



**HAL**  
open science

# Analyse des impacts environnementaux liés à l'exploitation des réservoirs non conventionnels

Sofiane Khadraoui

► **To cite this version:**

Sofiane Khadraoui. Analyse des impacts environnementaux liés à l'exploitation des réservoirs non conventionnels. Physique [physics]. Université de Pau et des Pays de l'Adour; Université M'hamed Bougara de Boumerdès (Algérie), 2022. Français. NNT: 2022PAUU3011 . tel-03969353

**HAL Id: tel-03969353**

**<https://theses.hal.science/tel-03969353>**

Submitted on 2 Feb 2023

**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.

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA  
RECHERCHE SCIENTIFIQUE



**COTUTELLE INTERNATIONALE  
THESE PREPAREE ENTRE**

**L'UNIVERSITÉ M'HAMED BOUGARA BOUMERDES (UMBB)**

Pour l'obtention du diplôme de **DOCTORAT Science**

**En:** Sciences et Génie des Matériaux

**Option :** Chimie de la Matière et Environnement

**et**

**L'UNIVERSITÉ DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR (UPPA)**

Opérée au sein de

L'Ecole Doctorale Sciences Exactes et Leurs Applications (ED 211)

Pour l'obtention du diplôme de **DOCTORAT**

**En :** Physique

**Spécialité :** Physico-chimie des Matériaux

***Analyse des impacts environnementaux liés à l'exploitation  
des réservoirs non conventionnels***

**Présentée par Sofiane KHADRAOUI**

Soutenu publiquement devant le jury composé de :

M.Wahib NACEUR	Professeur à l'USDB	Président
Messaoud HACHEMI	Professeur à l'UMBB	Directeur de thèse
Ahmed ALLAL	Professeur à l'UPPA	Directeur de thèse
Frédéric LEONARDI	HDR, Maître de conférences à l'UPPA	Examineur
Amane JADA	HDR, Chargé de Recherches Hors Classe au CNRS	rapporteur
Abdelbaki BENMOUNAH	Professeur à l'UMBB	Examineur
Mohamed KHODJA	HDR, Directeur de Recherche SONATRACH	Invité

**Année universitaire 2021-2022**

## **Dédicaces**

Je dédie ce travail à la mémoire de mes parents "Fatima et Mohamed".

À mes trois adorables enfants Yasser, Ghizlane et Safoine.

## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs de thèse, Messieurs Ahmed Allal et Messaoud Hachemi, pour m'avoir permis de relever le défi de la cotutelle de thèse entre l'université de M'hamed Bouguera, en Algérie, et l'université de Pau et des pays de l'Adour, en France. Je tiens également à les remercier, pour la confiance qu'ils m'ont accordée en acceptant de diriger ce travail doctoral, pour leurs multiples conseils et pour toutes les heures qu'ils ont consacrées à guider ce travail malgré leurs multiples tâches. J'aimerais leur dire à quel point j'ai apprécié leur grande disponibilité et leur respect sans faille des délais serrés de lecture et relecture des documents que je leur ai adressés.

Merci à Monsieur Mohamed Khodja, pour m'avoir lancé sur la voie de la recherche, pour avoir guidé mes premiers pas de doctorat et pour ses directives et ses conseils judicieux, je le remercie également pour la confiance qu'il m'a accordée en acceptant d'encadrer ce travail.

J'ai été très sensible à l'honneur que m'ont fait Monsieur M.Wahib NACEUR Professeur à l'USDB, en acceptant de présider le jury, Monsieur Frédéric LEONARDI Professeur à l'UPPA, , Monsieur Jada AMANE Chargé de Recherche Hors Classe à l'Université de Mulhouse et Monsieur Abdelbaki BENMOUNAH Professeur à l'UMBB pour avoir accepté d'être examinateurs et membres de mon jury de thèse.

Je tiens à exprimer ma plus vive gratitude à Monsieur Mohamed Amara, EX président de l'UPPA pour son soutien et son aide si précieux.

Mes profonds remerciements sont adressés à Madame Jacqueline Petitbon pour m'avoir toujours facilité les démarches administratives. Je remercie également Madame Jennifer Sabatery et Monsieur Abdel Khoukh pour l'aide qu'ils m'ont apportée. Je souhaite montrer ma reconnaissance à Monsieur Richard Lacroix, Gestionnaire de l'école doctorale SEA, pour sa gentillesse, ses orientations ainsi que sa disponibilité.

Merci à tous les étudiants que j'ai côtoyés à Pau ou à UMBB pour l'ambiance agréable qui a toujours régnée. Merci à Makha Ndao et Wissem Khelifi pour toutes les discussions, toujours effectuées dans la bonne humeur, qui ont su rendre mon séjour à Pau très agréable et enrichissant et en qui j'ai trouvé un réservoir de connaissances scientifiques et culturelles.

Enfin, pour tous ceux qui ont, de près ou de loin, contribué à la réalisation de ce travail, trouvez en ces simples mots toute ma profonde gratitude et mes sincères remerciements.

