \times \phi$	Vitesse de l'écoulement latéral	0 - 4,3×10^{-5} m.s^{-1}
$mesh_{max}$	Taille maximum des mailles	0,01 m
$mesh_{inlet}$	Maille maximale à l'injection de mousse	0,0025 m
$mesh_{outlet}$	Maille maximale à la sortie du système	0,0017 m
D_c	Coefficient de diffusion capillaire	$t \leq t_{inj}$: 1,5×10^{-5} Pa.s $t > t_{inj}$: 7,5×10^{-7} Pa.s
R_{ref}	Facteur de réduction de mobilité référence	4,4×10^5
n_p	Exposant du comportement non-Newtonien	0,61
∇p_{ref}	Gradient de pression référence	1,7×10^5 Pa.m^{-1}
∇p_{min}	Gradient de pression minimum	1×10^4 Pa.m^{-1}

6. Résultats

Les résultats obtenus par la modélisation (champs de saturation et pression) sont comparés aux résultats obtenus expérimentalement. La modélisation concernant uniquement l'écoulement et la stabilité de la mousse forte, seuls les résultats expérimentaux concernant cette mousse forte sont analysés. Les résultats des deux modèles, « injection » et « stabilité », sont traités séparément.

6.1. Modèle « injection »

Ce modèle permet de vérifier si les résultats numériques sont fidèles aux mesures expérimentales. Ce modèle est comparé aux résultats obtenus avec le bac L #22.

6.1.1. Champ de saturation

La Figure 116 et la Figure 117 présentent le champ de saturation en mousse ainsi que les lignes de courant de l'écoulement latéral à t = 10 h et t = 20 h respectivement. La frange de diffusion capillaire est nettement visible mais l'intérêt est porté sur la forme de la mousse forte, représenté par une saturation en mousse égale à 1. Conformément aux résultats observés expérimentalement, la mousse forme un demi-disque centré sur le point d'injection. Les lignes de courant montrent que l'écoulement latéral est bien détourné par l'écoulement de la mousse, comme le montraient les tests de traçage expérimentaux.

Ces résultats montrent que les équations implantées permettent de modéliser correctement la forme de la mousse et sa capacité à détourner les écoulements d'eau.

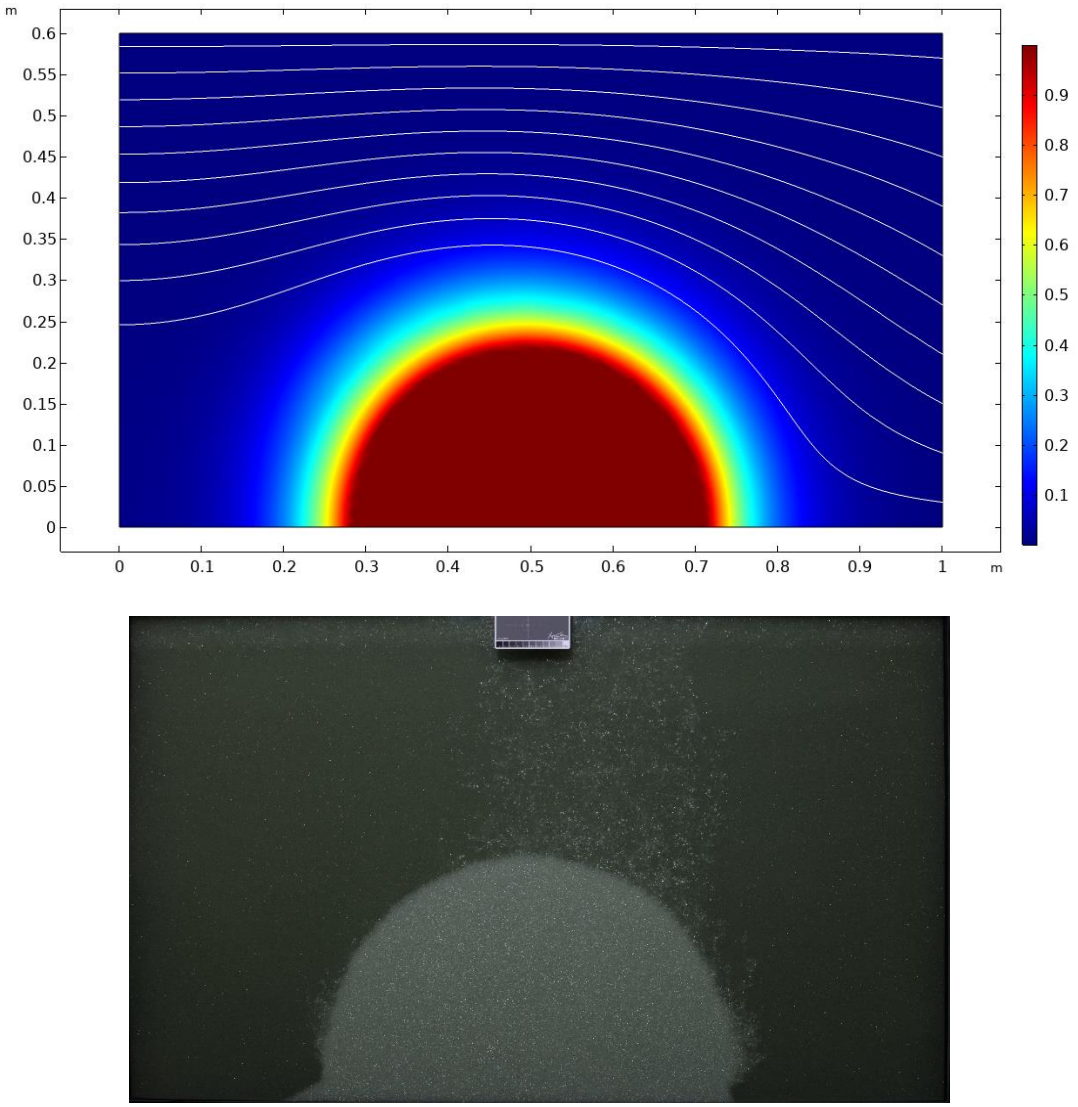


Figure 116. Lignes de courant et champs de saturation à t = 10 h. Comparaison avec le Bac L #22.

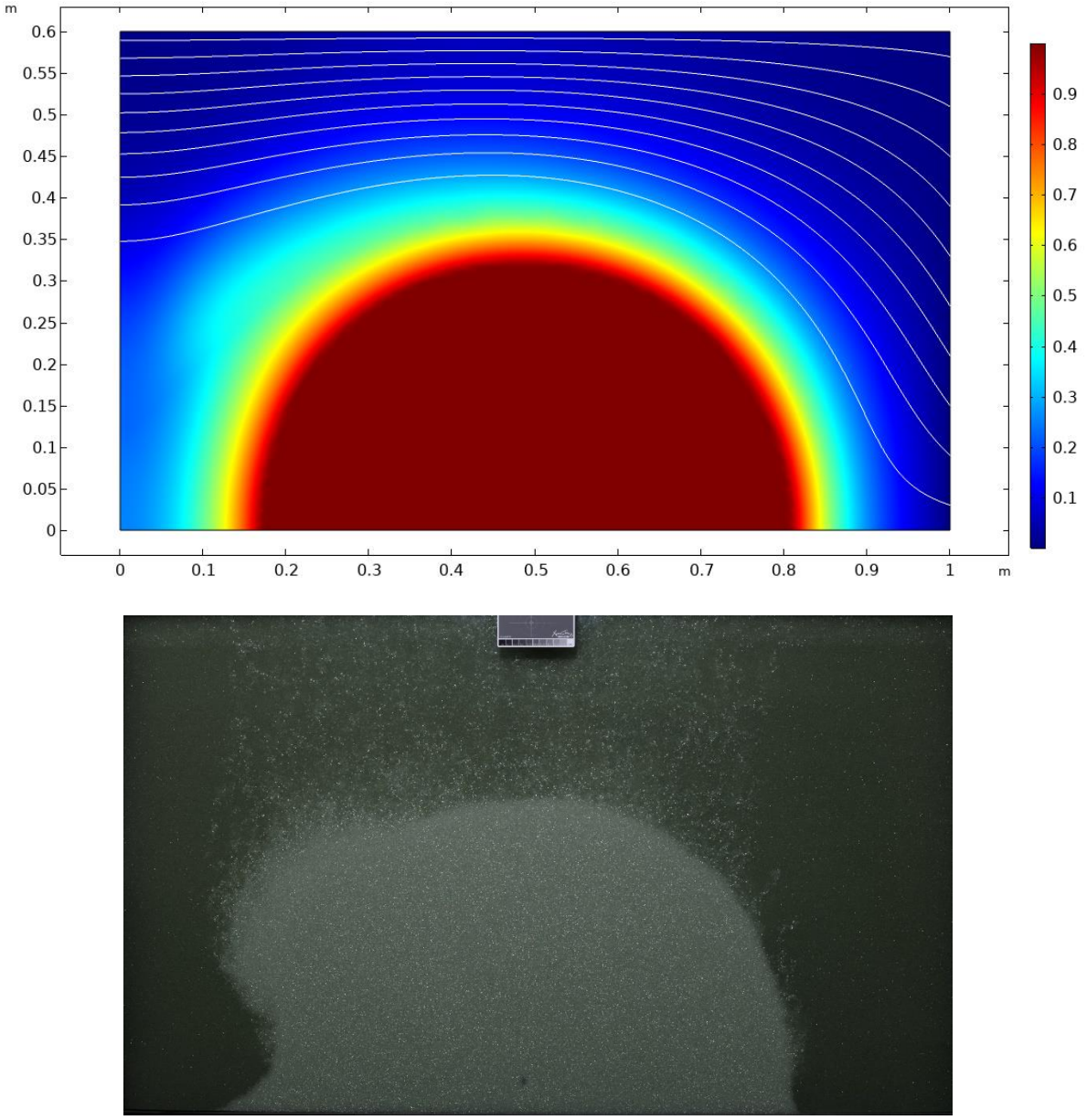


Figure 117. Lignes de courant et champs de saturation à t = 20 h. Comparaison avec le Bac L #22.

6.1.2. Rayon d'action

La Figure 118 présente la comparaison de l'évolution du rayon d'action obtenu numériquement avec le rayon d'action mesuré lors de l'expérience dans le Bac L #22, sur laquelle le modèle numérique est basé. Le rayon d'action obtenu par la modélisation est manuellement reporté et correspond au rayon auquel la saturation en mousse devient inférieure à 1 (début de la frange capillaire).

Au début de l'injection, le rayon d'action calculé numériquement est légèrement inférieur à celui obtenu expérimentalement. Cela est due à la perte de masse par la frange capillaire numérique. En effet, il a été observé expérimentalement qu'il y a très peu de coalescence au début de

l'injection et donc la quasi-totalité de la masse injectée s'écoule sous la forme d'une mousse forte. Dans la modélisation numérique, une partie de la masse se diffuse dans la frange capillaire. Pour cette même raison, le rayon d'action calculé numériquement devient plus important que celui mesuré expérimentalement à la fin de l'injection, où la coalescence devient plus importante alors que la diffusion capillaire numérique reste constante.

Le léger délai avant l'augmentation du rayon d'action est dû au comportement non-Newtonien. Dans les premiers instants, le gradient de pression est très élevé au niveau du segment d'injection et en conséquence la viscosité est fortement réduite. Ce phénomène n'a pas été observé expérimentalement.

Globalement, les rayons d'actions expérimentaux et numériques sont similaires, ce qui conforte l'approche du problème en deux dimensions. L'erreur maximale mesurée est de 15%. Ces résultats font également apparaitre les limites d'un tel modèle où la coalescence à l'interface mousse/eau lors de la phase d'injection n'est pas modélisée.

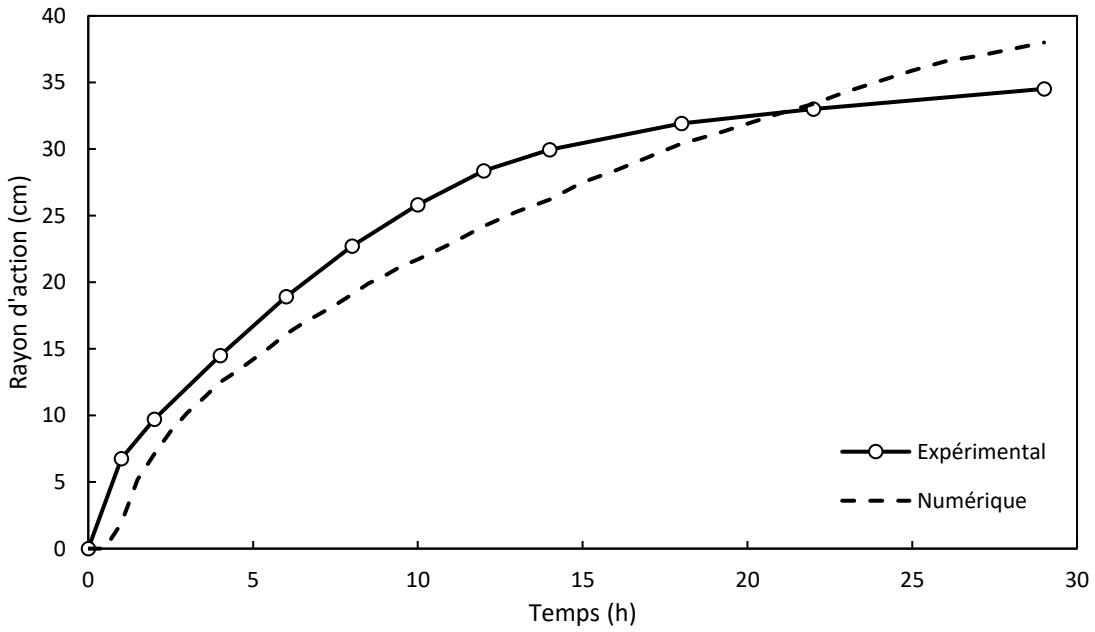


Figure 118. Comparaison du rayon d'action de la propagation de mousse entre les résultats numériques et expérimentaux (Bac L #22).

6.1.3. Pression d'injection

En Figure 119 est représentée la pression d'injection en fonction de temps, en comparaison avec les mesures effectuées dans le bac L #22. La diminution de la viscosité lorsque la pression critique est atteinte (fonction f_p) dans le MRF permet d'obtenir numériquement une pression d'injection qui se stabilise rapidement. La pression mesurée expérimentalement est soumise à

davantage de variation. Ce résultat a permis de calibrer le paramètre R_{ref} pour que la pression d'injection critique soit atteinte quasi-simultanément expérimentalement et par modélisation. Le léger délai au début de l'injection est dû au comportement non-Newtonien comme énoncé précédemment.

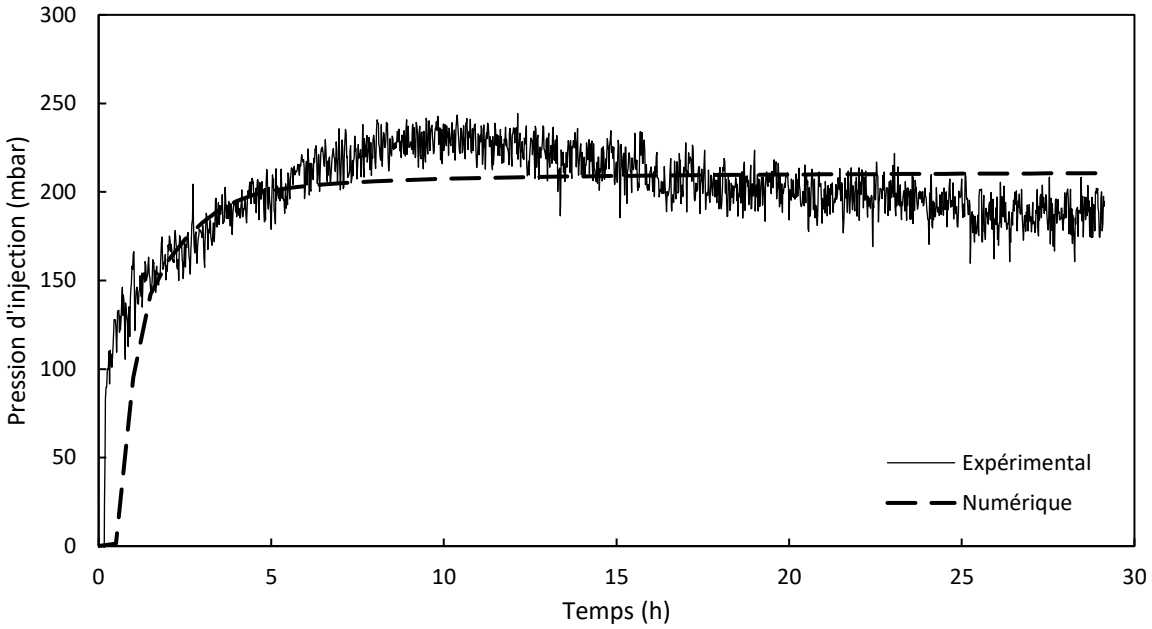


Figure 119. Evolution de la pression d'injection avec le temps. Comparaison avec le bac L #22.

6.1.4. Champs de pression

En Figure 120 sont représentés les champs de pression issus de la modélisation et issus des mesures par capteurs dans le bac L#22. Les champs de pression issus de l'expérience sont établis à partir de 26 mesures et certaines zones du graphes sont ainsi extrapolées. La pression hydrostatique a été soustraite des mesures.

On remarque que les champs issus de la modélisation ont une évolution temporelle plus progressive alors que les champs expérimentaux ne montrent quasiment plus d'évolution après t = 20 h. La modélisation montre que la zone de forte pression est très localisée au niveau du point d'injection. Cette zone est probablement sur-estimée par l'interpolation des mesures expérimentales. La modélisation montre un légère asymétrie à cause de l'écoulement qui n'est pas présente sur les résultats expérimentaux. Ceci fait partie des erreurs et limites du modèle numérique. Dans l'ensemble, les champs de pression sont correctement calculés par le modèle numérique.

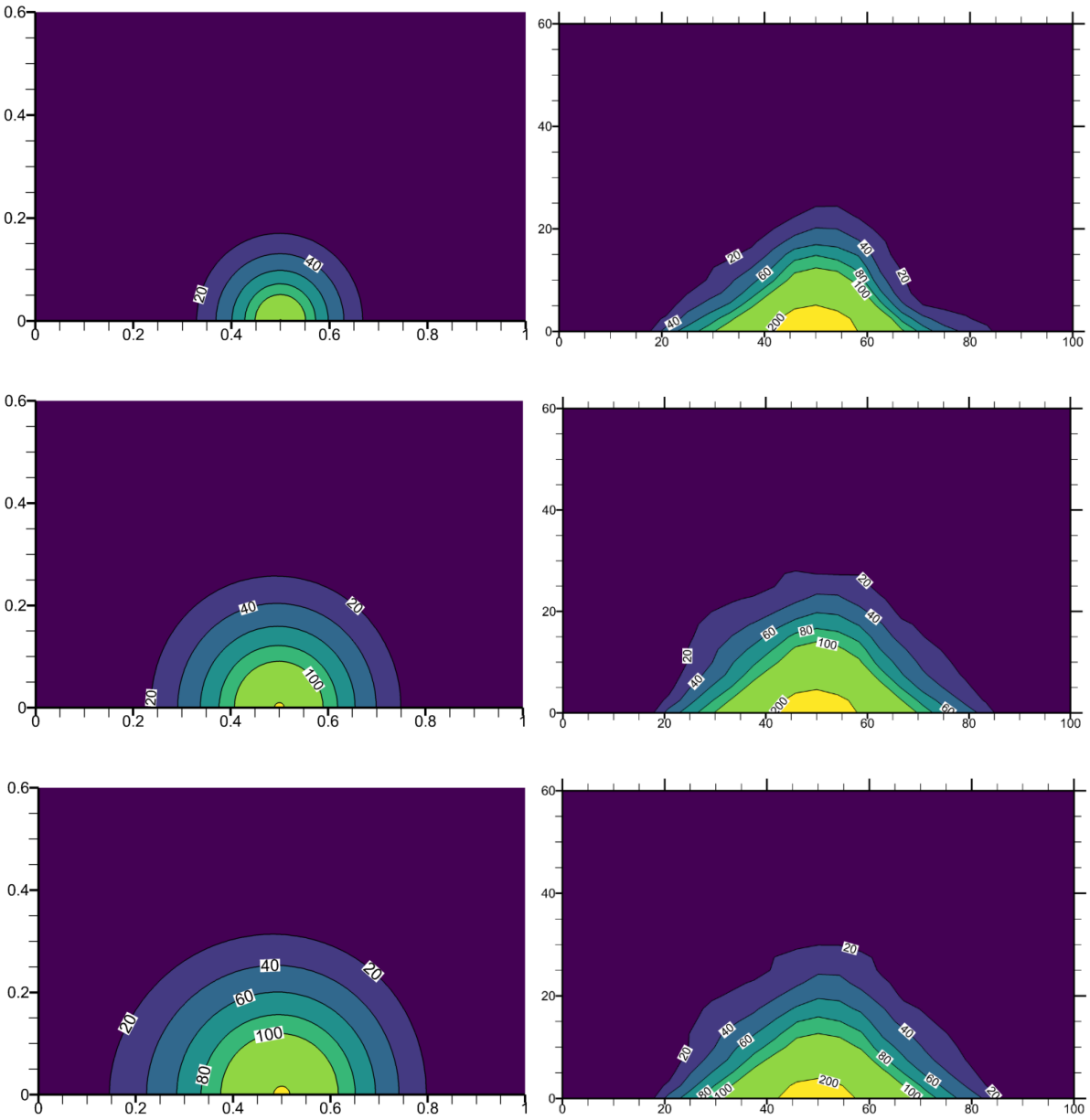


Figure 120. Evolution du champ de pression en fonction du temps.
A gauche : modélisation. A droite : expérimental, bac L#22.
De haut en bas : t = 10 h, t = 20 h, t = 29 h.

6.1.5. Champ de viscosité

En Figure 121 est représenté la viscosité du mélange à t = 20h. Ce graphe permet de visualiser la forte diminution de la viscosité au niveau du point d'injection (μ = 0,3 Pa.s) due à la fonction f_p. Le comportement non-Newtonien est également observable par l'augmentation progressive de la viscosité du centre vers les bords de la mousse. Comme la section d'écoulement grandi mais que la vitesse d'injection reste constante, la vitesse d'écoulement (et ainsi le cisaillement et le gradient de pression) diminue ce qui provoque l'augmentation de la viscosité.

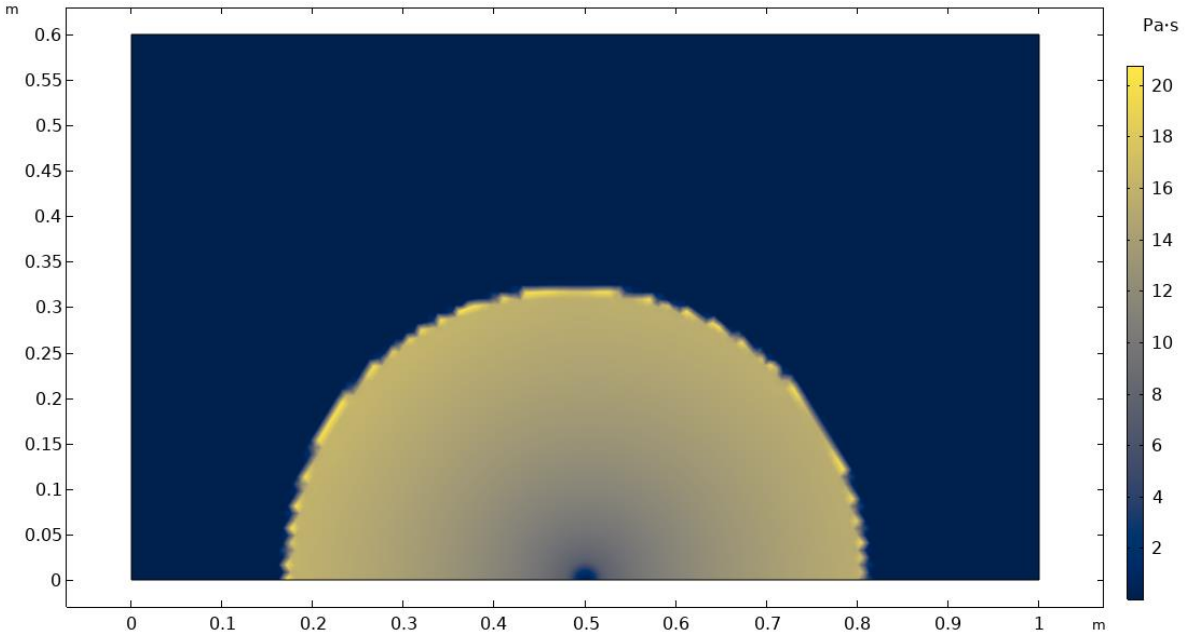


Figure 121. Champ de viscosité du mélange à t = 20h.

6.2. Modèle « stabilité »

Ce modèle permet d'étudier l'influence de la vitesse de l'écoulement latéral pendant et après l'injection de mousse. Comme lors de l'expérimentation, les vitesses d'écoulement latéral étudiées sont de 0, 5, 7,5 et 10 m/jour. Ce modèle est comparé aux résultats expérimentaux obtenus en bac M.

6.2.1. Rayons d'action

Lors de l'injection de la mousse, l'évolution temporelle des rayons d'action est identique pour toutes les vitesses d'écoulement latéral modélisées. Ce résultat confirme l'observation expérimentale qui concluait que la vitesse d'écoulement latéral n'avait pas d'influence sur la propagation de la mousse. La comparaison de l'évolution temporelle du rayon d'action entre les modèles numériques et les mesures expérimentales est présentée en Figure 122.

Contrairement au modèle « injection », on n'observe pas dans ce modèle de délai dans la propagation de la mousse. Le rayon d'action calculé numériquement se situe dans la moyenne des rayons d'action mesurés expérimentalement.

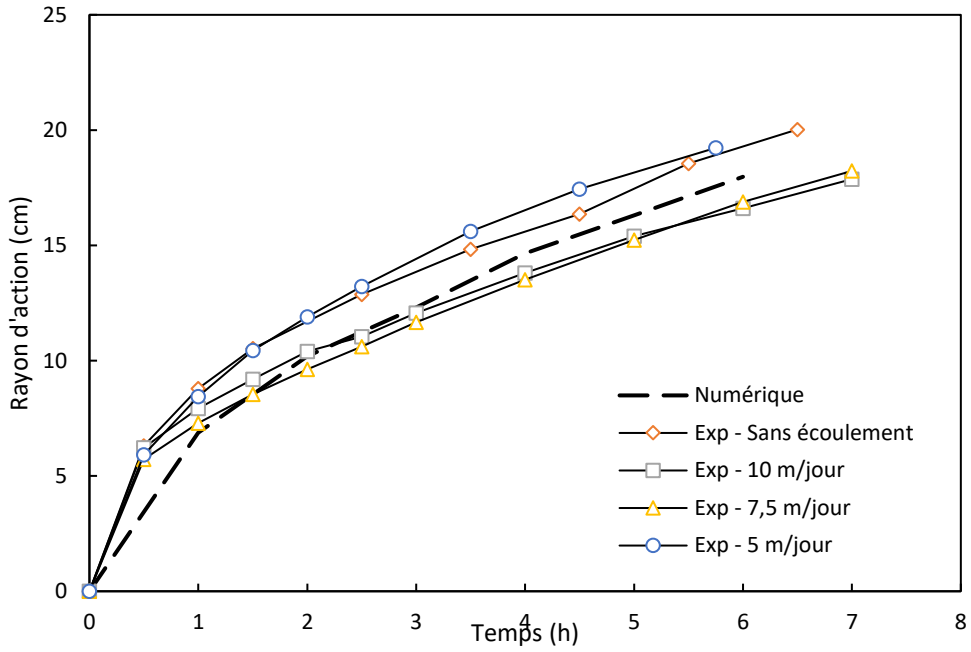


Figure 122. Comparaison de l'évolution du rayon d'action en fonction du temps.

6.2.2. Champs de saturation

Le Tableau 22 et le Tableau 23 présentent l'évolution de la saturation en mousse forte durant la phase de stabilité, respectivement par modélisation numérique et par expérimentation. Afin d'évaluer seulement l'évolution de la mousse forte, les graphes issus de la modélisation représentent uniquement la zone où la saturation en mousse est comprise entre 0,95 et 1.

Bien que le modèle permet de mettre en évidence l'influence de la vitesse d'écoulement latéral sur la destruction, il ne représente pas fidèlement la destruction de la mousse en fonction du temps. Le délai avant le début de la destruction observable expérimentalement n'est pas retranscris dans la modélisation. De plus, l'écart de vitesse de destruction entre chaque cas est moins marqué dans la modélisation. Enfin, l'ajout d'un coefficient de diffusion numérique réduit artificiellement la surface de mousse forte pour le cas sans écoulement. Le modèle atteint donc ici ses limites sous sa formulation actuelle.

Tableau 22. Comparaison de l'évolution de la saturation en mousse forte durant la phase de stabilité. Temps après la fin de l'injection : 0-20h.

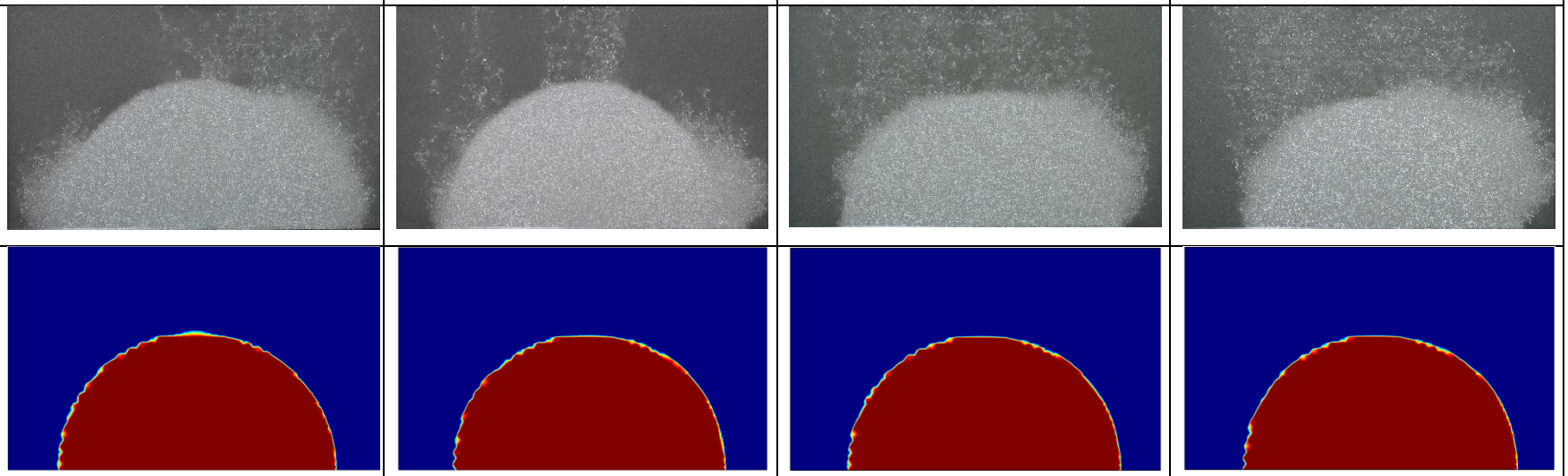
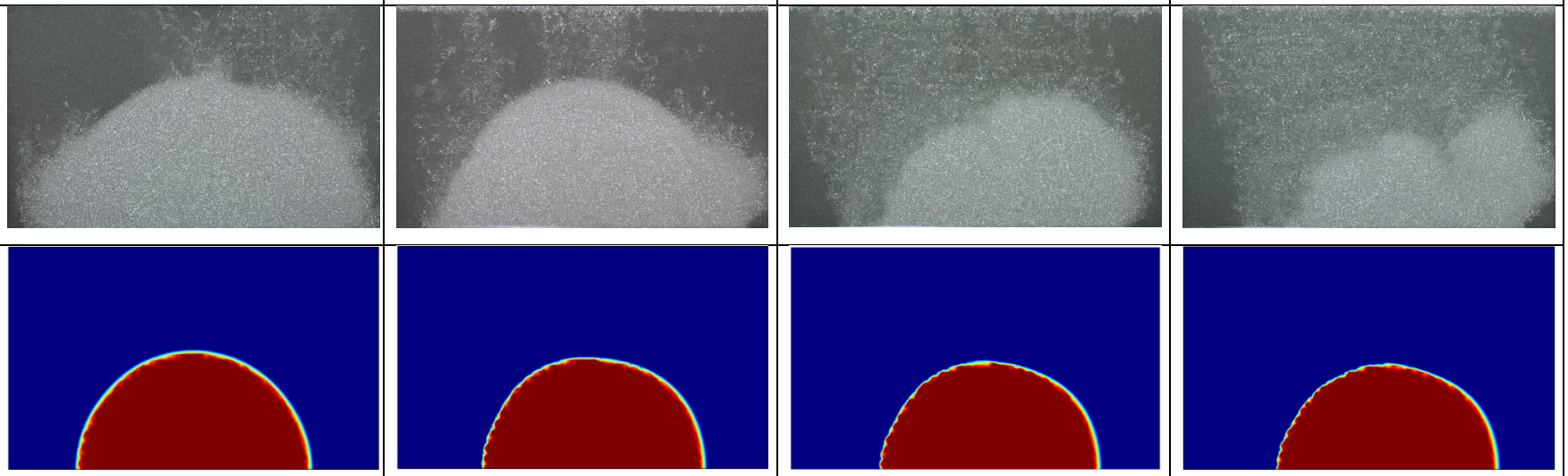
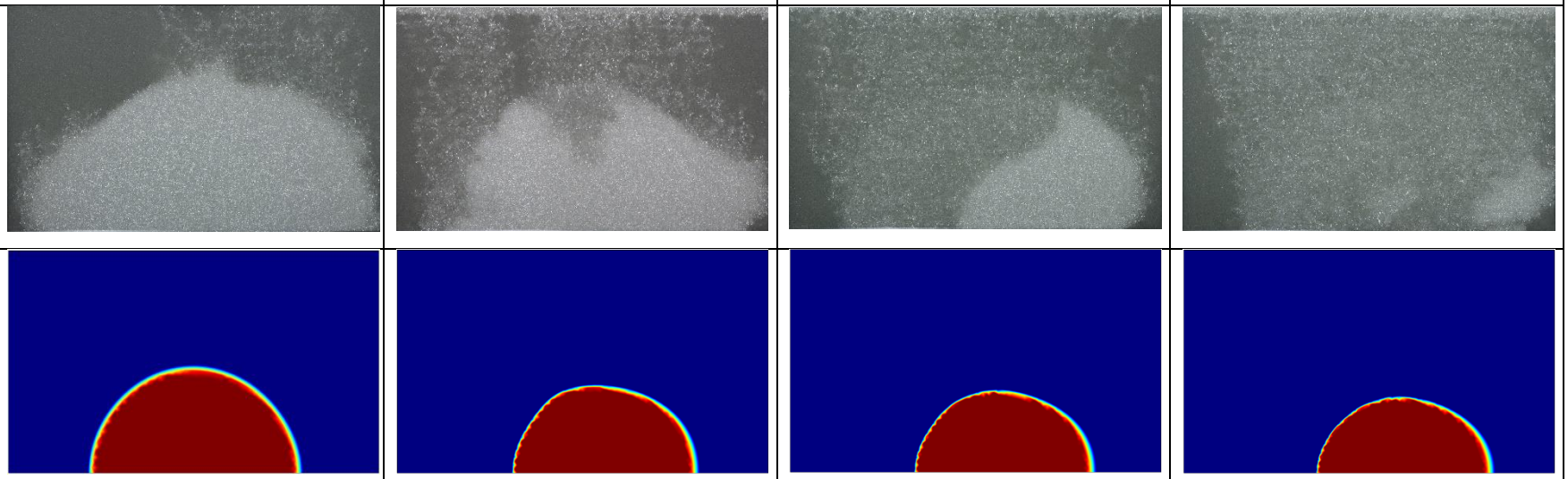
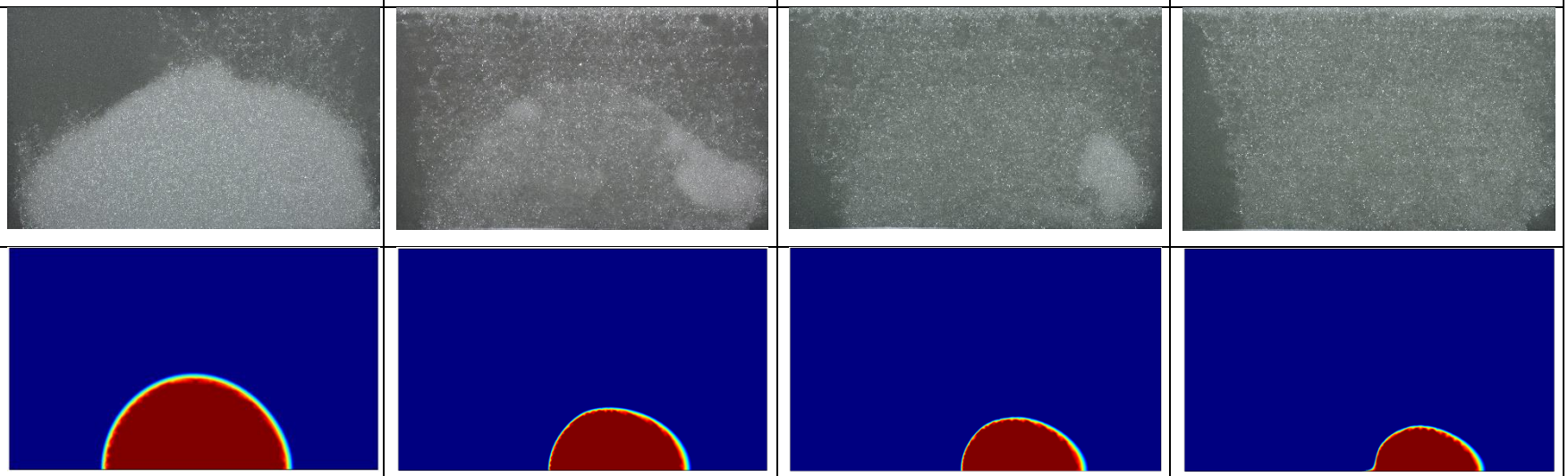
Temps	Sans écoulement	5 m/jour	7,5 m/jour	10 m/jour
0 h				
20 h				