## Liste des figures

<b>Figure I.1 :</b> Illustration d'une opération de fracturation.....	9
<b>Figure I.2 :</b> Des grains de proppant enrobés de résine. ....	14
<b>Figure I.3 :</b> Des grains de proppant en céramique.....	14
<b>Figure I.4 :</b> Géométrie du Modèle PKN.....	18
<b>Figure I.5 :</b> Géométrie du Modèle GDK.....	18
<b>Figure II.1:</b> Exemple de Photographie de l'observation microscopique d'un échantillon de sable sous lumière réfléchie.....	26
<b>Figure II.2 :</b> Graphique d'estimation visuelle de la rondeur et de la sphéricité (ISO 13503-2, 2006). ....	26
<b>Figure II.3 :</b> Equipement RMN type Bruker Ascend™ 400.....	32
<b>Figure II.4 :</b> Échantillons de PMMA synthétisés (a), schéma de la dimension de l'échantillon de tension cylindrique (b) et de flexion à trois points (c). ....	33
<b>Figure II.5 :</b> (a) Schéma et dimension de l'échantillon de PMMA synthétisés pour la réalisation de l'essai de flexion à trois points (b) photo de l'équipement utilisé.....	34
<b>Figure II.6</b> Dimension de l'échantillon en trois points (a) échantillon de PMMA synthétisé et (b) dimension de la pointe de la fissure.....	35
<b>Figure II.7 :</b> (a) Schéma du montage de l'essai de fracturation hydraulique et (b) transmetteur de pression.....	36
<b>Figure II.8 :</b> Modélisation par la méthode des éléments finis (de gauche à droite)...	39
<b>Figure II.9 :</b> Les conditions aux limites de symétrie et de pression appliquée.....	39
<b>Figure III.1 :</b> Procédé de fracturation hydraulique.....	43
<b>Figure III.2 :</b> Spectre de diffraction des RX des phases de la roche mère.....	45
<b>Figure III.3 :</b> Un échantillon de la calcite.....	48
<b>Figure III.4 :</b> Spectre de diffraction RX de la calcite.....	48
<b>Figure III.5 :</b> Spectre de diffraction des RX de la Bentonite.....	49
<b>Figure III.6 :</b> Spectre de diffraction des RX des phases du Kaolin.....	50
<b>Figure III.7:</b> Structure primaire de Xanthane.....	52
<b>Figure III.8 :</b> Courbe d'étalonnage du xanthane $\lambda_{\max} = 294 \text{ nm}$ .....	53
<b>Figure III.9 :</b> Courbe d'étalonnage du sp breaker $\lambda_{\max} = 310 \text{ nm}$ .....	53
<b>Figure III.10 :</b> Evolution de l'adsorption du xanthane sur la bentonite.....	54
<b>Figure III.11 :</b> Evolution de l'adsorption du xanthane sur la calcite.....	55
<b>Figure III.12 :</b> Evolution de l'adsorption du xanthane sur le kaolin.....	56

<b>Figure III.13</b> : Evolution de l'adsorption du SP Breaker sur la Bentonite à 25°C.....	57
<b>Figure III.14</b> : Evolution de l'adsorption du SP Breaker sur la calcite à 25°C.....	57
<b>Figure III.15</b> : Evolution de l'adsorption du SP Breaker sur le Kaolin à 25°C.....	58
<b>Figure III.16</b> : Evolution de l'adsorption du SP Breaker sur la roche mère à 85°C. ( $C_0=0.1\%$ , $C_s = 20 \text{ g.L}^{-1}$ ).....	59
<b>Figure III.17</b> : Evolution de l'adsorption du Xanthane sur la roche mère à 85°C ( $C_0=0.6\%$ , $C_s = 20 \text{ g.L}^{-1}$ ).....	59
<b>Figure III.18</b> : Evolution du rendement d'adsorption du SP Breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05) en fonction du temps. ( $C_0=0.01\%$ , $C_s = 10 \text{ g.L}^{-1}$ , $T =23.5^\circ\text{C}$ ).....	62
<b>Figure III.19</b> : Evolution du rendement d'adsorption breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05) en fonction de la variation de la concentration initiale du sp breaker ( $C_s = 10 \text{ g.L}^{-1}$ , $T =23.5^\circ\text{C}$ ).....	63
<b>Figure III.20</b> : Evolution de l'adsorption du SP Breaker sur le sable (N°#05) en fonction de la température. ( $C_0=0.01\%$ , $C_s = 10 \text{ g.L}^{-1}$ , $T =23.5^\circ\text{C}$ ).....	64
<b>Figure IV.1</b> : Contrainte de Cisaillement du mélange Eau-Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant allant de 0.01 à 0.07%.....	72
<b>Figure IV.2</b> : Viscosité du mélange Eau- Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant allant de 0.01 à 0.07%.....	73
<b>Figure IV.3</b> : Contrainte de cisaillement du mélange Eau-Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant allant de 0.1 à 1.0%.....	74
<b>Figure IV.4</b> : Viscosité du mélange Eau- Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant allant de 0.1 à 1.0%.....	75
<b>Figure IV.5</b> : Evolution de la viscosité du Gélifiant en fonction du temps. Concentration du gélifiant 0.4% et 0.6%.....	76
<b>Figure IV.6</b> : Evolution de la contrainte du Gélifiant en fonction du temps Concentration du gélifiant 0.4% et 0.6%.....	76
<b>Figure V.1</b> : Spectre infrarouge de l'acide polyacrylique synthétisé.....	84
<b>Figure V.2</b> : Synthèse radicalaire du poly(méthacrylate de méthyle) dans Le toluène.....	84
<b>Figure V.3</b> : Photos de la PMMA préparée avec différents poids moléculaires.....	86
<b>Figure V.4</b> : Spectre RMN 1H du poly(méthacrylate de méthyle).....	87
<b>Figure V.5</b> : agrandissement du spectre RMN $^1\text{H}$ du poly(MMA).....	88

<b>Figure V.6</b> : Formule chimique du monomère et du polymère méthyle méthacrylate.....	88
<b>Figure V.7</b> : Les résultats des essais mécaniques pour un échantillon de PMMA. synthétisé. Courbes de contrainte-déformation (a) et de charge- déplacement (b).....	88
<b>Figure V.8</b> : Représente les dimensions de l'échantillon cylindrique de PMMA et (a) Dimension de l'échantillon ; (b) fissure courte ; (c) fissure profonde.....	91
<b>Figure V.9</b> : (a) Les échantillons utilisés, (b) propagation de la fracture à débit de 0,05 ml/min (gauche) et (c) propagation de la fracture à débit de 5 ml/min (droite).....	92
<b>Figure V.10</b> : Les résultats expérimentaux de la simulation à l'échelle laboratoire. La pression appliquée en fonction de : effet de la taille de la fissure initial (a), effet du débit d'injection (b) et effet de la viscosité du fluide d'injection (c).....	93
<b>Figure V.11</b> : Distribution du facteur d'intensité de contrainte( $K_I$ ) pour $p=14$ à 18 MPa de l'échantillon $SP_{01}$ ( $d=6,51$ mm et $c=10,43$ mm) (a) distribution de $K_I$ au niveau du front de fissure (b) distribution de $K_I \phi=90^\circ$ en fonction de pression appliquée.....	97