Tableau 23. Comparaison de l'évolution de la saturation en mousse forte durant la phase de stabilité. Temps après la fin de l'injection : 40-60h.

Temps	Sans écoulement	5 m/jour	7,5 m/jour	10 m/jour
40 h				
60 h				

7. Conclusions intermédiaires

Ce chapitre a permis de modéliser l'écoulement de mousse en milieux poreux de forte perméabilité en utilisant une approche à l'échelle de Darcy. Parmi les formulations étudiées dans la littérature, le modèle du mélange fut choisi pour sa simplicité et sa compatibilité avec les hypothèses associées au cas étudiés.

Cette approche, redémontrée au cours de ce chapitre, initialement développée pour des écoulements diphasiques conventionnels en milieu poreux (eau/huile) a été adaptée aux écoulement de mousse en y incorporant un coefficient de réduction de mobilité MRF et en emmenant des hypothèse simplificatrices (gravité et effets capillaires négligeables).

Les phénomènes identifiés dans les chapitres précédents comme ayant un impact significatif sur la mobilité de la mousse ont été transcris théoriquement dans la formulation du MRF. Les données expérimentales ont permis de déterminer les paramètres nécessaires à leur transcription mathématique. Ces phénomènes sont le comportement non-Newtonien, l'influence de la pression capillaire critique et l'influence de la concentration en tensioactif. Pour modéliser ce dernier, il a été nécessaire de coupler les équations d'écoulement diphasique avec des équations d'advection-diffusion en milieu poreux. Le modèle théorique a été implanté dans le logiciel commercial Comsol® en modifiant les formulations préexistantes.

Les résultats du modèle ont été confrontés aux résultats expérimentaux afin de valider celui-ci. La plupart de ces résultats ont pu être correctement reproduits. Le modèle montre toutefois ses limites lors de la modélisation de la phase de stabilité où l'influence de la vitesse de l'écoulement latéral n'a pas pu être reproduite fidèlement.

Les perspectives de ces travaux sont nombreuses. L'implantation numérique des équations peut être améliorée pour pouvoir se passer des termes de stabilisation numérique, pour l'instant nécessaire à la convergence du modèle. De plus, ce modèle est focalisé sur la simulation numérique des écoulements de mousses fortes. Il serait d'intéressant de poursuivre ces travaux en incorporant les écoulements de mousse faible et de gaz libre.

Un modèle perfectionné pourra être utilisé pour modéliser l'injection de mousse à effet bloquant sur des milieux réels. Ces résultats permettraient d'améliorer l'efficacité de cette technique de dépollution en optimisant le nombre de points d'injection, leurs emplacements et les paramètres opérationnels (débit d'injection, durée avant réinjection).

Chapitre 7

Conclusions générales et perspectives

1. Conclusions générales

L'objectif principal de cette thèse était de comprendre l'effet bloquant de la mousse en milieu de haute perméabilité, afin d'évaluer la faisabilité de l'injection de mousse pour confiner une zone contaminée dans une nappe souterraine. Pour y parvenir, la problématique a été étudiée en plusieurs étapes avec une construction logique, les résultats de chaque étape servant de base à la suivante. Le tensioactif utilisé pour générer la mousse a été choisi grâce à des tests de sélection de molécule hors milieux poreux. Le comportement général de la mousse a été étudié expérimentalement dans des colonnes poreuses, permettant d'identifier les meilleures conditions pour générer une mousse à effet bloquant. Ensuite, cet effet bloquant a été spécifiquement étudié dans des bacs poreux. Enfin, les données expérimentales ont permis d'alimenter un modèle numérique permettant de confronter les considérations théoriques et les résultats expérimentaux. Parallèlement à cet objectif principal, l'ensemble des travaux menés au cours de cette thèse ont permis d'améliorer l'état de connaissance des écoulements de mousse en milieux poreux de haute perméabilité. Ci-dessous sont résumées les principales conclusions de ces travaux.

- Les tests de sélection des tensioactifs menés hors milieux poreux ont permis d'établir une comparaison des performances de diverses formulations. L'alpha-olefine sulfonate (AOS) a été choisi et s'est avéré être un tensioactif adapté pour générer des mousses à effet bloquant en milieux poreux de haute perméabilité. D'autres formulations, notamment un mélange de tensioactifs, ont présenté des caractéristiques pouvant être intéressantes. L'augmentation de la stabilité et de la viscosité d'une mousse doit cependant être utilisée avec prudence car des pressions d'injection importantes peuvent conduire à des fractures ou modifications de la matrice poreuse.
- Il a été montré hors milieux poreux qu'une concentration en tensioactif de quatre fois la concentration micellaire critique (CMC) permet d'obtenir des propriétés optimales en termes de moussabilité et de stabilité, tout en minimisant la masse de tensioactif dans la solution. Une concentration trop élevée peut avoir des conséquences négatives sur la stabilité de la mousse.
- L'ajout de polymère viscosifiant (gomme de Guar) permet d'augmenter la stabilité hors milieux poreux au détriment de la moussabilité. Lors des écoulements en milieux poreux, l'ajout de polymère n'a pas permis d'augmenter la viscosité apparente de la mousse. Cependant, l'ajout de polymère permet d'améliorer la stabilité de la mousse à un écoulement d'eau incident en colonnes poreuses.

- La co-injection de gaz et de solution de tensioactif dans un milieu de haute perméabilité est insuffisante pour générer une mousse forte très visqueuse. La prégénération de la mousse dans un milieu poreux de faible perméabilité avant injection dans un milieu poreux de haute perméabilité est indispensable à la génération d'une mousse forte. L'établissement de l'écoulement de mousse forte n'est pas immédiat et est précédé d'un écoulement de mousse faible.
- En utilisant la prégénération, la mousse présente une très forte viscosité apparente en milieux de haute perméabilité, conformément aux résultats de la littérature sur des milieux moins perméables. Le comportement non-Newtonien rhéofluidifiant de la mousse en milieu poreux de haute perméabilité a pu être mis en évidence.
- Confrontée à un écoulement d'eau (ce qui correspond à une situation d'injection de mousse dans une nappe souterraine pour bloquer une zone contaminée), la mousse détourne la totalité de cet écoulement grâce à sa viscosité apparente élevée.
- Lors des expériences en bacs poreux à deux dimensions, la mousse s'écoule telle une mousse forte, très visqueuse et non affectée par la gravité, accompagnée d'une mousse faible et d'échappement de gaz libre aux abords de l'interface de la mousse forte. L'écoulement inhibe la formation de mousse faible en amont. La vitesse de l'écoulement latéral n'a pas d'influence sur la génération de la mousse forte, dans la limite des gammes de vitesse expérimentées. La pression d'injection se stabilise rapidement malgré la propagation de la mousse.
- La stabilité de la mousse forte au cours du temps, après arrêt de l'injection, est de l'ordre de quelques dizaines d'heures pour une vitesse d'écoulement latéral d'eau de 10 m/jour. Cette stabilité est fortement dépendante de la vitesse de l'écoulement latéral. En l'absence d'écoulement latéral, la mousse n'est pas détruite. L'apport de tensioactif en amont de l'écoulement latéral permet d'améliorer grandement la stabilité de la mousse forte, et donc d'augmenter la durée du détournement strict de l'écoulement d'eau.
- Après destruction de la mousse forte, la zone d'injection de la mousse et les zones environnantes restent fortement saturées en gaz. Cela permet, par un effet de perméabilité relative, de réduire considérablement la mobilité de l'eau dans ces zones malgré la perte de viscosité apparente. La mousse opère ainsi un double rôle pour une application de blocage : un blocage « strict » de la mousse forte grâce à sa viscosité qui détourne l'intégralité de l'écoulement, puis un blocage « diffus », plus durable, par l'apport de gaz dans le milieu poreux.

- L'approche numérique mise en place dans cette étude a permis de modéliser le comportement de la mousse forte à l'échelle de Darcy. Les principaux phénomènes affectant la mobilité de la mousse, mis en évidence par les observations expérimentales, ont été transcrits numériquement : la concentration en tensioactif, le comportement non-Newtonien et la pression capillaire critique. Cette approche a permis de modéliser correctement les champs de saturation et de pression lors de la propagation de la mousse, ainsi que la stabilité de la mousse dans une moindre mesure. Ce modèle est néanmoins spécifique aux conditions expérimentales utilisées dans ces études.

2. Perspectives

Bien que les conclusions de ces travaux permettent de mieux appréhender les écoulements de mousse en milieux de haute perméabilité, certains sujets demandent à être approfondis et étendus afin de mieux comprendre ces écoulements dans leur globalité.

2.1. Perspectives expérimentales

- La formulation de la solution de tensioactif peut être améliorée par des travaux spécifiques et approfondis, notamment pour augmenter la stabilité de la mousse. Les conclusions suggèrent des pistes prometteuses pour la formulation d'une mousse de blocage, telles que le mélange de tensioactifs et l'ajout de polymère. La concentration en tensioactif n'a été étudiée que d'un point de vue des performances hors milieux poreux (moussabilité et stabilité), l'étude de l'influence de la concentration sur l'injection et la stabilité de la mousse en milieux poreux pourrait être judicieuse pour compléter la connaissance de ces écoulements.
- Les conclusions présentées sont restreintes par les gammes des paramètres étudiés. Il serait intéressant d'étendre les gammes des paramètres, notamment le débit d'injection de mousse et la vitesse de l'écoulement latéral d'eau. Cela permettrait de vérifier que les conclusions présentées sont plus largement généralisables.
- Les résultats ont été obtenus dans des milieux modèles en laboratoire. L'adaptation de ces résultats à des milieux poreux naturels est nécessaire pour maîtriser avec plus de précision l'application de cette méthode de dépollution sur le terrain. La grande hétérogénéité de ces milieux naturels devrait être la principale difficulté à surmonter. L'adsorption, la salinité de l'eau environnante et la présence de polluants soulèvent également d'importantes interrogations.

2.2. Perspectives numériques

- Le modèle présenté dans ce manuscrit considère seulement les phénomènes dominants, négligeant l'effet de la gravité et les effets capillaires lors de l'écoulement de mousse en milieu de haute perméabilité. L'incorporation de ces phénomènes pourraient permettre d'améliorer la précision des résultats.
- La modélisation de la mousse faible et des échappements de gaz libre permettraient d'obtenir des résultats plus représentatifs d'un réel écoulement de mousse en milieux poreux. Enfin, un travail approfondi sur la méthode de résolution numérique des équations différentielles régissant l'écoulement permettrait d'améliorer la précision du modèle.

- Le modèle présenté devrait être confronté à d'autres conditions expérimentales pour juger de sa capacité à être généralisé. La sensibilité de la mousse aux conditions expérimentales (formulation du tensioactif, caractéristiques du milieu poreux, conditions d'injection, etc.) observée au cours de ces études montrent la grande difficulté de réaliser un modèle généralisé de l'écoulement de mousse en milieu poreux.

2.3. Perspectives d'application sur le terrain

La faisabilité du blocage par injection de mousse dans un milieu de haute perméabilité en présence d'un écoulement souterrain de forte vélocité (environ 10 m/jour sur le site d'étude) doit être démontrée par une application de cette technique sur le terrain. Dans cette perspective, les résultats obtenus permettent d'orienter la mise en application de l'injection de mousse sur le terrain.

- La prégénération de la mousse en surface est essentielle à la formation d'une mousse forte dans le milieu poreux de haute perméabilité.
- Bien que les résultats ne montrent pas de limite au rayon d'influence au cours de l'injection, il est raisonnable d'envisager un rayon d'influence de deux mètres maximum à cause des incertitudes dû à l'hétérogénéité du milieu.
- Une concentration en tensioactif de quatre fois la CMC est suffisante pour générer de la mousse. La concentration peut être augmentée pour réduire les risques de pertes par adsorption. Une concentration plus élevée mènera toutefois à davantage de rejets dans la nappe souterraine et à une possible mobilisation des polluants adsorbés dans la zone d'injection. Une qualité de 85 % est adaptée à la génération de la mousse.
- A cause des pertes de gaz par la mousse faible et les échappements de gaz libre, le volume de mousse à injecter doit être bien supérieur au volume de mousse forte désiré dans le sol. Ce volume dépend fortement de la nature du milieu poreux. Il est raisonnable d'anticiper au moins trois volumes de mousses à injecter pour un volume de mousse forte générée dans le milieu.
- La stabilité de la mousse forte ne devrait pas dépasser quelques dizaines d'heures après l'arrêt de l'injection. En revanche, l'apport de gaz de façon homogène dans la zone grâce à la mousse persistera de façon plus durable dans le milieu et permettra de réduire considérablement les vitesses d'écoulement dans la zone, même après destruction de la mousse. Une réinjection régulière de mousse devrait donc d'assurer la réduction des vitesses d'écoulement.

- Enfin, la surveillance soutenue de l'avancée du front de mousse et de la vitesse de l'écoulement souterrain aux abords du point d'injection est essentielle pour juger de l'efficacité de la technique et pour adapter les paramètres d'injection en fonction des résultats obtenus.

Annexes

Annexe A. Modèles des fonctions pression capillaire et des fonctions perméabilité relative

	Parameters[a]	Capillary Pressure Function	Permeability Function
VGM & VGB (van Genuchten–Mualem/Burdine)	$\theta_{ws},\theta_{wr},k$ α_{vg} n η	$S_{ew}=\frac{1}{[1+(\alpha_{vg}h_c)^n]^m}$	(1) VGM: $(m=1-1/n)$ $k_{rw}=S_{ew}^{\eta}[1-(1-S_{ew}^{\frac{1}{m}})^m]^2$ $k_{rn}=(1-S_{ew})^{\eta}[1-S_{ew}^{\frac{1}{m}}]^{2m}$ (2) VGB: $(m=1-2/n)$ $k_{rw}=S_{ew}^{2}[1-(1-S_{ew}^{\frac{1}{m}})^m]$ $k_{rn}=(1-S_{ew})^{2}[1-S_{ew}^{\frac{1}{m}}]^m$
BCM & BCB (Brook and Corey–Mualem/Burdine)	$\theta_{ws},\theta_{wr},k$ h_e λ η	$S_{ew}=\left(\frac{h_e}{h_c}\right)^{\wedge}$	(3) BCM: $k_{rw}=S_{ew}^{\eta+2+2/\lambda}$ $k_{rn}=(1-S_{ew})^{\eta}[1-S_{ew}^{1+1/\lambda}]^2$ (4) BCB: $k_{rw}=S_{ew}^{3+2/\lambda}$ $k_{rn}=(1-S_{ew})^{2}[1-S_{ew}^{1+2/\lambda}]$
LNM (Lognormal Distribution–Mualem)	$\theta_{ws},\theta_{wr},k$ h_m σ η	$S_{ew}=F_n[\ln(h_m/h_c)/\sigma]$	$k_{rw}=S_{ew}^{\eta}\{F_n[F_n^{-1}(S_{ew})+\sigma]\}^2$ $k_{rn}=(1-S_{ew})^{\eta}\{1-F_n[F_n^{-1}(S_{ew})+\sigma]\}^2$ $F_n(x)=\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{x}\exp\left(-\frac{x^2}{2}\right)dx=\frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{x}{\sqrt{2}}\right)$
BRB (Brutsaert–Burdine)	$\theta_{ws},\theta_{wr},k$ β γ	$S_{ew}=\frac{\beta}{\beta+h_c^{\gamma}}$	$k_{rw}=S_{ew}^{2}[1-(1-S_{ew})^{1-2/\gamma}]$ $k_{rn}=(1-S_{ew})^{3-2/\gamma}$
GDM (Gardner–Mualem)	$\theta_{ws},\theta_{wr},k$ α_g	$S_{ew}=(1+\frac{1}{2}\alpha_g h_c)e^{-\frac{1}{2}\alpha_g h_c}$	$k_{rw}=e^{-\alpha_g h_c}$ $k_{rn}=(1-e^{-\frac{1}{2}\alpha_g h_c})^2$

[a]In parameter optimization the following parameters were fixed: θ_{ws} (measured value) and $\eta=0.5$.

Figure A-1. Résumé des modèles des fonctions pression capillaire et fonctions perméabilité relative en fonction de la saturation (Chen, Hopmans and Grismer, 1999).

Annexe B. Tension de surface des tensioactifs en fonction de la concentration

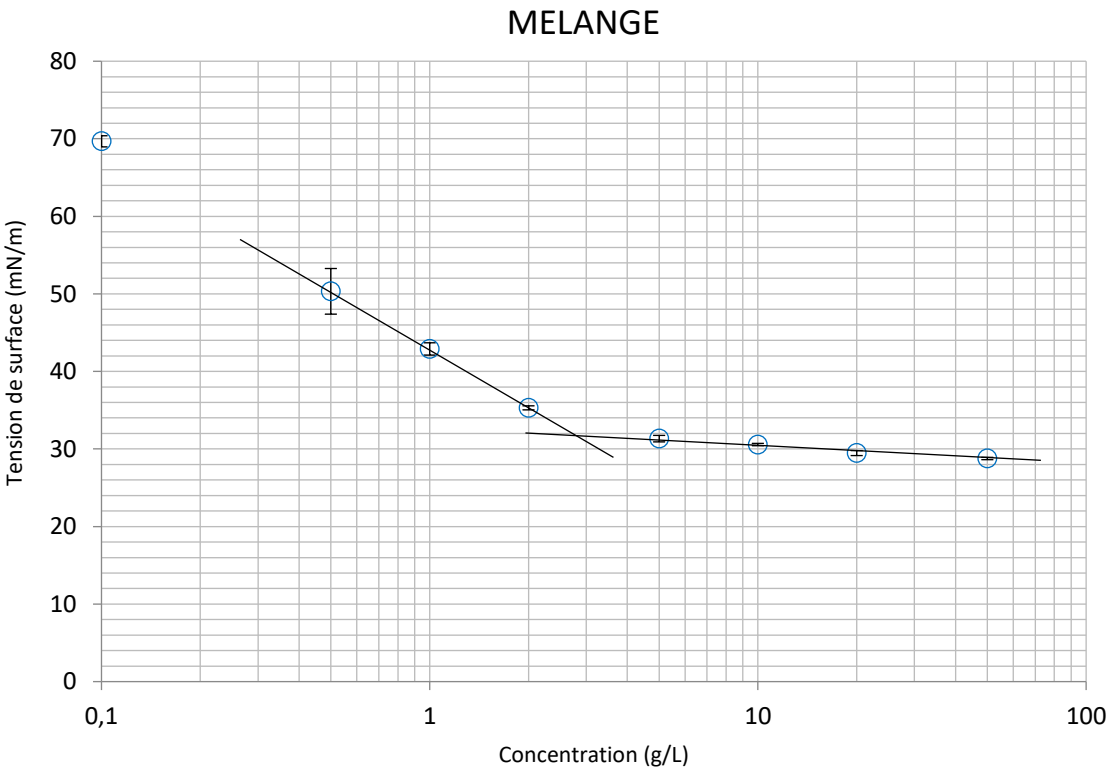


Figure B-1. Tension de surface en fonction de la concentration pour le MELANGE.

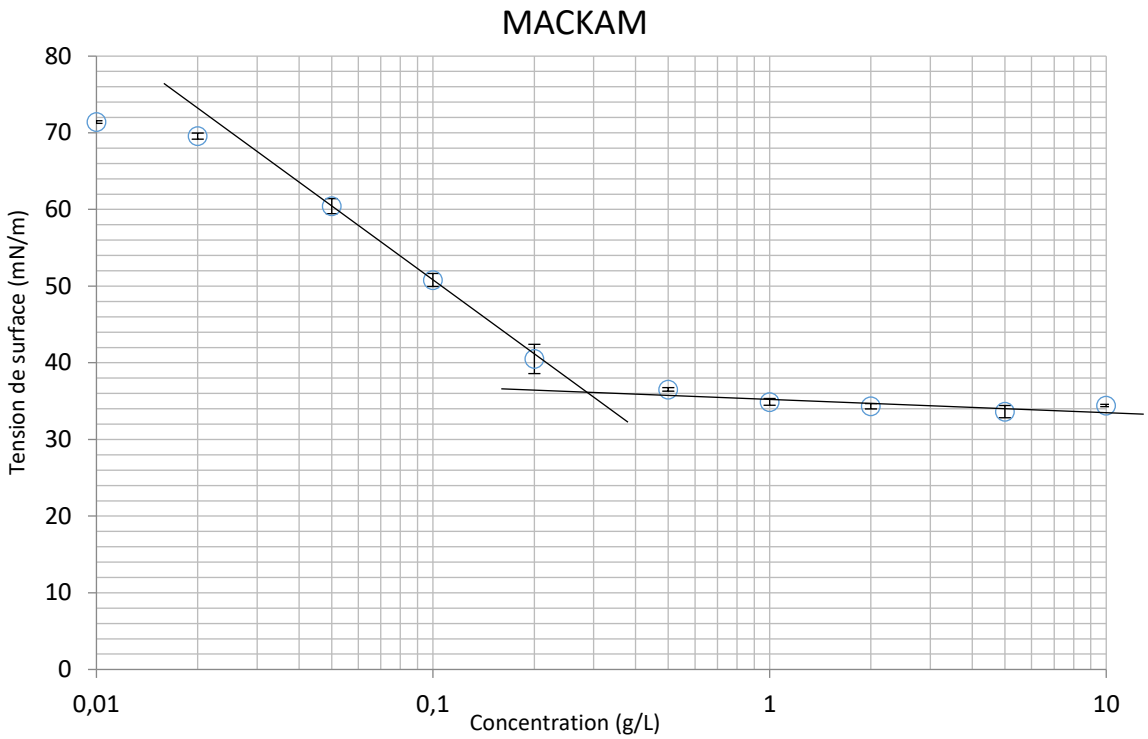


Figure B-2. Tension de surface en fonction de la concentration pour le MACKAM.

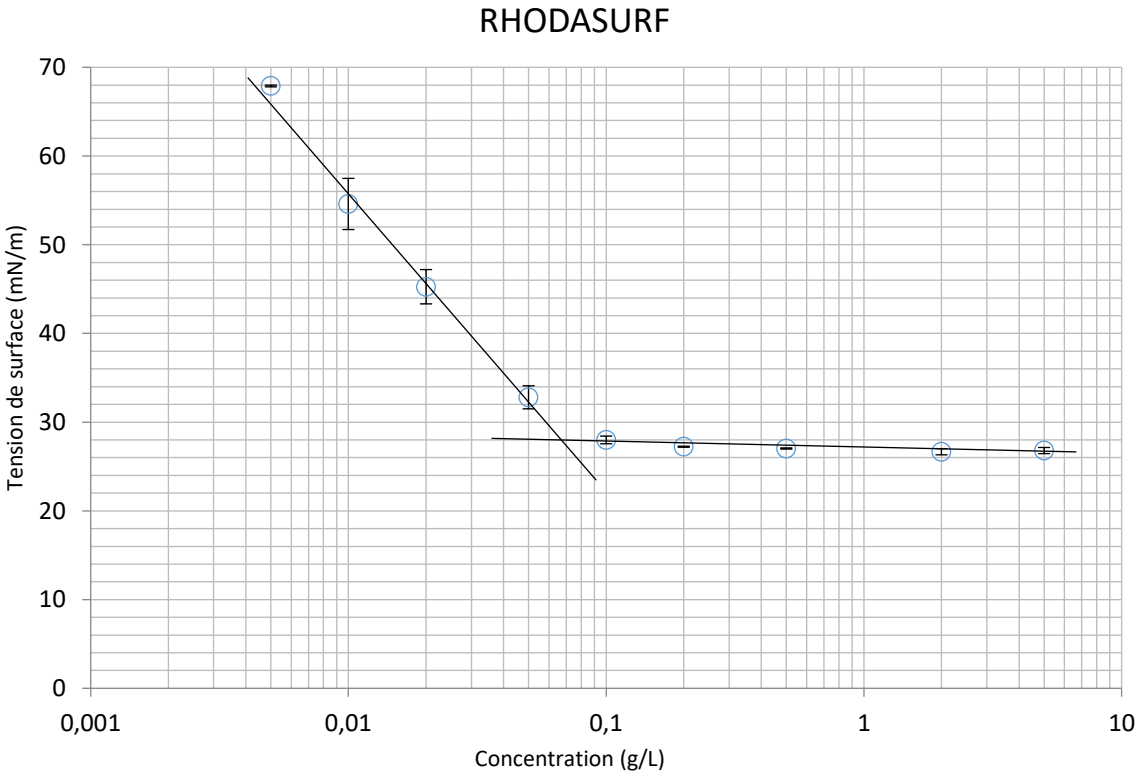


Figure B-3. Tension de surface en fonction de la concentration pour le RHODASURF.

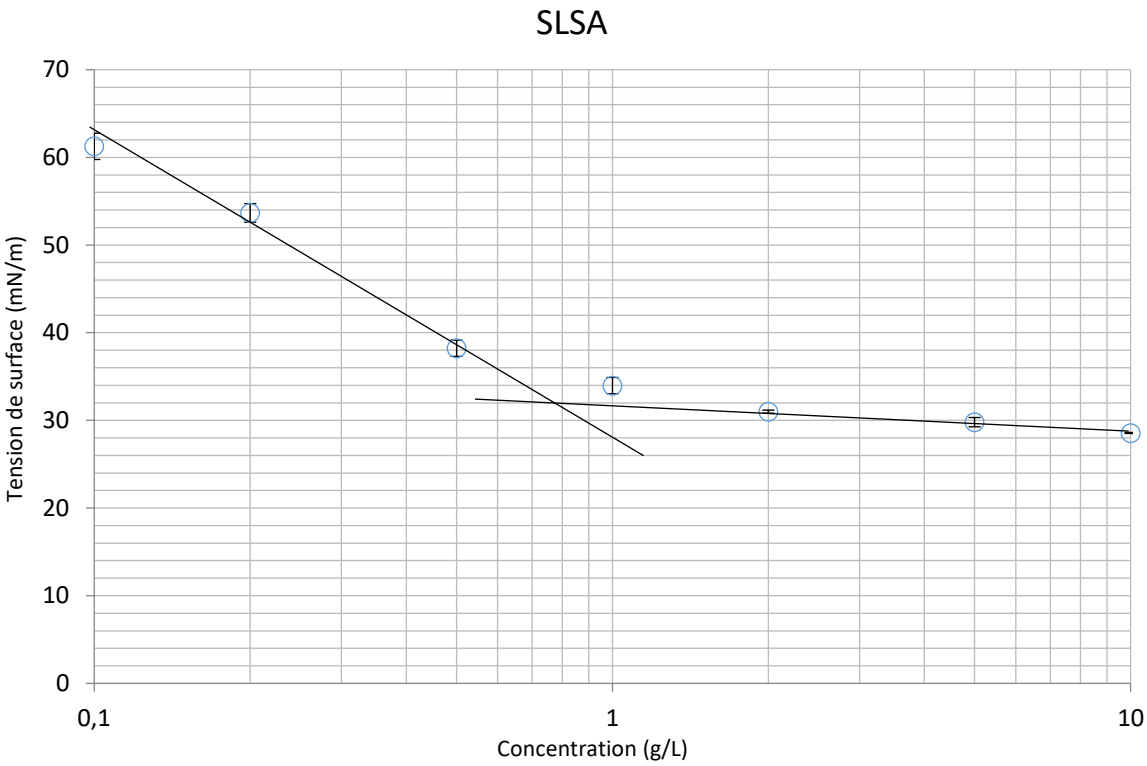


Figure B-4. Tension de surface en fonction de la concentration pour le SLSA.

Annexe C. Liste des expériences réalisées en colonnes

Tableau C-1. Listes des expériences réalisées en colonnes et mesures principales associées.

Tensioactif	Milieu poreux	Perméabilité (m^2)	Prégénérateur	RF (-)	S_l (-)	RF_{res} (-)
AOS	Billes 4 mm	$1{,}2\times10^{-8}$	Sable fin BR37	5126	0,033	-
AOS	Billes 2 mm	$3{,}6\times10^{-9}$	Sable fin BR37	3853	0,049	-
AOS	Billes 1 mm	$8{,}6\times10^{-10}$	Sable fin BR37	2383	0,100	68
AOS	Billes 1 mm	$8{,}5\times10^{-10}$	Sable fin BR37	2636	0,058	-
AOS	Billes 1 mm	$9{,}4\times10^{-10}$	Sable fin BR37	3169	-	-
AOS	Sable BB	$4{,}4\times10^{-10}$	Sable fin BR37	1846	0,070	-
AOS	Sable BB	$4{,}5\times10^{-10}$	Sable fin BR37	1922	0,098	256
AOS	Sable BB	$4{,}3\times10^{-10}$	Sable fin BR37	2049	0,096	302
AOS	Sable BB	$4{,}2\times10^{-10}$	Sable fin BR37	1927	0,082	210
AOS	Sable BB	$4{,}9\times10^{-10}$	Sable fin 0,1/0,6	1760	0,103	-
AOS	Sable BB	$4{,}4\times10^{-10}$	Sable fin 0,4/0,9	1963	0,113	-
AOS	Sable BB	$3{,}8\times10^{-10}$	Co-injection	131	0,21	52
AOS+Guar	Sable BB	$4{,}2\times10^{-10}$	Sable fin BR37	1903	0,11	400
AOS+Guar	Sable BB	$4{,}4\times10^{-10}$	Sable fin BR37	-	-	452
MELANGE	Billes 1 mm	$7{,}9\times10^{-10}$	Sable fin BR37	4108	0,067	-
MELANGE	Billes 1 mm	$7{,}6\times10^{-10}$	Sable fin BR37	4428	0,061	-
MELANGE	Billes 1 mm	$7{,}2\times10^{-10}$	Sable fin BR37	3988	0,046	18
MELANGE	Sable BB	$4{,}5\times10^{-10}$	Sable fin BR37	4083	0,086	-
MELANGE	Sable BB	$3{,}9\times10^{-10}$	Sable fin BR37	4150	0,093	-
MELANGE	Sable Axton	$2{,}7\times10^{-10}$	Sable fin BR37	3121	0,110	53

Annexe D. Liste des expériences réalisées en bacs

Tableau D-1. Récapitulatif des expériences conduites en bac.