## Liste des tableaux

<b>Tableau I.1</b> : Liste des additifs du fluide de fracturation et leurs utilisations.....	16
<b>Tableau II.1</b> : Lignes directrices concernant le niveau des contraintes d'écrasement.....	28
<b>Tableau II.2</b> : Les caractéristiques des produits utilisés dans le laboratoire.....	30
<b>Tableau III.1</b> : Composition chimique élémentaire exprimée en pourcentage massique (%) de l'échantillon de roche mère.....	46
<b>Tableau III.2</b> : Résultats d'analyses chimiques des éléments en traces (en ppm) de la roche mère.....	46
<b>Tableau III.3</b> : Résultats des métaux lourds d'un échantillon d'eau de retour prélevée au niveau de la région d'Ahnet.....	46
<b>Tableau III.4</b> : Pourcentage des éléments chimiques pour la Calcite par la FX.....	48
<b>Tableau III.5</b> : Pourcentage des éléments chimiques pour la bentonite par la FX....	49
<b>Tableau III.6</b> : Pourcentage des éléments chimiques pour le kaolin par la FX.....	50
<b>Tableau III.7</b> : Quantités adsorbées du xanthane sur la bentonite.....	53
<b>Tableau III.8</b> : Quantités adsorbées du xanthane sur la calcite.....	54
<b>Tableau III.9</b> : Quantités adsorbées du xanthane sur la kaolinite. ....	55
<b>Tableau III.10</b> : Quantités adsorbées du Breaker sur la bentonite.....	56
<b>Tableau III.11</b> : Quantités adsorbées du Breaker sur la calcite.....	56
<b>Tableau III.12</b> : Quantités adsorbées du Breaker sur la kaolinite.....	57
<b>Tableau III.13</b> : Quantités adsorbées du sp breaker sur la roche mère à 85 C°.....	59
<b>Tableau III.14</b> : Quantités adsorbées du xanthane sur la roche mère à 85 °C. ....	59
<b>Tableau III.15</b> : Résultats d'analyses obtenus selon l'ISO 13503-2.....	61
<b>Tableau III.16</b> : Evolution du rendement d'adsorption du SP Breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05) en fonction du temps.....	62
<b>Tableau III.17</b> : Evolution du rendement d'adsorption sp breaker sable éolien en fonction de la variation de la concentration initiale du sp breaker (sable éolien).....	63
<b>Tableau III.18</b> : Evolution de l'adsorption du SP Breaker sur le sable (N°#05) en fonction de la température.....	64
<b>Tableau III.19</b> : pH des solutions (au début et à la fin de l'essai). ....	65
<b>Tableau III.20</b> : DCO du produit référence, de Xanthane et SP Breaker. ....	65
<b>Tableau III.21</b> : Résultats de la biodégradabilité des deux additifs. ....	66

<b>Tableau IV.1 :</b> Modélisation rhéologique du mélange eau-gélifiant pour des concentrations allant de 0.1, 0.4, 0.8 et 1.0 %.(le nombre de chiffres après la virgule doit-être cohérent avec les incertitudes de l'appareil). .....	77
<b>Tableau V.1 :</b> Conditions de réaction et masses moléculaires des polymères préparés par polymérisation radicalaire.....	85
<b>Tableau V.2 :</b> Ténacité mécanique et résistance à la fracture du PMMA de synthèse comparée aux résultats de la littérature.....	90
<b>Tableau V.3 :</b> Taille des fissures des trois échantillons utilisés. ....	91
<b>Tableau V.4 :</b> Résultats expérimentaux des pressions de rupture. ....	95
<b>Tableau V.5 :</b> Résultats Analytiques des pressions de rupture (pression critique)....	95
<b>Tableau V.6 :</b> Résultats des pressions de rupture (pression critique) calculés par simulation numérique.....	96

## Sommaire

Dédicaces	
Remerciements	
Liste des figures	
Liste des tableaux	

Résumé.....	1
Introduction générale.....	5

### **Chapitre I : Objectifs de la thèse & analyse bibliographique**

Objectifs de la thèse.....	8
Bibliographie	
I.1. Généralités.....	8
I.1.1. Définition des hydrocarbures.....	8
I.1.2. La Fracturation hydraulique.....	8
I.2. Analyse des opérations de fracturation hydraulique à travers le monde.....	9
I.2.1. Etats Unis d'Amérique.....	10
I.2.2. Canada.....	10
I.2.3. France.....	11
I.2.4. Algérie.....	11
I.3. Les interactions fluide-roche.....	12
I.3.1. La roche mère.....	13
I.3.2. L'agent de soutènement.....	13
I.3.3. Les fluides de fracturation .....	15
I.4. Modélisation de la fracturation.....	17
I.4.1. Apport de la modélisation.....	17
I.4.2. Les modèles développés.....	17
I.5. Conclusion .....	20

### **Chapitre II : Matériels et Méthodes**

II. Matériels et méthodes.....	23
II.1. Caractérisation de la matrice minérale.....	23
II.1.1. Analyse minéralogique par diffractométrie des rayons X (DRX).....	23
II.1.2. Analyse par fluorescence des rayons x (fx) .....	24
II.2. Etudes d'interactions additives– matrices minérales et additives-proppant.....	25
II.3. Caractérisation du proppant selon la norme ISO 13503-2.....	25
II.3.1. Rondeur et sphéricité.....	25
II.3.2. Solubilité dans les acides.....	26
II.3.3. Turbidité.....	27
II.3.4. Résistance à l'écrasement.....	27
II.4. Etude de la biodégradabilité des additifs utilisés dans le fluide de fracturation.....	29
II.5. Etude des propriétés rhéologique.....	29
II.5.1. Effet de la concentration du Gélifiant (Xanthane) .....	30