Numéro de l'expérience	Taille du bac	Type d'écoulement latéral	Vitesse de l'écoulement latéral
3	S	Ouvert	10 m/jour
4	S	Ouvert	10 m/jour
6	S	Ouvert	10 m/jour
7	S	Sans	-
9	S	Ouvert	10 m/jour
10	S	Ouvert	10 m/jour
11	S	Sans	-
12	S	Sans	-
13	S	Fermé	10 m/jour
14	S	Fermé	10 m/jour
15	L	Sans	-
16	M	Ouvert	5 m/jour
17	M	Ouvert	7,5 m/jour
18	M	Ouvert	10 m/jour
19	L	Sans	-
20	M	Sans	-
22	L	Ouvert	1,4 m/jour

Annexe E. Schématisation de l'utilisation de l'algorithme

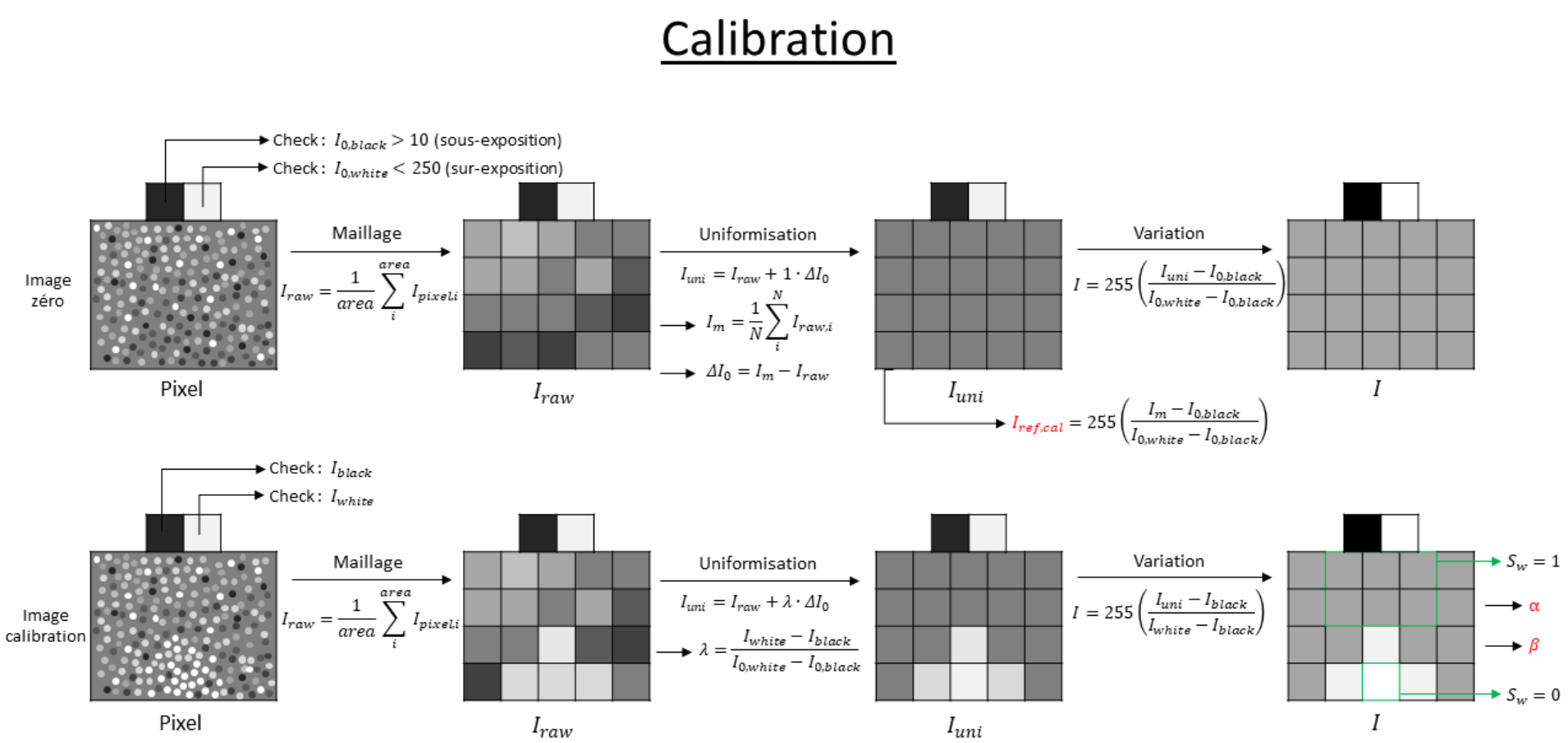


Figure E-1. Schématisation du principe de l'algorithme de traitement d'image. Etape de calibration. En rouge sont désignés les paramètres de sortie de la

calibration.

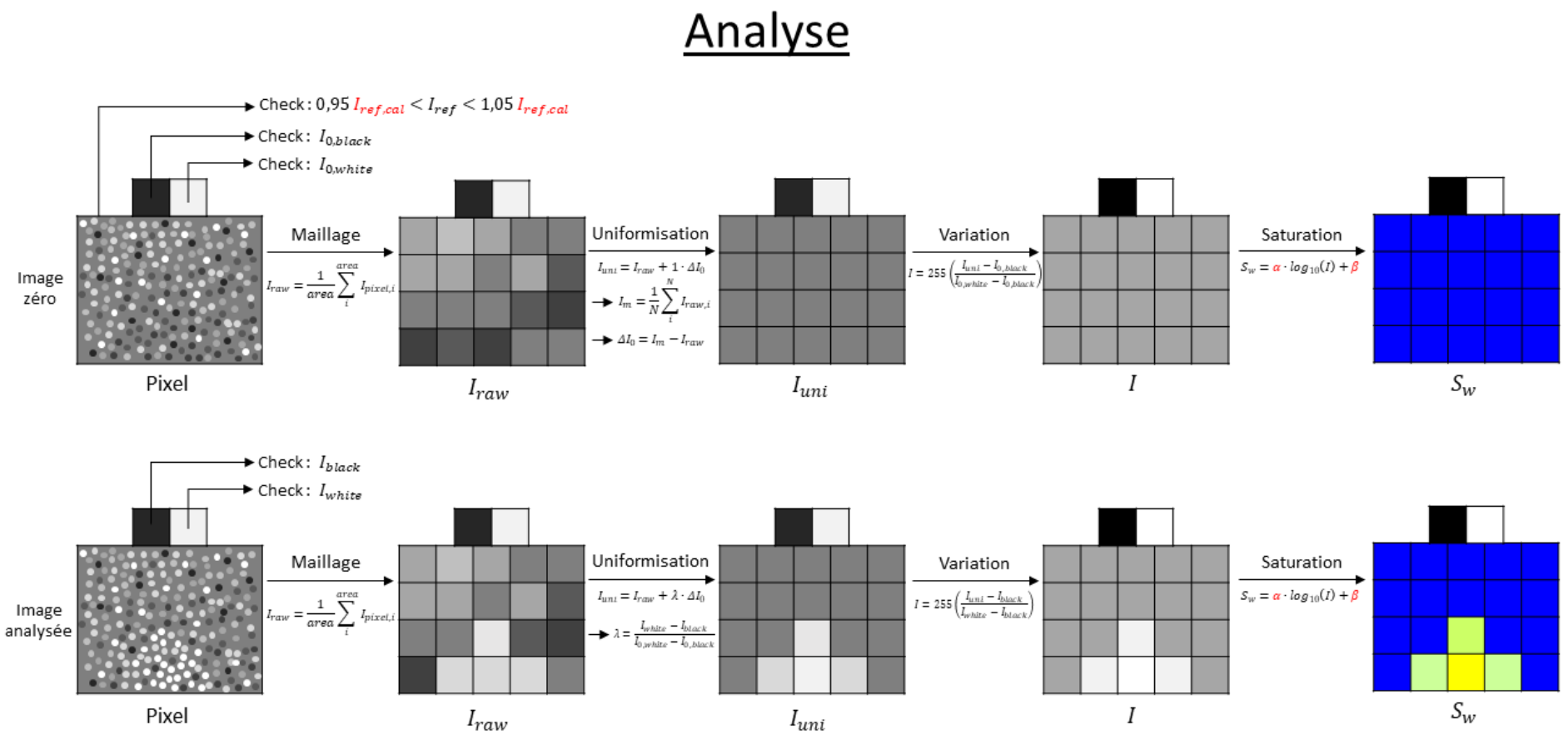


Figure E-2. Schématisation de l'utilisation de l'algorithme. Etape d'analyse. En rouge sont désignés les paramètres issus de la calibration.

Annexe F. Exemple de motif de coalescence

Figure F-1. Exemple de motif de coalescence lors d'une injection avec écoulement latéral (Bac L #22). En rouge sont identifiées les zones de coalescence.

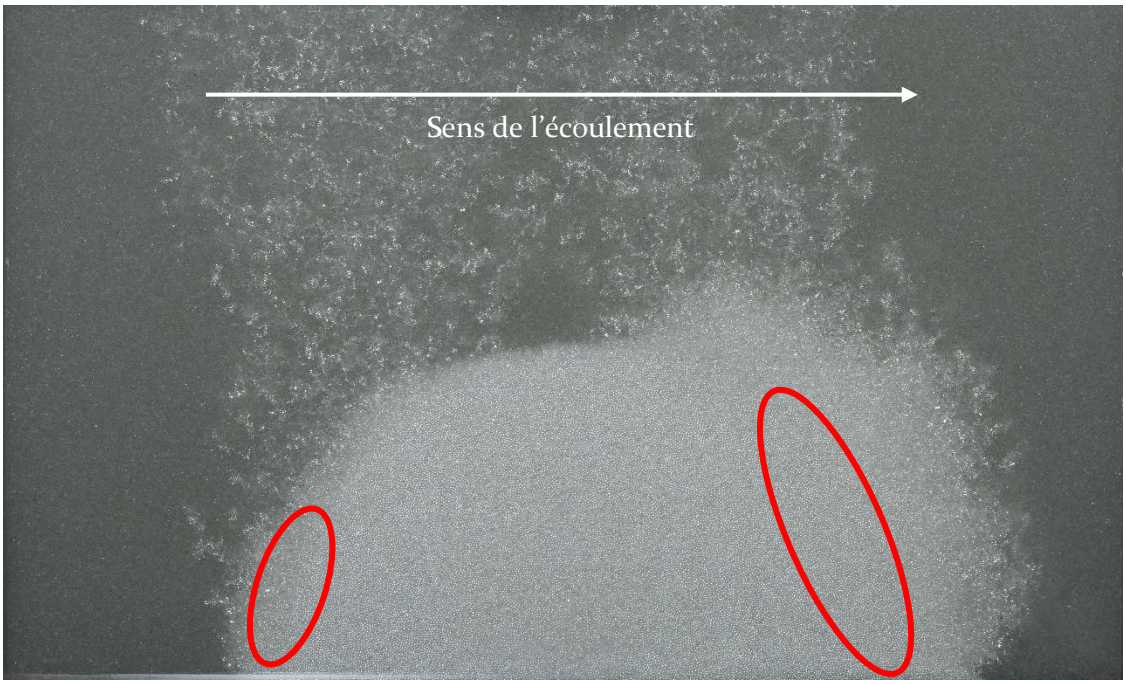
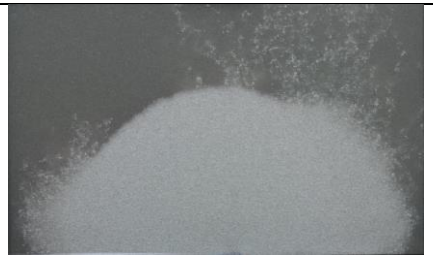
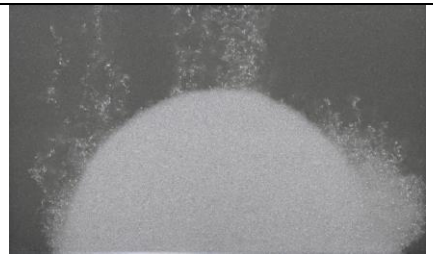
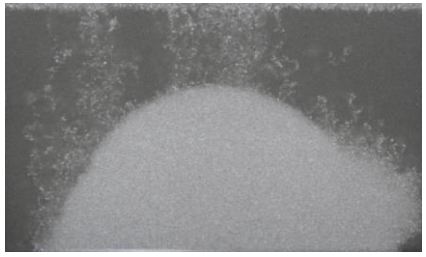
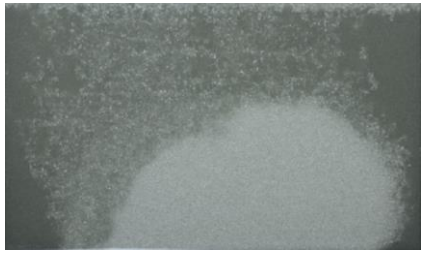
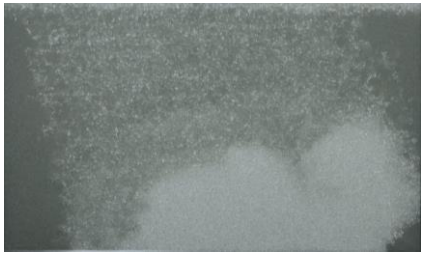
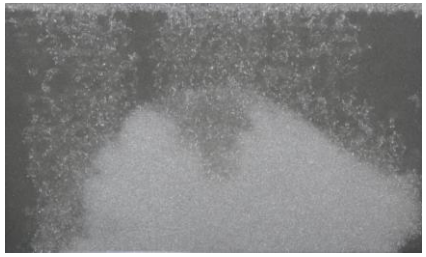
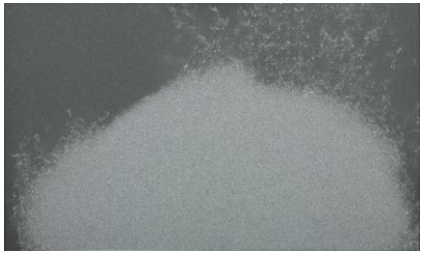


Figure F-2. Exemple de motif de coalescence lors d'une injection avec écoulement latéral (Bac M #18). En rouge sont identifiées les zones de coalescence.

Annexe G. Evolution des motifs de mousse pendant la stabilité

Tableau G-1. Evolution des motifs de mousse durant la phase de stabilité. Temps après la fin de l'injection.

Temps	Sans écoulement	5 m/jour	7,5 m/jour	10 m/jour
0 h				
20 h				
40 h				
60 h				

Annexe H. Développement mathématique de modèle « pression-pression »

En supposant les fluides incompressibles, il est possible de simplifier par la masse volumique dans l'équation de conservation de le masse (80). En y incorporant la loi de Darcy généralisée (79), on obtient :

$$\phi \frac{\partial S_i}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla} \cdot \left(-\frac{\kappa_{int} k_{r,i}}{\mu_i} (\boldsymbol{\nabla} p_i + \rho_i \boldsymbol{g}) \right) = 0 \qquad (156)$$

En utilisant la définition de la saturation effective (83), le premier terme de l'équation (156) pour la phase mouillante devient :

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} = \ \phi \big(S_{s,w} - \ S_{r,w}\big) \frac{\partial Se_w}{\partial \mathrm{t}} = \big(\theta_{s,w} - \theta_{r,w}\big) \frac{\partial Se_w}{\partial \mathrm{t}} \\ = \ \big(\theta_{s,w} - \theta_{r,w}\big) \frac{\partial Se_w}{\partial p_c} \frac{\partial p_c}{\partial \mathrm{t}} \end{aligned} \qquad (157)$$

La capacité spécifique de la phase mouillante $C_{p,w}$ est définie comme :

$$C_{p,w} = -\big(\theta_{s,w} - \theta_{r,w}\big) \frac{\partial Se_w}{\partial p_c} \qquad (158)$$

En développant $\frac{\partial Se_w}{\partial p_c}$ à partir de la relation de Van Genuchten (85), on obtient :

$$C_{p,w} = \ \big(\theta_{s,w} - \theta_{r,w}\big) \frac{\alpha_{VG} m_{VG}}{1 - m_{VG}} {Se_w}^{1/m_{VG}} (1 - {Se_w}^{1/m_{VG}})^{m_{VG}} \qquad (159)$$

Enfin, en utilisant les équations (157) et (158), le premier terme des deux formes de l'équation (156) est développé :

$$\phi \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} = -C_{p,w} \frac{\partial p_c}{\partial \mathrm{t}} = \ -C_{p,w} \frac{\partial p_{nw}}{\partial \mathrm{t}} + C_{p,w} \frac{\partial p_w}{\partial \mathrm{t}} \qquad (160)$$

$$\phi \frac{\partial S_{nw}}{\partial \mathrm{t}} = \phi \frac{\partial (1 - S_w)}{\partial \mathrm{t}} = -\phi \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} = C_{p,w} \frac{\partial p_c}{\partial \mathrm{t}} = C_{p,w} \frac{\partial p_{nw}}{\partial \mathrm{t}} - C_{p,w} \frac{\partial p_w}{\partial \mathrm{t}} \qquad (161)$$

En intégrant ces développements aux deux formes de l'équation (156), les deux équations qui sont à la base du modèle d'écoulement multiphasique en milieu poreux sont obtenues. Ces équations sont couplées et utilisent uniquement les dérivées spatiales et temporelles des pressions des phases :

$$C_{p,w} \frac{\partial p_w}{\partial \mathrm{t}} + \ \boldsymbol{\nabla} \left(-\frac{\kappa_{int} k_{r,w}}{\mu_w} (\boldsymbol{\nabla} p_w + \rho_w \boldsymbol{g}) \right) = C_{p,w} \frac{\partial p_{nw}}{\partial \mathrm{t}} \qquad (162)$$

$$C_{p,w} \frac{\partial p_{nw}}{\partial \mathrm{t}} + \ \boldsymbol{\nabla} \left(-\frac{\kappa_{int} k_{r,nw}}{\mu_g} (\boldsymbol{\nabla} p_{nw} + \rho_{nw} \boldsymbol{g}) \right) = C_{p,w} \frac{\partial p_w}{\partial \mathrm{t}} \qquad (163)$$

Annexe I. Développement mathématique du « mixture model »

L'objectif est de déterminer une équation régissant la saturation. Pour cela, on soustrait l'une à l'autre les équations de conservation de la masse de chaque phase :

$$\phi\left(\rho_w \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} - \rho_{nw} \frac{\partial S_{nw}}{\partial \mathrm{t}}\right) + \boldsymbol{\nabla}(\rho_w \boldsymbol{q_w} - \rho_{nw} \boldsymbol{q_{nw}}) = 0 \qquad (164)$$

En remplaçant les vitesses $\boldsymbol{q_i}$ par les lois de Darcy de chaque phase et en utilisant $S_{nw} + S_w = 1$, il est obtenu :

$$\phi(\rho_w + \rho_{nw}) \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} - \boldsymbol{\nabla}\left[\rho_w \frac{\kappa_{int} k_{r,w}}{\mu_w}(\boldsymbol{\nabla} p_w - \rho_w \boldsymbol{g}) - \rho_{nw} \frac{\kappa_{int} k_{r,nw}}{\mu_{nw}}(\boldsymbol{\nabla} p_{nw} - \rho_{nw} \boldsymbol{g})\right] = 0 \qquad (165)$$

Par définition, $\rho_w \frac{k_{r,w}}{\mu_w} = \frac{\lambda_{r,w}}{\nu}$ et $\rho_{nw} \frac{k_{r,nw}}{\mu_{nw}} = \frac{\lambda_{r,nw}}{\nu}$, ce qui permet d'obtenir :

$$\phi(\rho_w + \rho_{nw}) \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} - \boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\kappa_{int}}{\nu}\left(\lambda_{r,w}(\boldsymbol{\nabla} p_w - \rho_w \boldsymbol{g}) - \lambda_{r,nw}(\boldsymbol{\nabla} p_{nw} - \rho_{nw} \boldsymbol{g})\right)\right] = 0 \qquad (166)$$

En réorganisant les termes, il est obtenu :

$$\phi(\rho_w + \rho_{nw}) \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} - \boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\kappa_{int}}{\nu}\left((\lambda_{r,w} \boldsymbol{\nabla} p_w - \lambda_{r,nw} \boldsymbol{\nabla} p_{nw}) - \left(\lambda_{r,w} \rho_w - \lambda_{r,nw} \rho_{nw}\right) \boldsymbol{g}\right)\right] = 0 \qquad (167)$$

En utilisant $\lambda_{r,w} + \lambda_{r,nw} = 1$, il est remarquable que :

$$\begin{aligned}
-2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\boldsymbol{\nabla} p_c + \left(\lambda_{r,w} - \lambda_{r,nw}\right)\boldsymbol{\nabla} p & \\
&= -2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}(\boldsymbol{\nabla} p_{nw} - \boldsymbol{\nabla} p_w) + \left(\lambda_{r,w} - \lambda_{r,nw}\right)\left(\lambda_{r,w}\boldsymbol{\nabla} p_w + \lambda_{r,nw}\boldsymbol{\nabla} p_{nw}\right) \\
= \left(2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw} + {\lambda_{r,w}}^2 - \lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\right)\boldsymbol{\nabla} p_w - \left(2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw} + {\lambda_{nw}}^2 - \lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\right)\boldsymbol{\nabla} p_{nw} & \\
&= \left({\lambda_{r,w}}^2 + \lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\right)\boldsymbol{\nabla} p_w - \left({\lambda_{r,nw}}^2 + \lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\right)\boldsymbol{\nabla} p_{nw} \\
-2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\boldsymbol{\nabla} p_c + \left(\lambda_{r,w} - \lambda_{r,nw}\right)\boldsymbol{\nabla} p &= \lambda_{r,w}\boldsymbol{\nabla} p_w - \lambda_{r,nw}\boldsymbol{\nabla} p_{nw} \qquad (168)
\end{aligned}$$

En remplaçant l'expression (168) dans l'équation (167) et en exprimant $\lambda_{r,nw} = 1 - \lambda_{r,w}$, il vient :

$$\phi(\rho_w + \rho_{nw}) \frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} - \boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\kappa_{int}}{\nu}\left(-2\lambda_{r,w}(1 - \lambda_{r,w})\boldsymbol{\nabla} p_c + (2\lambda_{r,w} - 1)\boldsymbol{\nabla} p - \left(\lambda_{r,w}\rho_w - (1 - \lambda_{r,w})\rho_{nw}\right)\boldsymbol{g}\right)\right] = 0 \qquad (169)$$

En utilisant la loi de Darcy du mélange, équation (105), pour substituer $\frac{\kappa_{int}}{\nu}\boldsymbol{\nabla} p$, un des terme de l'équation (169) devient :

$$\boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\kappa_{int}}{\nu}(2\lambda_{r,w}-1)\boldsymbol{\nabla}p\right]=\boldsymbol{\nabla}\left[(2\lambda_{r,w}-1)(-\rho\boldsymbol{q}+\frac{\kappa_{int}}{\nu}\rho_k\boldsymbol{g})\right]$$

$$=\boldsymbol{\nabla}\left[-2\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}\right]+\boldsymbol{\nabla}[\rho\boldsymbol{q}]+\boldsymbol{\nabla}\left[(2\lambda_{r,w}-1)\frac{\kappa_{int}}{\nu}\rho_k\boldsymbol{g}\right] \quad (170)$$

De plus, en reformulant l'équation de conservation de la masse du mélange, équation (94) :

$$\boldsymbol{\nabla}[\rho\boldsymbol{q}]=-\phi\frac{\partial\rho}{\partial \mathrm{t}} \quad (171)$$

En utilisant ces substitutions, l'équation (169) devient :

$$\begin{aligned}\phi(\rho_w+\rho_{nw})\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}}+\phi\frac{\partial\rho}{\partial \mathrm{t}}+\boldsymbol{\nabla}\left[2\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}\right]&\\ =\boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\kappa_{int}}{\nu}\left(-2\lambda_{r,w}(1-\lambda_{r,w})\boldsymbol{\nabla}p_c\right.\right.&\\ \left.\left.-\left(\lambda_{r,w}\rho_w-(1-\lambda_{r,w})\rho_{nw}-(2\lambda_{r,w}-1)\rho_k\right)\boldsymbol{g}\right)\right]&\end{aligned} \quad (172)$$

En utilisant la définition de la densité du mélange, équation (92), pour développer les dérivées temporelles de l'équation (172), et en utilisant $S_{nw}+S_w=1$, il est obtenu :

$$\phi(\rho_w+\rho_{nw})\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}}+\phi\frac{\partial\rho}{\partial \mathrm{t}}=\phi\left(2\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}}+\rho_{nw}\frac{\partial(S_w+S_{nw})}{\partial \mathrm{t}}\right)$$

$$\phi(\rho_w+\rho_{nw})\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}}+\phi\frac{\partial\rho}{\partial \mathrm{t}}=2\phi\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} \quad (173)$$

En développant les facteurs de $\boldsymbol{g}$ dans l'équation (172), et en utilisant $\lambda_{r,w}+\lambda_{r,nw}=1$, il est obtenu :

$$\begin{aligned}\left(\lambda_{r,w}\rho_w-(1-\lambda_{r,w})\rho_{nw}+(2\lambda_{r,w}-1)\rho_k\right)&\\ =\left(\lambda_{r,w}\rho_w-(1-\lambda_{r,w})\rho_{nw}-(2\lambda_{r,w}-1)(\lambda_{r,w}\rho_w+\lambda_{r,nw}\rho_{nw})\right)&\end{aligned}$$

$$=\rho_w\left(\lambda_{r,w}-(2{\lambda_{r,w}}^2-\lambda_{r,w})\right)-\rho_{nw}\left((1-\lambda_{r,w})+(2\lambda_{r,w}-1)(1-\lambda_{r,w})\right)$$

$$=\rho_w(2\lambda_{r,w}-2{\lambda_{r,w}}^2)-\rho_{nw}(2\lambda_{r,w}-2{\lambda_{r,w}}^2)$$

$$=2(\lambda_{r,w}-{\lambda_{r,w}}^2)(\rho_w-\rho_{nw})$$

$$\left(\lambda_{r,w}\rho_w-(1-\lambda_{r,w})\rho_{nw}+(2\lambda_{r,w}-1)\rho_k\right)=2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}(\rho_w-\rho_{nw}) \quad (174)$$

Enfin, en décomposant le gradient de la pression capillaire dans l'équation (172), il vient :

$$-2\lambda_{r,w}(1-\lambda_{r,w})\boldsymbol{\nabla}p_c = -2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\frac{\partial p_c}{\partial S_w}\boldsymbol{\nabla}S_w \qquad (175)$$

Avec ces simplifications, l'équation (172) devient :

$$2\phi\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla}\left[2\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}\right] = \boldsymbol{\nabla}\left[\frac{\kappa_{int}}{\nu}\left(-2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\frac{\partial p_c}{\partial S_w}\boldsymbol{\nabla}S_w - 2\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}(\rho_w-\rho_{nw})\boldsymbol{g}\right)\right] \qquad (176)$$

En simplifiant par 2 et en renommant certains groupes de termes, l'équation (176) devient :

$$\phi\rho_w\frac{\partial S_w}{\partial \mathrm{t}} + \boldsymbol{\nabla}.\left[\lambda_{r,w}\rho\boldsymbol{q}\right] = \boldsymbol{\nabla}.\left[D_c\boldsymbol{\nabla}S_w - \frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\Delta\rho\boldsymbol{g}\right] \qquad (177)$$

Avec $\Delta\rho$ la différence de densité entre la phase mouillante et non-mouillante (kg.m^{-3}), et avec D_c, appelé coefficient de diffusion capillaire (Pa.s), défini tel que :

$$D_c = -\frac{\kappa_{int}}{\nu}\lambda_{r,w}\lambda_{r,nw}\frac{\partial p_c}{\partial S_w} \qquad (178)$$

Annexe J. Modification du module « Two-phase Darcy's Law » de Comsol®

Comsol® propose un module pour résoudre les équations diphasiques en milieu poreux nommé « Two-Phase Darcy's Law ». Ce module est basé sur le squelette du « mixture model », sans prendre en compte la gravité. Cependant, ce module n'utilise pas exactement les mêmes équations. Celles-ci sont présentées ci-dessous.

La première équation différentielle permet de calculer la pression du mélange p :

$$\frac{\partial(\phi\rho)}{\partial t} + \boldsymbol{\nabla}.(\rho\boldsymbol{q}) = 0 \quad (179)$$

Avec

$$\boldsymbol{q} = -\frac{\kappa_{int}}{\mu}\boldsymbol{\nabla}p \quad (180)$$

$$\rho = S_w\rho_w + S_{nw}\rho_{nw} \quad (181)$$

$$\frac{1}{\mu} = S_w\frac{\kappa_{r,w}}{\mu_w} + S_{nw}\frac{\kappa_{r,nw}}{\mu_{nw}} \quad (182)$$

$$S_w + S_{nw} = 1 \quad (183)$$

La seconde équation différentielle permet de calculer la saturation S_w :

$$\frac{\partial(\phi S_w\rho_w)}{\partial t} + \boldsymbol{\nabla}.(S_w\rho_w\boldsymbol{q}) = \boldsymbol{\nabla}.\left(D_c\boldsymbol{\nabla}(S_w\rho_w)\right) \quad (184)$$

Avec

$$D_c = -\frac{\kappa_{r,w}}{\mu_w}\kappa_{int}(S_w - 1)\frac{\partial p_c}{\partial S_w} \quad (185)$$

En comparant ces équations avec le système d'équation du « mixture model » de Wang présenté en Partie 1.3, il est notable que la définition de la viscosité du mélange μ, équation (182), l'équation différentielle régissant la saturation, équation (184), et la définition de la diffusion capillaire D_c, équation (185), sont différentes, respectivement des équations (103), (106) et (107).

A notre connaissance, cette formulation proposée par Comsol® n'est soutenue par aucune théorie. Bien que la formulation de Chen, Huan and Ma (2006) soit donnée en référence dans la documentation (voir Partie 1.3), il semblerait qu'il s'agit d'une adaptation erronée construite à partir des formulations de Chen et de Wang. Ces modifications ont possiblement été effectuées pour que le modèle soit plus stable numériquement.

Cette formulation a donc été remplacée directement dans Comsol® par la formulation « mixture model » de Wang présentée en Partie 1.3. En Tableau est présenté comment la viscosité du mélange est directement modifié dans le langage Comsol®. Il est rappelé que la viscosité du mélange dans le « mixture model » de Wang s'écrit ainsi :

$$\mu = \rho\nu = \frac{\rho}{\frac{k_{r,w}}{\nu_w} + \frac{k_{r,nw}}{\nu_{nw}}} = \frac{\rho}{\rho_w \frac{k_{r,w}}{\mu_w} + \rho_{nw} \frac{k_{r,nw}}{\mu_{nw}}} \quad (186)$$

Tableau J-1. Modification de la définition de la viscosité du mélange dans Comsol®.

tpdl.mu	tpdl.rho/(tpdl.rho1*tpdl.kappar1/tpdl.mu1+tpdl.rho2*tpdl.kappar2/tpdl.mu2)

En Tableau est présentée la modification de l'équation différentielle exprimant le transport de la saturation dans le langage Comsol®. Dans cette formulation, $c1$ est la variable de l'équation différentielle et est définie telle que : $c1 = S_w\rho_w$.

Tableau J-2. Modification de l'équation de transport de la saturation dans Comsol®.

test(c1X)*tpdl.mu*tpdl.rho1*tpdl.kappar1/tpdl.mu1*tpdl.uX+test(c1Y)*tpdl.mu*tpdl.rho1* tpdl.kappar1/tpdl.mu1*tpdl.uY- test(c1X)*(tpdl.DcXX/tpdl.rho1*c1X+tpdl.DcXY/tpdl.rho1*c1Y)- test(c1Y)*(tpdl.DcYX/tpdl.rho1*c1X+tpdl.DcYY/tpdl.rho1*c1Y)

La définition de la diffusion capillaire ne sera pas modifiée car les effets capillaires sont considérés comme négligeables (voir Partie 3.1). Il est tout de même nécessaire d'ajouter artificiellement de la diffusion afin de garantir la stabilité du calcul. Cette diffusion est une valeur constante.

De plus, l'équation différentielle régissant l'évolution de la saturation ayant été modifiée pour correspondre au modèle de Wang, il est indispensable d'adapter également la condition limite « Outlet » qui impose une condition sur cette équation. La correction de la condition limite « Outlet » en langage Comsol® est présentée en Tableau .

Tableau J-3. Correction de la condition limite "Outlet" dans Comsol®.

tpdl.mu*tpdl.rho1*tpdl.kappar1/tpdl.mu1*(-tpdl.nX*tpdl.uX-tpdl.nY*tpdl.uY- tpdl.nZ*tpdl.uZ)*test(c1)

Bibliographie

Abdolahi, F., Moosavian, M. A. and Vatani, A. (2005) 'The Mechanism of Action of Antifoams', *Journal of Applied Sciences*, 5(6), pp. 1122–1129. doi: 10.3923/jas.2005.1122.1129.

AlQuaimi, B. I. and Rossen, W. R. (2019) 'Foam generation and rheology in a variety of model fractures', *Energy and Fuels*. American Chemical Society, 33(1), pp. 68–80. doi: 10.1021/acs.energyfuels.8b02178.

Alvarez, J. M., Rivas, H. J. and Rossen, W. R. (2001) 'Unified model for steady-state foam behavior at high and low foam qualities', *SPE Journal*, 6(3), pp. 325–333. doi: 10.2118/74141-PA.

ASTM (2015) 'Standard Test Method for Foaming Properties of Surface Agents', *ASTM Committee, Apr*. doi: 10.1520/D1173-07R15.

Azmi, N. S. *et al.* (2019) '2D-silica ring interactions with alpha olefin sulphonate (AOS) surfactant under AOS / water system using molecular dynamic simulation', 2, pp. 1–7.

Banaszkiewicz, K. and Marcinkowski, T. (2017) 'Use of cement-fly ash-based stabilization techniques for the treatment of waste containing aromatic contaminants', *E3S Web of Conferences*, 22. doi: 10.1051/e3sconf/20172200009.

Bear, J. (1972) *Dynamics of Fluids in Porous Media*, *American Elsevier Publishing*. doi: 10.2136/sssaj1973.03615995003700040004x.

Berry, J. D. *et al.* (2015) 'Measurement of surface and interfacial tension using pendant drop tensiometry', *Journal of Colloid and Interface Science*. Elsevier Inc., 454, pp. 226–237. doi: 10.1016/j.jcis.2015.05.012.

Bertin, H., Del Campo Estrada, E. and Atteia, O. (2017) 'Foam placement for soil remediation', *Environmental Chemistry*, 14(5), pp. 338–343. doi: 10.1071/EN17003.

Besha, A. T. *et al.* (2018) 'Recent advances in surfactant-enhanced In-Situ Chemical Oxidation for the remediation of non-aqueous phase liquid contaminated soils and aquifers', *Environmental Technology and Innovation*. Elsevier B.V., 9, pp. 303–322. doi: 10.1016/j.eti.2017.08.004.

Biswal, S. L. *et al.* (2016) 'Role of Gas Type on Foam Transport in Porous Media', *Langmuir*. ACS Publications, 32(25), pp. 6239–6245. doi: 10.1021/acs.langmuir.6b00949.