II.5.2. Etude sur le vieillissement du mélange Eau –Gélifiant.....	30
II.5.3. Variation de la contrainte de cisaillement (viscosité) en fonction du temps.....	30
A. Etude de modélisation.....	30
II.6. Protocole expérimental de synthèse de l'acide polyméthacrylique de méthyle.....	30
II.6.1. Produits chimiques.....	30
II.6.2. Caractérisation des polymères par spectroscopie infrarouge.....	32
II.6.3. Caractérisation des polymères synthétisés par RMN.....	32
II.7. Caractérisation mécanique.....	33
II.7.1. Essai de traction.....	33
II.7.2. Essai de flexion à trois points .....	34
II.8. Expériences de fracturation hydraulique.....	36
II.8.1 Influence des différents paramètres sur la propagation de la fracture.....	37
II.8.2. Influence du débit d'injection du fluide sur la propagation de la fracture.....	37
II.8.3. Influence de la viscosité du fluide d'injection sur la propagation de la fracture.....	37
II.8.4. Influence de la profondeur de la fissure initiale sur la propagation de la fracture.....	37
II.9. Modélisation analytique.....	38
II.10. Simulation numérique.....	39

### **Chapitre III : Etude des interactions additifs–matrices minérales**

III.1. Introduction.....	42
III.2. Mécanismes d'adsorption des additifs de la fracturation.....	44
III.3. Choix et caractérisation de la matrice minérale .....	44
III.3.1. Résultats de DRX et FX de la roche mère.....	45
A. Caractérisation de la calcite .....	47
B. Caractérisation de la bentonite.....	49
C. Caractérisation du kaolin.....	50
III.4. Etudes interactions additifs chimiques-matrices modèles.....	50
III.4.1. Identification des additifs les plus utilisés dans les fluides de fracturation.....	51
A. Le xanthane.....	51
B. Le breaker.....	52
III.4.2. Etude Interaction xanthane-bentonite.....	53
III.4.3. Interaction entre xanthane- calcite.....	54
III.4.4. Interaction xanthane-kaolin.....	55
III.4.5 Interaction sp breaker–matrices modèles.....	56
III.4.6. Les essais d'interactions xanthane – roche mère et sp breaker –roche mère à 85°.....	58
III.5. Etude des interactions sp breaker –proppant (sable naturel) .....	60
III.5.1 Evolution de l'adsorption sp breaker sur sable.....	62
A. Effet du temps de contact .....	62
B. Effet de la concentration.....	62
C. Effet de la température.....	63

III.6. Etude de la Biodégradabilité des additifs utilisés dans le fluide de fracturation.....	65
III.7. Conclusion .....	67

### **Chapitre IV Etude rhéologique**

IV.1. Introduction .....	71
IV.2. Effet de la concentration du gélifiant (xanthane) ).....	72
IV.3. Etude sur le vieillissement du mélange eau –gélifiant .....	75
IV.4. Variation de la contrainte de cisaillement (viscosité) en fonction du temps.....	77
IV.4.1. Etude de modélisation.....	77
IV.5. Conclusion.....	78

### **Chapitre V : Etude de simulation de fracturation sur matériau transparent synthétisé**

V.1. Introduction.....	81
V.2. Synthèse du polymère poly(méthacrylate de méthyle) (PMMA) .....	81
V.2.1. Procédure de préparation.....	81
V.2.2. Caractérisation des polymères synthétisés par spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier FTIR.....	83
V.2.3. Caractérisation des polymères synthétisés par RMN.....	84
A. Structure chimique.....	84
V.2.4 Caractérisation mécanique.....	88
A. Propriétés mécaniques.....	88
V.3. Expériences de fracturation hydraulique.....	90
V.3.1. Analyse de sensibilité des paramètres.....	92
V.4. Modélisation analytique.....	95
V.5. Simulation numérique.....	96
V.6. Conclusion.....	98
Conclusion Générale.....	99

Références Bibliographiques.

**Résumé :**

L'objectif de ce travail est d'évaluer les impacts environnementaux liés aux opérations de fracturation hydraulique à travers l'étude des mécanismes d'adsorption des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation et prédire le devenir de ces additifs injectés dans la roche mère.

A travers les résultats obtenus, Il s'avère que la bentonite a un pouvoir très adsorbant du xanthane par rapport aux autres minéraux contenus dans la roche mère. Les trois matrices modèles à savoir la bentonite, la calcite et la kaolinite ont le même pouvoir adsorbant du sp breaker.

Il apparaît, aussi, que le xanthane est un produit biodégradable car c'est un biopolymère de fermentation utilisant le xanthomonas campestris, à l'inverse du sp breaker qui est un produit non biodégradable, nécessitant d'autres méthodes de traitement.

Ces deux résultats nous ont permis de conclure que la bentonite peut être utilisée comme un adsorbant pour le traitement des eaux de retour afin l'éliminer des deux produits cités précédemment (xanthane et sp breaker) dont les quantités ne sont pas négligeables dans ces eaux (flow back) et qui posent un problème environnemental assez important.

Les résultats obtenus à travers l'étude rhéologique ont montré que l'agent gélifiant (xanthane) a tendance à s'épaissir (forte viscosité) quand il est soumis à de faibles contraintes de cisaillement et à se fluidifier (faible viscosité) quand il est soumis à de fortes contraintes de cisaillement. De plus, cet additif présente une viscosité qui augmente avec le temps. Ainsi, les échantillons conservés pendant 24 heures nécessitent plus d'énergie pour être injectés dans le gisement.

Le mélange eau-gélifiant se comporte comme un fluide rhéofluidifiant avec l'existence d'une contrainte critique d'écoulement. Cet écoulement n'est observé que lorsque la contrainte de cisaillement appliquée est supérieure à cette valeur critique.

Par ailleurs, les essais analytiques, numériques et expérimentaux de fracturation hydraulique réalisés au laboratoire sur un certain nombre d'échantillons cylindriques de PMMA synthétisés nous ont permis de conclure que le débit et la taille des fissures initiales ont plus d'impact que la viscosité sur la pression de rupture. Un accord raisonnable a été obtenu entre les résultats des modèles analytiques et numériques comparés aux données expérimentales (réelles). Comparés aux

résultats de l'étude analytique, les résultats de l'étude de simulation numérique sont les plus proches des résultats expérimentaux (réels). Cette bonne corrélation entre les résultats expérimentaux et numériques s'explique par le fait que l'étude analytique ne prend en compte que la profondeur de la fissure, à l'inverse de la simulation numérique, qui prend en considération la forme de la fissure semi-elliptique (demi-longueur et profondeur).