Boeije, C. S. *et al.* (2018) 'Tracking a Foam Front in a 3D, Heterogeneous Porous Medium', *Transport in Porous Media*. Springer Netherlands. doi: 10.1007/s11242-018-1185-0.

Boeije, C. S. and Rossen, W. R. (2013) 'Fitting foam simulation model parameters to data', *Saint Petersburg Russia - From Fundamental Science to Deployment: 17th European Symposium on Improved Oil Recovery, IOR*, (April 2013), pp. 16–18.

Brattekås, B. *et al.* (2019) 'Foam Flow and Mobility Control in Natural Fracture Networks', *Transport in Porous Media*. Springer Netherlands, (1). doi: 10.1007/s11242-019-01249-3.

Buckley, S. E. and Leverett, M. C. (1942) 'Mechanism of Fluid Displacement in Sands', *Transactions of the AIME*, 146(01), pp. 107–116. doi: 10.2118/942107-g.

Ĉadík, M. (2008) 'Perceptual evaluation of color-to-grayscale image conversions', *Computer Graphics Forum*, 27(7), pp. 1745–1754. doi: 10.1111/j.1467-8659.2008.01319.x.

Del Campo Estrada, E. (2014) *Écoulements De Mousse Pour La Dépollution D ' Aquifères*.

Université de Bordeaux. Available at: http://www.theses.fr/2014BORD0101.

Chambers, K. T. and Radke, C. J. (1990) 'Capillary phenomena in foam flow through porous media.', *Surfactant Science Series*, 36, pp. 191–255.

Chavent, G. (1976) 'A new formulation of diphasic incompressible flows in porous media', *Applications of methods of functional analysis to problems in mechanics*, pp. 258–270. doi: 10.1007/bfb0088761.

Chen, J., Hopmans, J. W. and Grismer, M. E. (1999) 'Parameter estimation of two-fluid capillary pressure-saturation and permeability functions', *Advances in Water Resources*, 22(5), pp. 479–493. doi: 10.1016/S0309-1708(98)00025-6.

Chen, Z., Huan, G. and Ma, Y. (2006) *Computational Methods for Multiphase Flows in Porous Media*, *Computational Methods for Multiphase Flows in Porous Media*. Siam. doi: 10.1137/1.9780898718942.

Cheng, L. *et al.* (2000) 'Simulating Foam Processes at High and Low Foam Qualities', in *SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium*. doi: 10.2118/59287-MS.

Choi, Y. J., Kim, Y. J. and Nam, K. (2009) 'Enhancement of aerobic biodegradation in an oxygen-limiting environment using a saponin-based microbubble suspension', *Environmental Pollution*. Elsevier, 157(8–9), pp. 2197–2202. doi: 10.1016/j.envpol.2009.04.014.

Dai, C. *et al.* (2014) 'Adsorption behavior of cocamidopropyl betaine under conditions of high temperature and high salinity', *Journal of Applied Polymer Science*. Wiley Online Library, 131(12). doi: 10.1002/app.40424.

Danov, K. D. *et al.* (2004) 'Mixed solutions of anionic and zwitterionic surfactant (Betaine): Surface-tension isotherms, adsorption, and relaxation kinetics', *Langmuir*. ACS Publications, 20(13), pp. 5445–5453. doi: 10.1021/la049576i.

Darcy, H. (1856) *Les fontaines publiques de la ville de Dijon : distribution d'eau et filtrage des eaux*. Edited by Dalmont.

Davis, John C and Sampson, R. J. (1986) *Statistics and data analysis in geology*. Wiley New York et al.

Delgado, J. M. P. Q. (2007) 'Longitudinal and transverse dispersion in porous media', *Chemical Engineering Research and Design*, 85, pp. 1245–1252. doi: 10.1205/cherd07017.

Dholkawala, Z. F., Sarma, H. K. and Kam, S. I. (2007) 'Application of fractional flow theory to foams in porous media', *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 57(1–2), pp. 152–165. doi: 10.1016/j.petrol.2005.10.012.

Dullien, F. A. L. (1992) 'Porous Media-Fluid Transport and Pore Structure'. Academic Press, INC.

Eftekhari, A. A., Krastev, R. and Farajzadeh, R. (2015) 'Foam Stabilized by Fly Ash Nanoparticles for Enhancing Oil Recovery', *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 54(50), pp. 12482–12491. doi: 10.1021/acs.iecr.5b03955.

Estrada, E. D. C. (2014) *Ecoulements de mousse pour la dépollution d'aquifères*. Université de Bordeaux.

Falls, A. H. *et al.* (1989) 'The apparent viscosity of foams in homogeneous bead packs', *SPE Reservoir Engineering*. Society of Petroleum Engineers, 4(02), pp. 155–164.

Falls, A. H. *et al.* (2007) 'Development of a Mechanistic Foam Simulator: The Population Balance and Generation by Snap-Off', *SPE Reservoir Engineering*. Society of Petroleum Engineers, 3(03),

pp. 884–892. doi: 10.2118/14961-pa.

Farajzadeh, R. *et al.* (2011) 'Effect of gas type on foam film permeability and its implications for foam flow in porous media', *Advances in Colloid and Interface Science*, 168(1–2), pp. 71–78. doi: 10.1016/j.cis.2011.03.005.

Farajzadeh, R. *et al.* (2012) 'Foam-oil interaction in porous media: Implications for foam assisted enhanced oil recovery', *Advances in Colloid and Interface Science*, 183–184(0), pp. 1–13. doi: 10.1016/j.cis.2012.07.002.

Farajzadeh, R., Krastev, R. and Zitha, P. L. J. (2008) 'Foam films stabilized with alpha olefin sulfonate (AOS)', *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 324(1–3), pp. 35–40. doi: 10.1016/j.colsurfa.2008.03.024.

Fathollahi, A., Rostami, B. and Khosravi, M. (2019) 'Fluid displacement mechanisms by foam injection within a microfluidic matrix-fracture system', *Journal of Petroleum Science and Engineering*. Elsevier B.V., 176(January), pp. 612–620. doi: 10.1016/j.petrol.2019.01.109.

Fernø Martin, A. *et al.* (2014) 'Experimental study of foam generation, sweep efficiency, and flow in a fracture network', *SPE Journal*, 21(4), pp. 1140–1150. doi: 10.2118/170840-ms.

Flores, G. *et al.* (2011) 'A simplified image analysis method to study lnapl migration in porous media', *Soils and Foundations*, 51(5), pp. 835–847. doi: 10.3208/sandf.51.835.

Fritsche, W. and Hofrichter, M. (2000) 'Aerobic degradation by microorganisms', *Biotechnology. New York: John Wiley \& Sons*, 11, pp. 146–164.

Gassin, P.-M. (2014) 'Mesure de la tension superficielle par la technique de la goutte pendante', *Union des professeurs de physique et de chimie*, 108, pp. 1–8.

Genuchten, V. M. (1980) 'A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils', *Soil Science Society of America Journal*, 44(5), pp. 892–898.

Géraud, B. *et al.* (2017) 'Lamella Division in a Foam Flowing through a Two-Dimensional Porous Medium: A Model Fragmentation Process', *Physical Review Letters*, 118(9). doi: 10.1103/PhysRevLett.118.098003.

Hernando, L. *et al.* (2016) 'Polymer-enhanced foams for water profile control', *SPE - DOE Improved Oil Recovery Symposium Proceedings*, 2016-Janua. doi: 10.2118/179581-ms.

Hernando, L. *et al.* (2018) 'Transport of polymer stabilized foams in porous media: Associative polymer versus PAM', *Journal of Petroleum Science and Engineering*. Elsevier B.V., 169(April), pp. 602–609. doi: 10.1016/j.petrol.2018.05.066.

Hirasaki, G. *et al.* (1997) 'Field demonstration of the surfactant/foam process for aquifer remediation', *Society of Petroleum Engineers*.

Jeong, S. W., Corapcioglu, M. Y. and Roosevelt, S. E. (2000) 'Micromodel study of surfactant foam remediation of residual trichloroethylene', *Environmental Science and Technology*. ACS Publications, 34(16), pp. 3456–3461. doi: 10.1021/es9910558.

Jeong, S. W. and Yavuz Corapcioglu, M. (2003) 'A micromodel analysis of factors influencing NAPL removal by surfactant foam flooding', *Journal of Contaminant Hydrology*. Elsevier, 60(1–2), pp. 77–96. doi: 10.1016/S0169-7722(02)00054-2.

Jones, S. A. *et al.* (2016) 'Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects Surfactant screening for foam EOR : Correlation between bulk and core-flood experiments', *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. Elsevier, 500, pp. 166–176.

doi: 10.1016/j.colsurfa.2016.03.072.

Kahrobaei, S., Vincent-Bonnieu, S. and Farajzadeh, R. (2017) 'Experimental Study of Hysteresis behavior of Foam Generation in Porous Media', *Scientific Reports*. Nature Publishing Group, 7(1), p. 8986. doi: 10.1038/s41598-017-09589-0.

Kam, S. I. (2008) 'Improved mechanistic foam simulation with foam catastrophe theory', *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 318(1–3), pp. 62–77. doi: 10.1016/j.colsurfa.2007.12.017.

Kantzas, A., Bryan, J. and Taheri, S. (2012) *Fundamentals of fluid flow in porous media*.

Kapetas, L. *et al.* (2016) 'Effect of temperature on foam flow in porous media', *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*. The Korean Society of Industrial and Engineering Chemistry, 36, pp. 229–237. doi: 10.1016/j.jiec.2016.02.001.

Kechavarzi, C., Soga, K. and Wiart, P. (2000) 'Multispectral image analysis method to determine dynamic fluid saturation distribution in two-dimensional three-fluid phase flow laboratory experiments', *Journal of Contaminant Hydrology*, 46(3–4), pp. 265–293. doi: 10.1016/S0169-7722(00)00133-9.

Khatib, Z. I., Hirasaki, G. J. and Falls, A. H. (1988) 'Effects of capillary pressure on coalescence and phase mobilities in foams flowing through porous media', *SPE Reservoir Engineering (Society of Petroleum Engineers)*, 3(3), pp. 919–926. doi: 10.2118/15442-PA.

Kilbane, J. J. *et al.* (1997) 'Remediation of Contaminated Soils Using Foams', *Land Contamination and Reclamation*, 5(1), pp. 41–54.

Kimball, S. L. (1992) 'Surfactant-enhanced soil flushing: an overview of an in situ remedial technology for soils contaminated with hydrophobic hydrocarbons', *Hydrocarbon Contaminated Soils*. Lewis Publishers Boca Raton, 2.

Kovscek, A. R. (1998) 'Reservoir Simulation of Foam Displacement Processes', in *UNITAR*, p. 10.

Kovscek, A. R. and Bertin, H. J. (2003) 'Foam mobility in heterogeneous porous media', *Transport in Porous Media*, 52(1), pp. 37–49. doi: 10.1023/A:1022368228594.

Kovscek, A. R. and Radke, C. J. (1994) 'Fundamentals of Foam Transport in Porous Media', in *Foams: Fundamentals and Applications in the Petroleum Industry*, pp. 115–163. doi: 10.1021/ba-1994-0242.ch003.

Kovscek, A., Tang, G.-Q. and Radke, C. (2007) 'Verification of Roof snap-off as a foam-generation mechanism in porous media at steady state', *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 302(1–3), pp. 251–160. doi: 10.1016/j.colsurfa.2008.02.034.

Lee, S. (2014) 'Modeling of Foam Flow in Porous Media for Subsurface Environmental Remediation', (August).

Liontas, R. *et al.* (2013) 'Neighbor-induced bubble pinch-off: Novel mechanisms of in situ foam generation in microfluidic channels', *Soft Matter*, 9(46), pp. 10971–10984. doi: 10.1039/c3sm51605a.

Liu, J. *et al.* (2019) 'Thermal desorption of PCBs contaminated soil with calcium hydroxide in a rotary kiln', *Chemosphere*. Elsevier Ltd, 220, pp. 1041–1046. doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.01.031.

Liu, S. X. and Kim, J. T. (2009) 'Study of adsorption kinetics of surfactants onto polyethersulfone membrane surface using QCM-D', *Desalination*. Elsevier, 247(1–3), pp. 355–361. doi:

10.1016/j.desal.2008.08.002.

Liwarska-Bizukojc, E. *et al.* (2005) 'Acute toxicity and genotoxicity of five selected anionic and nonionic surfactants', *Chemosphere*. Elsevier, 58(9), pp. 1249–1253. doi: 10.1016/j.chemosphere.2004.10.031.

Maire, J. *et al.* (2019) 'Targeted delivery of hydrogen for the bioremediation of aquifers contaminated by dissolved chlorinated compounds', *Environmental Pollution*, 249, pp. 443–452. doi: 10.1016/j.envpol.2019.03.033.

Maire, J., Brunol, E. and Fatin-Rouge, N. (2018) 'Shear-thinning fluids for gravity and anisotropy mitigation during soil remediation in the vadose zone', *Chemosphere*. Elsevier Ltd, 197, pp. 661–669. doi: 10.1016/j.chemosphere.2018.01.101.

Manlowe, D. J., Radke, C. J. and others (1990) 'A pore-level investigation of foam/oil interactions in porous media', *SPE Reservoir Engineering*. Society of Petroleum Engineers, 5(04), pp. 495–502.

Millington, R. J. and Quirk, J. P. (1961) 'Permeability of porous solids', *Transactions of the Faraday Society*, 57, pp. 1200–1207. doi: 10.1039/TF9615701200.

Mohammadi, S. S., Coombe, D. A. and Stevenson, V. M. (1993) 'Test of Steam-foam Process for Mobility Control in South Casper Creek Reservoir', *Journal of Canadian Petroleum Technology*, 32(10), pp. 49–54. doi: 10.2118/93-10-06.

Movchan, T. G. *et al.* (2015) 'Diffusion Coefficients of Ionic Surfactants', 77(4), pp. 511–518. doi: 10.1134/S1061933X15040146.

Mualem, Y. (1976) 'A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media, Water Resour. Res., 12(3), 513-522, 1976', *Water Resources Research*, 12(3), pp. 513–522.

Mulligan, C. N., Yong, R. N. and Gibbs, B. F. (2001) 'Surfactant-enhanced remediation of contaminated soil: A review', *Engineering Geology*. Elsevier, 60(1–4), pp. 371–380. doi: 10.1016/S0013-7952(00)00117-4.

Murena, F. and Gioia, F. (2009) 'Solvent extraction of chlorinated compounds from soils and hydrodechlorination of the extract phase', *Journal of Hazardous Materials*, 162(2–3), pp. 661–667. doi: 10.1016/j.jhazmat.2008.05.081.

Muskat, M. and Meres, M. W. (1936) 'The flow of heterogeneous fluids through porous media', *Physics*, 7(9), pp. 346–363.

Osama Al, A. B. (2015) 'Foamability and Foam Stability of Several Surfactants Solutions: The Role of Screening and Flooding', in *Journal of Petroleum & Environmental Biotechnology*. doi: 10.4172/2157-7463.1000227.

Ossai, I. C. *et al.* (2020) 'Remediation of soil and water contaminated with petroleum hydrocarbon: A review', *Environmental Technology and Innovation*. Elsevier B.V., 17, p. 100526. doi: 10.1016/j.eti.2019.100526.

Osterloh, W. T. and Jante, M. J. (1992) 'Effects of gas and liquid velocity on steady-state foam flow at high temperature', in *SPE/DOE Enhanced Oil Recovery Symposium*, pp. 237–248. doi: 10.2523/24179-ms.

Parker, J. C., Lenhard, R. J. and Kuppusamy, T. (1987) 'Correction to "A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media" by J. C. Parker, R. J. Lenhard, and T. Kuppusamy', *Water Resources Research*, 23(9), pp. 1805–1805. doi:

10.1029/wr023i009p01805.

Pellicer, J., Garcia-Morales, V. and Hernandez, M. (2000) 'On the demonstration of the Young – Laplace equation in introductory physics courses', *Physics Education*, 35(2), pp. 125–129.

Perez, J. *et al.* (2014) *Taux d'utilisation et coûts des différentes techniques et filières de traitement des sols et des eaux souterraines polluées en France: synthèse des données 2012*.

Pfannkuch, H.-O. (1962) 'Contribution à l'étude des deplacements de fluide miscible dans un milieu poreux', *Rev. Inst. Fr. Petrol.*, 18(2), pp. 215–270.

Pierre, J. *et al.* (2015) 'Sound propagation in liquid foams: Unraveling the balance between physical and chemical parameters', *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*. APS, 91(4), p. 42311. doi: 10.1103/PhysRevE.91.042311.

Portois, C., Essouayed, E., *et al.* (2018) 'Field demonstration of foam injection to confine a chlorinated solvent source zone', *Journal of Contaminant Hydrology*. Elsevier, 214(December 2017), pp. 16–23. doi: 10.1016/j.jconhyd.2018.04.003.

Portois, C., Boeije, C. S., *et al.* (2018) 'Foam for Environmental Remediation: Generation and Blocking Effect', *Transport in Porous Media*. Springer Netherlands, 124(3), pp. 787–801. doi: 10.1007/s11242-018-1097-z.

Ransohoff, T. C. and Radke, C. J. (1988) 'Mechanisms of Foam Generation in Glass-Bead Packs.', *SPE Reservoir Engineering (Society of Petroleum Engineers)*. Society of Petroleum Engineers, 3(2), pp. 573–585. doi: 10.2118/15441-PA.