**Mots clés** : schiste, fluide de fracturation roche mère, PMMA.

**Abstract :**

The objective of this work is to evaluate the environmental impacts related to hydraulic fracturing operations by studying the adsorption mechanisms of chemicals additives used in fracturing fluids and to predict the evolution of these additives injected in large quantities into the shale.

Based on the results obtained, it appears that bentonite has a high adsorption capacity of xanthan additive compared to other minerals contained in the shale. The three-model matrices bentonite, calcite and kaolinite have the same adsorption capacity of sp breaker additive. It also appears that xanthan is a biodegradable product, unlike sp breaker, which is a non-biodegradable product, requiring other treatment methods other than the biological method.

These two results allowed us to conclude that Bentonite can be used as an adsorbent for the treatment of return water for the elimination of the two products (xanthan and sp breaker), both of which are present in significant quantities in the return water (flow back) and present a fairly significant environmental problem.

The results obtained by the rheology studies showed that the gelling agent (xanthan) has a high viscosity when applied under low shear stress and a low viscosity when applied under high shear stress. This shear stress tends to increase for the samples conserved for 24 hours and needs more energy to be injected into the shale.

The water-gelling agent mixture behaves like a rheofluidifying fluid with a critical flow stress and flow is only observed when the applied shear stress is above this critical value.

In addition, analytical, numerical and experimental hydraulic fracturing tests carried out in the laboratory on a number of cylindrical samples of synthesized PMMA showed that the flow rate and the initial crack size has more impact than viscosity on breakdown pressure.

A good agreement was obtained between the results of the analytical and numerical models compared to the experimental results. The results of the numerical simulation study are nearly the same as the experimental (real) results compared to the analytical study, because the analytical study only takes into account the depth of the crack, but the numerical simulation, which considers the shape of the semi-elliptical crack (half-length and depth).

**Key Words:** shale, fracturing fluid, source rock, PMMA



## ملخص

الهدف من هذا العمل هو تقييم الآثار البيئية المرتبطة بعمليات التكسير الهيدروليكي من خلال دراسة آليات امتصاص المواد كيميائية المستخدمة في التكسير الهيدروليكي والتنبؤ بمصير هذه الإضافات المستعملة بكميات كبيرة في الصخرة الأم. النتائج التي تم الحصول عليها تبين أن البنتونيت لديه قوة امتصاص قوية للجزائريتين مقارنة بالمعادن الأخرى الموجودة في الصخرة الأم. تتمتع المعادن النموذجية الثلاثة وهي البنتونيت الكالسييت، والكاولين بنفس الامتصاص. يبدو أيضاً أن الجزائريتين منتج قابل للتحلل البيولوجي لأنه بوليمر ناتج عن تخمر جزائريتين من كامبستريس، على عكس س.ب بريكر منتج غير قابل للتحلل يتطلب طرق معالجة أخرى غير الطريقة البيولوجية. سمحت لنا هاتان النتيجتان باستنتاج أنه يمكن استخدام البنتونيت كمادة لمعالجة المياه الراجعة للتخلص من المنتجين س.ب بريكر و الجزائريتين اللذين لا يمكن إهمال كميتهما في الماء والتي تشكل مشكلة بيئية كبيرة. أظهرت النتائج التي تم الحصول عليها من خلال دراسات الريولوجيا أن الجزائريتين يميل إلى التكتاف (لزوجة عالية) عندما يتعرض لضغوط منخفضة ويصبح سائلاً (لزوجة منخفضة) عند تعرضه لضغوط كبيرة. هذه الضغوط ترتفع بالنسبة للعينات المخزنة لمدة 24 ساعة وتتطلب المزيد من الطاقة ليتم حقنها في الخزان. يتصرف خليط جزائريتين - ماء مثل سائل مع وجود ضغط حرج و يلاحظ التدفق فقط عندما يكون ضغط المطبق أكبر من هذه القيمة الحرجة. بالإضافة إلى ذلك، فإن تجارب التكسير الهيدروليكي التحليلي، الرقمي والتجريبي التي أجريت في المختبر على العينات من مادة بولي ميثاكريلات ميثيل الأسطوانية المركبة سمحت لنا باستنتاج أن معدل التدفق وحجم الشقوق الأولية لهما تأثير أكبر من اللزوجة على ضغط الانفجار. تم الحصول على نتائج متوافقة بين النموذجين التحليلي والرقمي مقارنة بالنتائج التجريبية (الحقيقية)، نتائج الدراسة الرقمية قريبة من النتائج التجريبية مقارنة مع النتائج التحليلية لأن هذا الأخير يأخذ بعين الاعتبار عمق الصدع فقط على العكس، الدراسة الرقمية تأخذ في الاعتبار العمق و نصف طول الصدع معاً.

مفاتيح: الصخرة الزيتي، سائل تكسير الصخرة الأم، ميثاكريلات

## **Introduction générale :**

Après plusieurs années d'exploitation d'un gisement conventionnel, la pression commence à diminuer dans le puits ce qui conduit naturellement à une baisse de la productivité et par conséquent une diminution des réserves. Cette situation a poussé l'industrie pétrolière à exploiter d'autres gisements moins accessibles et plus coûteux. Parmi eux, les gisements non conventionnels d'hydrocarbures (gaz et pétrole de schiste).

Pour extraire ces gaz de schiste, on procède à la fracturation hydraulique. C'est un processus qui crée artificiellement des fractures qui se propagent dans la roche réservoir en fournissant des conduites pour les hydrocarbures.

La fracturation d'un puits nécessite environs 10 000 à 20 000 m<sup>3</sup> d'eau. Un mélange d'eau, d'additifs chimiques (ayant pour rôle de modifier les propriétés physiques de l'eau) et d'agents de soutènement, est injecté sous haute pression dans le puits. Pour 15 000 m<sup>3</sup> d'eau, 800 à 900 m<sup>3</sup> d'agents de soutènement sont nécessaires.

Le principe de la fracturation hydraulique est d'injecter dans la roche mère un fluide (généralement de l'eau) additivé de produits chimiques, sous haute pression afin d'engendrer des fractures au sein de la roche. Cette procédure va permettre d'introduire des agents de soutènement dits « proppants » (généralement du sable ou des billes de céramique) dans les fractures créées, maintenant ainsi les fissures ouvertes, ce qui permet au gaz piégé dans la roche de se s'échapper [1].

Cette technique a ouvert l'accès à de grandes réserves de gaz non conventionnel qui pourraient améliorer la sécurité énergétique et la prospérité économique des pays en leur offrant la possibilité de diversifier leurs sources énergétiques. Pourtant, des questions sur la sécurité de cette technique persistent et sont accrues par le secret qui entoure les produits chimiques utilisés dans les opérations de fracturation ainsi que leurs devenir dans le sous-sol.

Plus de 2 500 produits chimiques sont souvent utilisés dans les opérations de fracturation. Certains sont en apparence inoffensifs comme le chlorure de sodium (sel) et l'acide citrique. D'autres pourraient nuire à la santé humaine ou polluer l'environnement [2].

Les compagnies de services tendent à réduire à la fois, le nombre, la quantité et la nature des additifs du point de vue toxicité. Les avancées technologiques ont permis de substituer ces additifs toxiques par d'autres non dangereux dérivant de l'industrie

alimentaire, comme la gomme de guar, ou par des additifs peu toxiques utilisés à faible dosage.

Ce travail de thèse a pour objectif d'évaluer les éventuels impacts environnementaux liés aux opérations de fracturation hydraulique réalisées au sud de l'Algérie.

L'exploitation des ressources non conventionnelles apparaît comme une alternative de choix pour l'Algérie dans l'objectif de répondre aux programmes de développement économique et social. Avec des réserves importantes en gaz de schiste et face à un besoin stratégique en énergie, l'Algérie s'est engagée pour l'évaluation et l'exploitation de ses réserves. La fracturation hydraulique est aujourd'hui la technique la plus appropriée pour l'exploitation des gaz de schiste. A ce sujet, la protection et le respect de l'écosystème et de l'environnement d'exploitation sont étroitement liés à la bonne maîtrise de cette technique.

Ce travail s'articule autour de trois parties :

- La première partie de ce manuscrit est dédiée à l'étude des mécanismes d'adsorption des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation pour une évaluation de l'impact de ces produits sur l'environnement et prédire le devenir de ces additifs injectés en grandes quantités dans la roche mère.
- La deuxième partie est consacrée à l'étude du comportement rhéologique du mélange eau - agent gélifiant en traitant la modélisation du mélange eau-gélifiant (polymère) et l'optimisation de la concentration du gélifiant. Le gélifiant est un polymère qui permet d'augmenter la viscosité du fluide et d'améliorer la capacité de transport du proppant (agent de soutènement) dans les fractures ouvertes par la pression du fluide.
- Dans la troisième partie, nous avons exploité les résultats obtenus dans la deuxième partie pour réaliser des expériences de fracturation hydraulique sur un matériau transparent en PMMA, en variant différents paramètres, notamment la taille de la fissure initiale, le débit d'injection et la viscosité du fluide.
- Une modélisation analytique ainsi qu'une analyse par la méthode des éléments finis a été réalisées en utilisant le Logiciel « Ansys ». Cela nous a permis de valider les résultats et les comparer à ceux des résultats expérimentaux.

***Chapitre I : Objectifs de la thèse & analyse bibliographique***

## **I. Objectifs de la thèse :**

Au cours des dix dernières années, les ressources non conventionnelles en hydrocarbures ont considérablement modifié les marchés du pétrole et du gaz, entraînant la situation de bas prix actuels. Actuellement, les hydrocarbures constituent la source d'énergie qui contribue le plus à répondre à nos besoins énergétiques. La demande étant de plus en plus grandissante et la consommation mondiale est en nette augmentation, d'où la nécessité d'accroître la production.

L'augmentation de la production de ces ressources réside dans le succès des opérations de fracturation qui augmentent la perméabilité des roches. Une bonne opération de fracturation dépend souvent de la composition des fluides de fracturation utilisés (agents de soutènement et additifs chimiques) mais aussi des paramètres choisis et de la modélisation de cette fracturation.

Ainsi, notre thèse s'articule autour de trois thématiques qui sont :

- Les fluides de fracturation,
- Les interactions fluides de fracturation-roche,
- La modélisation de la fracture.

Avec pour objectif d'évaluer les impacts environnementaux liés aux opérations de fracturation hydraulique à travers l'étude des mécanismes d'adsorption des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation et prédire le devenir de ces additifs injectés dans la roche mère.

## **Bibliographie**

### **I.1. Généralités :**

#### **I.1.1. Définition des hydrocarbures :**

On désigne par « hydrocarbures » le pétrole et le gaz provenant de la transformation de la matière organique piégée dans une roche, appelée roche-mère.

L'accumulation dans une roche poreuse et perméable forme des gisements. Cette roche est nommée roche réservoir. En absence de roche imperméable sur son trajet, l'hydrocarbure expulsé remonte jusqu'en surface. Le pétrole étant inflammable, il se consume lentement lorsqu'il se retrouve en surface.

#### **I.1.2. La Fracturation hydraulique :**

Aux États-Unis, bien que la première production commerciale de gaz naturel qui provenait d'une roche shale (Dévonien), riche en matière organique, a été réalisée en 1821[3], les recherches sur la technique de fracturation hydraulique ont débuté

dans les années 1860. Cette technique fut expérimentée dans un premier temps en 1947, puis a connu sa première utilisation industrielle le 17 mars 1949 par la société de service Halliburton qui a réalisé les deux premières fracturations commerciales à Oklahoma et au Texas [4]. La fracturation hydraulique est une technique efficace de stimulation des puits. La méthode consiste à injecter un fluide dans une roche réservoir à une pression et un débit suffisant pour que de nouvelles fractures puissent être créées [5].

La fracturation hydraulique vise à augmenter artificiellement la perméabilité des roches mères par l'injection de fluide de fracturation dans le puits de forage [6].