Razzaq, R. (2017) 'Phytoremediation: An Environmental Friendly Technique - A Review', *Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 04(02), pp. 2–5. doi: 10.4172/2380-2391.1000195.

Rossen, W. R. (1990) 'Theory of mobilization pressure gradient of flowing foams in porous media. I. Incompressible foam', *Journal of Colloid And Interface Science*, 136(1), pp. 1–16. doi: 10.1016/0021-9797(90)90074-X.

Rossen, W. R. *et al.* (1994) 'Mechanistic Simulation of Foam Processes in Porous Media. Paper SPE 28940 presented at the SPE Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, Louisiana, USA, 25-28 September.', (September), pp. 26–29. doi: 10.2118/28940-MS.

Rossen, W. R. *et al.* (1999) 'Simplified mechanistic simulation of foam processes in porous media', *SPE Journal*. Society of Petroleum Engineers, 4(03), pp. 279–287.

Rumer, R. R. and Ryan, M. E. (1995) *Barrier containment technologies for environmental remediation applications*. Wiley-Interscience.

Salager, J.-L. and Choplin, L. (2008) 'Mousses - Formation, formulation et propriétés', *Techniques de l'ingénieur. Génie des procédés*, JC1(J2200), pp. 1–14.

Sheng, J. (2013) *Enhanced oil recovery field case studies*. Gulf Professional Publishing.

Simjoo, M., Dong, Y., *et al.* (2013) 'CT scan study of immiscible foam flow in porous media for enhancing oil recovery', *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 52(18), pp. 6221–6233. doi: 10.1021/ie300603v.

Simjoo, M., Rezaei, T., *et al.* (2013) 'Foam stability in the presence of oil: Effect of surfactant concentration and oil type', *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. Elsevier B.V., 438, pp. 148–158. doi: 10.1016/j.colsurfa.2013.05.062.

Skauge, A. *et al.* (2019) 'Foam Generation, Propagation and Stability in Porous Medium', *Transport in Porous Media*. Springer Netherlands, pp. 1–17. doi: 10.1007/s11242-019-01250-w.

Stavland, A. *et al.* (2010) 'Polymer Flooding - Flow Properties in Porous Media versus Rheological Parameters', *SPE EUROPEC/EAGE Annual Conference and Exhibition*, (1984). doi: 10.2118/131103-MS.

Tang, G. Q. and Kovscek, A. R. (2006) 'Trapped gas fraction during steady-state foam flow', *Transport in Porous Media*, 65(2), pp. 287–307. doi: 10.1007/s11242-005-6093-4.

Topp, G. C., Davis, J. L. and Annan, A. P. (1980) 'Electromagnetic determination of soil water content: Measurements in coaxial transmission lines', *Water Resources Research*, 16(3), pp. 574–582. doi: 10.1029/WR016i003p00574.

Toth, A. J. and Mizsey, P. (2015) 'Comparison of air and steam stripping: removal of organic halogen compounds from process wastewaters', *International Journal of Environmental Science and Technology*, 12(4), pp. 1321–1330. doi: 10.1007/s13762-014-0511-5.

Tsai, Y. J., Chou, F. C. and Cheng, S. J. (2009) 'Using tracer technique to study the flow behavior of surfactant foam', *Journal of Hazardous Materials*, 166(2–3), pp. 1232–1237. doi: 10.1016/j.jhazmat.2008.12.038.

Vidonish, J. E. *et al.* (2016) 'Thermal Treatment of Hydrocarbon-Impacted Soils: A Review of Technology Innovation for Sustainable Remediation', *Engineering*. Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company, 2(4), pp. 426–437. doi: 10.1016/J.ENG.2016.04.005.

Wan, J. *et al.* (2001) 'Generation of stable microbubbles and their transport through porous media', *Water Resources Research*, 37(5), pp. 1173–1182. doi: 10.1029/2000WR900331.

Wang, C.-Y. and Beckermann, C. (1993) 'A two-phase mixture model of liquid-gas flow and heat transfer in capillary porous media-I. Formulation', *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 36(11), pp. 2747–2758. doi: 10.1016/0017-9310(93)90094-M.

Wang, J. *et al.* (2012) 'Experimental research and quantitative characterization of nitrogen foam blocking characteristics', *Energy and Fuels*. ACS Publications, 26(8), pp. 5152–5163. doi: 10.1021/ef300939j.

Wang, Y. *et al.* (2017) 'Influence of alkyl chain length of alpha olefin sulfonates on surface and interfacial properties', *Journal of Dispersion Science and Technology*. Taylor & Francis, 0(0), pp. 1–7. doi: 10.1080/01932691.2017.1281144.

Zhang, Z. F., Freedman, V. L. and Zhong, L. (2009) *Foam Transport in Porous Media - A Review*. Pacific Northwest National Laboratory. doi: 10.2172/1016458.

Zhong, L. *et al.* (2011) 'Enhanced remedial amendment delivery to subsurface using shear thinning fluid and aqueous foam', *Journal of Hazardous Materials*. Elsevier, 191(1–3), pp. 249–257. doi: 10.1016/j.jhazmat.2011.04.074.

Zhou, Z. H. and Rossen, W. R. (1995) 'Applying fractional-flow theory to foam processes at the "limiting capillary pressure"', *SPE Advanced Technology Series*. Society of Petroleum Engineers, 3(1), pp. 154–162. doi: 10.2118/24180-pa.

Liste des figures

Figure 1. Schéma conceptuel de la migration du DNAPL. 4
Figure 2. Schéma conceptuel de l'utilisation de mousse à effet bloquant pour confiner une zone polluée. 8
Figure 3. Coupe schématique du site d'étude. 9
Figure 4. Définitions des différentes échelles. 13
Figure 5. Relation pression capillaire – saturation. 16
Figure 6. Influence de la concentration de tensioactif sur la tension de surface. 17
Figure 7. Structure d'une mousse. 18
Figure 8. L'effet Gibbs-Marangoni sur une lamelle de mousse. 20
Figure 9. Schématisation de la loi de Laplace. 21
Figure 10. Mise en évidence de la coalescence et du mûrissement. 21
Figure 11. Mécanisme de "*snap-off*". 23
Figure 12. Mécanisme de "*leave behind*". 24
Figure 13. Mécanisme de "*lamella division*". 24
Figure 14. Série de photographies montrant le phénomène de « *neighbor-wall pinch-off* ». 25
Figure 15. Evolution de la pression de disjonction en fonction de l'épaisseur de la lamelle. 26
Figure 16. Schéma d'une mousse à l'échelle de pore. 26
Figure 17. Pression capillaire en fonction de la saturation. 27
Figure 18. RF et pression différentielle en fonction de la concentration en tensioactif. 28
Figure 19. RF et pression différentielle en fonction de la qualité. 28
Figure 20. RF et pression différentielle en fonction de la perméabilité. 29
Figure 21. RF et pression différentielle en fonction de la température. 29
Figure 22. Effet du comportement rhéofluidifiant dans un milieu hétérogène. 30
Figure 23. Schématisation des écoulements diphasiques en milieu poreux. 31
Figure 24. Exemple théorique de l'évolution de la pression différentielle en fonction du temps pour plusieurs régimes de mousse lors d'une injection dans une colonne. 31
Figure 25. Schéma conceptuel de l'injection de la mousse de blocage en milieu hétérogène. 37
Figure 26. Représentation d'une molécule d'AOS à 14 carbones. 41
Figure 27. Schéma d'une goutte pendante au bout d'une aiguille de seringue. 43

Figure 28. Appareil OCA permettant la mesure de tension de surface. 43
Figure 29. Tension de surface en fonction de la concentration en AOS..... 44
Figure 30. Montage expérimental Ross-Miles pour le test de moussabilité. 46
Figure 31. Montage expérimental pour le test de stabilité..... 47
Figure 32. Moussabilité en fonction de la formulation..... 48
Figure 33. Moussabilité de l'AOS en fonction de la concentration. 49
Figure 34. Stabilité en fonction de la formulation. 50
Figure 35. Dynamique de destruction en fonction de la formulation. 52
Figure 36. Stabilité de l'AOS en fonction de la concentration. 53
Figure 37. Granulométrie du sable BB. 59
Figure 38. Granulométrie du sable fin 0,4/0,9.. 60
Figure 39. Granulométrie du sable fin 0,1/0,6. 60
Figure 40. Granulométrie du sable fin BR37. 60
Figure 41. Schéma du dispositif expérimental (prégénération). 62
Figure 42. Schéma du dispositif expérimental (co-injection)..... 62
Figure 43. Une colonne de sable BB 63
Figure 44. Photos d'écoulements de mousse dans des colonnes de billes de 1 mm. 67
Figure 45. Pression différentielle durant un écoulement de mousse prégénérée dans une colonne de 30 cm de perméabilité $4{,}3\times10^{-10}$ m². 69
Figure 46. Zoom pendant la percée de la mousse faible..... 70
Figure 47. Saturation en eau durant un écoulement de mousse prégénérée dans une colonne de 30 cm de perméabilité $4{,}9\times10^{-10}$ m². 70
Figure 48. Pression différentielle durant un écoulement de mousse prégénérée dans une colonne de 30 cm de perméabilité $3{,}8\times10^{-10}$ m². 71
Figure 49. Zoom pendant la percée du gaz. 71
Figure 50. Influence de la perméabilité du prégénérateur sur RF. 72
Figure 51. Influence de la perméabilité du prégénérateur sur Sl..... 73
Figure 52. Influence de la perméabilité sur le RF. 79
Figure 53. Evolution de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement.. 80
Figure 54. Influence de la perméabilité sur la saturation en liquide. 81
Figure 55. Evolution du RF en fonction de la perméabilité pour plusieurs formulations. 83
Figure 56. Evolution de Sl en fonction de la perméabilité pour plusieurs formulations. 83

Figure 57. Evolution du $RFres$ en fonction de la perméabilité. 85
Figure 58. Dispositif expérimental. 92
Figure 59. Emplacements des capteurs de pression et sondes TDR sur le bac L.. ... 94
Figure 60. Face avant du bac L. 95
Figure 61. Face arrière du bac L. 95
Figure 62. Placement schématique de l'appareil photo et du projecteur. 97
Figure 63. Photographie de la disposition de l'éclairage et de l'appareil photo par rapport au bac. 97
Figure 64. Image originale (gauche). Image en niveaux de gris (droite). 100
Figure 65. Evolution de l'intensité lumineuse moyenne en fonction de la taille de la maille. 101
Figure 66. Evolution de l'intensité lumineuse moyenne en fonction de la taille de la maille. 102
Figure 67. Image zéro avec mailles moyennée sans uniformisation (gauche). Image zéro avec maille moyennée avec uniformisation (droite).. 103
Figure 68. Mise en évidence de la linéarité des différences d'éclairage lors de différentes séries de photographies. 103
Figure 69. Volume de gaz dans le bac en fonction du temps, calculé par mesure de la masse et par imagerie. 108
Figure 70. Définition des rayons d'action. 110
Figure 71. Exemple de la forme de propagation de la mousse. 111
Figure 72. ROI pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions.. 113
Figure 73. Circularité pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions. 113
Figure 74. Rapport de forme pour cinq expériences réalisées dans les mêmes conditions.. 114
Figure 75. Régression en loi puissance de l'évolution temporelle du ROI. 115
Figure 76. Régression en loi puissance de l'évolution temporelle du ROI. Zoom sur les premières minutes. 116
Figure 77. Exemple des phénomènes de coalescence lors de l'injection. 118
Figure 78. Traçages avant et après injection de mousse.. 119
Figure 79. Evolution du volume de gaz dans le bac après la fin de l'injection. 122
Figure 80. Traçage après destruction de la mousse.. 122
Figure 81. Réduction de la mobilité en fonction du temps.. 122
Figure 82. Evolution de la pression en fonction du temps pour les trois tailles de bac. 124

Figure 83. Evolution des pressions au début de l'injection.. 125
Figure 84. Champ de pression relatif dans le bac L #22. $t = 10\,h$.. 126
Figure 85. Champ de pression relatif dans le bac L #22. $t = 20\,h$.. 126
Figure 86. Champ de pression relatif dans le bac L #22. $t = 29\,h$.. 127
Figure 87. Evolution de la saturation en liquide en fonction du temps sur la ligne 3.. 128
Figure 88. Champs de saturation en liquide à t=10h.. 129
Figure 89. Champs de saturation en liquide à t=20h.. 130
Figure 90. Champs de saturation en liquide à t=29h.. 130
Figure 91. Evolution temporelle de la saturation en liquide au niveau de la sonde (5,3), la plus proche du point d'injection. 131
Figure 92. Mise en évidence de la modification du milieu poreux au niveau du point d'injection. Photographie prise à la fin de l'injection (t=29h). 132
Figure 93. Estimations de la saturation en fonction du temps par les relevés de sondes TDR (traits pleins) et par l'analyse photographique (traits pointillés).. 133
Figure 94. Champs de saturation en liquide calculé par analyse photographique à t=20h... 134
Figure 95. Champs de saturation en liquide calculé par analyse des sondes TDR à t=20h. 134
Figure 96. Evolution du rayon d'action en fonction du temps pour des expériences réalisées dans le bac S avec un type d'écoulement latéral différent. 136
Figure 97. Evolution du rayon d'action avec le temps pour les expériences en bac L. 139
Figure 98. Evolution du motif de mousse pour le bac L sans écoulement #15.. 140
Figure 99. Evolution de la circularité avec le temps pour les expériences en bac L. 140
Figure 100. Evolution du rapport de forme avec le temps pour les expériences en bac L. 140
Figure 101. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle du rayon d'action. 141
Figure 102. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle de la circularité. 142
Figure 103. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle du rapport de forme. 142
Figure 104. Evolution de la concentration en tensioactif dans la cavité « sortie », en aval de l'écoulement latéral. 144

Figure 105. Influence de la vitesse de l'écoulement sur l'évolution temporelle du volume de gaz relatif après la fin de l'injection. 145
Figure 106. Délai avant le début de la destruction du mousse en fonction de la vitesse de l'écoulement. 145
Figure 107. Courbe pression capillaire – saturation pour l'écoulement de mousse en milieu poreux,. 158
Figure 108. Viscosité apparente en fonction du gradient de pression. 163
Figure 109. Evolution du « Resistance Factor » (représentant la viscosité apparente) en fonction de la concentration en tensioactif. 164
Figure 110. Evolution de la fonction fc en fonction de la concentration, ... 164
Figure 111. Evolution de la fonction fp en fonction de la pression. 165
Figure 112. Exemple de géométrie du modèle. 168
Figure 113. Exemple de maillage. 169
Figure 114. Conditions limites et initiales pour les équations de l'écoulement diphasique 170
Figure 115. Conditions limites et initiales pour les équations de transport de soluté. 171
Figure 116. Lignes de courant et champs de saturation à t = 10 h. Comparaison avec le Bac L #22. 176
Figure 117. Lignes de courant et champs de saturation à t = 20 h. Comparaison avec le Bac L #22. 177
Figure 118. Comparaison du rayon d'action de la propagation de mousse entre les résultats numériques et expérimentaux (Bac L #22). 178
Figure 119. Evolution de la pression d'injection avec le temps. Comparaison avec le bac L #22. 179
Figure 120. Evolution du champ de pression en fonction du temps. 180
Figure 121. Champ de viscosité du mélange à t = 20h. 181
Figure 122. Comparaison de l'évolution du rayon d'action en fonction du temps. 182

Liste des tableaux

Tableau 1. Nature des principaux polluants et occurrence. 3
Tableau 2. Propriétés qualitatives de mousses faibles et fortes. 32
Tableau 3. Prédiction de la stabilité de la mousse en fonction des coefficients E, S et B. 33
Tableau 4. CMC et tension de surface à la CMC pour chaque tensioactif. 44
Tableau 5. Tableau récapitulatif des caractéristiques qualitatives des formulations testées. 55
Tableau 6. Milieux poreux et perméabilité correspondantes 58
Tableau 7. Débits utilisés pour les expériences 64
Tableau 8. Influence de la technique d'injection sur le « Resistance factor » et la saturation en liquide (sable BB de perméabilité $4{,}3\times10^{-10}$ m²). 67
Tableau 9. Temps de percée des mousses fortes et faibles pendant l'injection de mousse prégénérée. 76
Tableau 10. Caractéristiques des milieu poreux contenus dans les différents bacs. 91
Tableau 11. Caractéristiques techniques de la prise de photographies 96
Tableau 12. Paramètres de calibration de l'analyse par imagerie. 107
Tableau 13. Evolution du rayon d'action en fonction du temps pour les expériences en bac S avec écoulement latéral de 10 m/jour. 115
Tableau 14. Evolution du massif de mousse pendant la phase de stabilité. 121
Tableau 15. Paramètres de calibration de l'analyse par imagerie. 132
Tableau 16. Comparaison des motifs de mousse faible 137
Tableau 17. Influence du type d'écoulement sur les motifs de mousse durant la phase de stabilité. 138
Tableau 18 Comparaison des modèles de Chen et de Wang 154
Tableau 19. Valeurs des paramètres du modèle diphasique en milieu poreux. 162
Tableau 20. Paramètres de la modélisation « injection ». 173
Tableau 21. Paramètres de la modélisation « stabilité ». 174
Tableau 22. Comparaison de l'évolution de la saturation en mousse forte durant la phase de stabilité. Temps après la fin de l'injection : 0-20h. 183
Tableau 23. Comparaison de l'évolution de la saturation en mousse forte durant la phase de stabilité. Temps après la fin de l'injection : 40-60h. 184