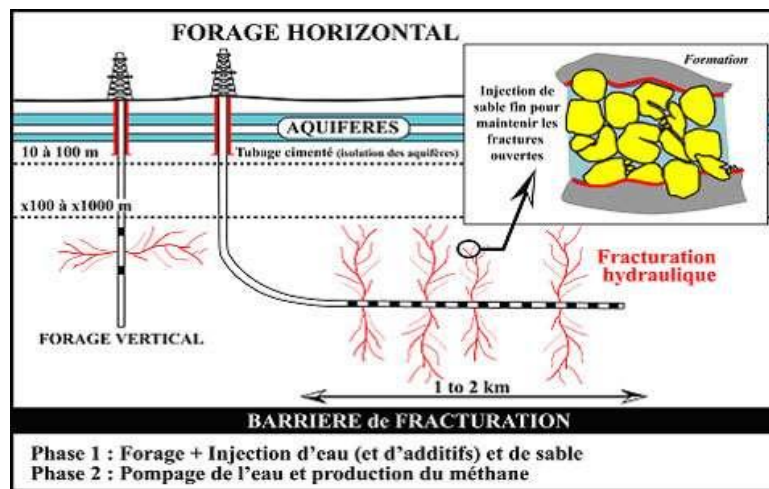


Figure I.1 : Illustration d'une opération de fracturation

La fracturation de la roche est obtenue par l'injection du fluide à haute pression dans la formation géologique. Ce fluide est composé, de 90 % d'eau, 9 à 9.5 % de proppants qui vont s'infiltrer dans les micros fractures et empêcher qu'elles se referment et de 0.5 à 1% d'additifs chimiques pour améliorer l'efficacité du fluide injecté.

## I.2. Analyse des opérations de fracturation hydraulique à travers le monde :

Les plus grands pays consommateurs d'énergie au monde ont trouvé un moyen de remédier à cette dépendance énergétique et assurer l'autosuffisance énergétique, et ce grâce à des avancées technologiques dans le domaine de l'extraction notamment le forage horizontal et de la fracturation hydraulique pour l'exploitation des hydrocarbures des roches shales. Au début du XXI siècle, ces pays considérés comme grands consommateurs, ont pu améliorer leurs productions et importent désormais moins. Durant cette période, la production commerciale de ce type de gaz

s'est limitée à deux pays seulement, les États-Unis et le Canada, qui représentent respectivement 87 et 13 % de la production mondiale [7].

### **I.2.1. Etats Unis d'Amérique :**

Comme il a été évoqué précédemment, les techniques d'exploitation des réservoirs non conventionnels en Amérique sont actuellement bien maîtrisées, les deux premières fracturations commerciales à Oklahoma et au Texas ont eu lieu à la fin des années 1940, mais le développement de la production et l'exploitation du gaz de roche mère à grande échelle aux États-Unis a débuté au milieu des années 2000.

Aux États-Unis, près de 500 fracturations sont réalisées chaque semaine. Actuellement plus de 50% des puits forés sont fracturés hydrauliquement. Cette révolution technologique a fait augmenter leurs réserves et sont même devenus exportateur net de gaz pour la première fois en 2010 [8].

Des textes ont encouragé donc l'exploitation des gaz de schiste. Le premier, une incitation fiscale pour la production locale des hydrocarbures non conventionnels, cela à favoriser le développement de ce type d'hydrocarbures [9].

Le second texte en raison de l'article 322 de l'Energy Policy Act. de 2005, qui stipule que la fracturation hydraulique est exemptée des contraintes de la loi sur la sécurité de l'eau potable (SWDA : Safe Drinking Water Act). Une loi qui vise à protéger la qualité de l'eau potable [9]. Enfin, aux États-Unis le propriétaire du foncier peut à la fois prospector librement son sous-sol et l'exploiter.

### **I.2.2. Canada :**

Le Canada possède les troisièmes plus grandes réserves de pétrole non conventionnel après l'Arabie saoudite et le Venezuela [10]. En 2014, plus de 500 000 puits de pétrole et de gaz naturel ont été forés au Canada, dont plus de 375 000 en Alberta. La première production de gaz de schiste au Canada a été réalisée à Montney Play Trend en 2005 et à Horn River en 2007. Toutes les deux situées dans le nord-est de la Colombie-Britannique, où les activités de forage se sont rapidement développées [11]. L'extraction du pétrole de schiste a été développée dans les provinces de l'Alberta et de la Colombie-Britannique, principales régions productrices de gaz de schiste où plus de 70 % du gaz naturel des réservoirs shales sont extraits par les techniques de fracturation [7]. Les réserves existantes dans ce pays peuvent potentiellement fournir une part importante de la demande énergétique future du Canada. La production de gaz des réservoirs Tight et schiste, extraits par la

technique de fracturation hydraulique, représentait environ 64 % de la production de gaz naturel du Canada en 2017 et devrait passer à environ 76 % d'ici 2040 [10].

Du point de vue juridique, les ressources énergétiques qui se trouvent au sous-sol des différentes provinces au Canada appartiennent à ces dernières et sont donc gestionnaires de leurs ressources énergétiques. Elles sont chargées, aussi, de mettre à jour la réglementation de leurs exploitations pour qu'elle représente la nature évolutive des technologies d'extraction du pétrole et du gaz.

Le Canada dispose d'une réglementation solide qui vise à préserver l'environnement, principalement les eaux souterraines, les eaux de surface, le sol et le sous-sol.

Depuis le début des années 2000, pour atténuer les risques engendrés par le recours à la technique de fracturation hydraulique, les entreprises exploitantes sont légalement obligées de rendre publiques plusieurs informations, notamment la liste des additifs injectés dans le sous-sol et les quantités d'eau injectées, ce qui a contribué à éviter toute pollution locale dans les aquifères.

Dans cette rubrique nous pouvons citer également le cas de la France et l'Algérie.

### **I.2.3. France :**

La France posséderait environ 30 pour cent des ressources totales de gaz de schiste en Europe, principalement situées dans le bassin parisien. L'Agence Internationale de l'énergie (AIE, 2013), estime les réserves en ressources techniquement récupérables de gaz à 3 900 milliards de M<sup>3</sup> et à 05 milliards de barils de pétrole, une estimation sommaire réalisée par extrapolation sans tenir compte des variabilités géologiques des bassins [8]. Un potentiel de gaz non conventionnels estimé à cent ans de consommation. Cependant, l'exploration et l'exploitation de cette ressource d'hydrocarbures liquides ou gazeux par fracturation hydraulique ont été interdites par la loi n° 2011-835 du 13 juillet 2011, visant à interdire le recours à la technique de la fracturation hydraulique même pour des opérations d'exploration. Cette réglementation a rendu impossible l'évaluation des ressources en gaz de schiste, potentiellement exploitables, dans le sous-sol français.

### **I.2.4. Algérie :**

A la différence de la France, l'Algérie a décidé de procéder à des estimations et de mener des travaux d'exploration de ces ressources non conventionnelles et de réaliser un inventaire complet des ressources en hydrocarbures non conventionnels.



En effet, deux forages d'exploration des ressources non conventionnelle ont été réalisés en Algérie dans la région d'Ahenet.

Selon l'agence internationale de l'énergie, les réserves de l'Algérie en ressources techniquement récupérables sont estimées à 20 020 milliards de M3 de gaz (AIE, 2013). Cette valeur a été revue à la hausse suite à une étude sur le potentiel minier algérien en hydrocarbures réalisée par l'Agence nationale pour la valorisation des ressources en hydrocarbures "Alnaft", qui a estimé les ressources non conventionnelles algériennes à 9.818 TCF (Trillion Cubic Feet) de gaz et 1.194 milliards de baril de pétrole. Avec ces nouvelles données, l'Algérie passerait à la 3ème place dans le classement mondiale des réserves en matière de gaz de schiste, après les Etats-Unis et la Chine et au 7ème rang mondial pour le pétrole de schiste.

### **I.3. Les interactions fluide-roche :**

Le premier objectif de cette thèse est de présenter les études d'adsorption des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation. Ces études nous permettent d'évaluer leur impact sur l'environnement en étudiant les différentes interactions d'une part entre les produits chimiques et les différentes matrices modèles qui composent la roche mère et d'autre part, les interactions entre les produits chimiques et les agents de soutènement. Enfin, prédire le devenir de ces additifs injectés en grandes quantités dans la roche.

Récemment, de nombreuses études ont mis en évidence l'adsorption des polluants inorganiques et organiques sur des argiles.

Meroufel-Zenasni et al [12] ont étudié l'adsorption des métaux lourds et colorants synthétiques sur des matériaux argileux et végétaux en utilisant une technique d'adsorption en batch. Dellache et al [13] ont mené des études sur l'adsorption du plomb sur des argiles modifiées.

Usman et Rabie [14] ont réalisé des expériences d'équilibre en utilisant un mélange de solutions métalliques sur plusieurs échantillons de sols égyptiens (schiste) ayant des propriétés physico-chimiques et minéralogiques différentes. Mimanne et al [15] ont étudié l'adsorption des métaux lourds (Pb et Cd) en solution aqueuse sur charbon actif et montmorillonite sodée. Toutefois, très peu d'études ont été menées sur l'adsorption des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation sur des minéraux modèles qui constituent la roche mère.

### **I.3.1. La roche mère :**

Dans la littérature, une roche-mère résulte de l'accumulation de substances minérales (principalement des argiles) et de matières organiques qui se déposent au cours du temps au fond des océans [16]. Elle désigne la roche où se forment des hydrocarbures issus de la transformation de sédiments riches en matière organique sous l'effet de l'enfouissement, la pression et de la température géothermique.

Une fois produit dans la roche-mère, une partie de ces hydrocarbures est expulsée et migre vers la surface. Il arrive très souvent, lors de cette migration, que les hydrocarbures rencontrent une roche imperméable : c'est la roche couverture. Les hydrocarbures stagnent donc sous cette roche.

### **I.3.2. L'agent de soutènement :**

Comme il a été signalé précédemment, l'agent de soutènement ou « proppant » joue un rôle très important dans les opérations de fracturation. Il permet de maintenir les fractures néoformées ouvertes dans la roche une fois la pression relâchée (dégorgement). Ces fractures induites créent une voie d'écoulement plus perméable pour les hydrocarbures du réservoir au puits de forage que celle qui existe naturellement dans la formation souterraine. Ces agents de soutènement doivent posséder des propriétés qui doivent répondre à certaines exigences pour remplir pleinement leur rôle et obtenir les performances souhaitées. Parmi ces propriétés, on peut noter celles citées dans la norme ISO 13503-2 (Partie 2) [17] :

- La résistance mécanique à l'écrasement (qui doit permettre de supporter une compression d'environ 13,8 MPa (environ 2 000 psi), même si la valeur varie énormément en fonction de la profondeur du puits),
- La composition chimique,
- Une turbidité qui ne doit pas excéder 250 FTU (NTU). Et ce, pour des raisons de traitement des eaux et des questions environnementales,
- Le comportement et la solubilité dans les acides (12/3 : HCl/HF), afin de donner l'aptitude à l'agent de soutènement à être utilisé dans des applications où il peut entrer en contact avec des acides,
- Une parfaite rondeur et sphéricité, Il est nécessaire que les agents de soutènement céramique ou céramique enrobée de résine aient une sphéricité et une rondeur moyenne de 0,7 ou plus. Pour le sable naturel, il doit avoir une sphéricité et une rondeur moyenne de 0,6 ou plus.

Ces propriétés macroscopiques ont donné lieu à de multiples recherches pour le contrôle et l'amélioration des performances de ces paramètres. L'agent de soutènement doit avoir une résistance mécanique suffisante pour supporter les contraintes de fermeture des fractures induites et assurer une perméabilité relativement élevée dans la fracture. Différentes particules creuses ont été fabriquées à des fins d'utilisation comme agent de soutènement, à partir de divers matériaux tels que des polymères, du métal, de la céramique et du verre [18]. D'autres recherches ont porté sur divers oxydes métalliques, en raison de leur résistance chimique et thermique.



Figure I.2 : Des grains de proppant enrobés de résine [19]



Figure I.3 : Des grains de proppant en céramique. [19]

Des particules creuses et uniformes synthétisées par une combinaison de procédés en utilisant un large éventail de matériaux ont été mises au point par Caruso et Frank [18] cette combinaison a permis de contrôler facilement la taille, la forme, la composition et l'épaisseur des parois de ces particules creuses synthétisées. Jennings et al [20] ont utilisé le carbure de silicium comme agent de soutènement lors d'un processus de fracturation hydraulique. Ce type de proppant est particulièrement utile lors de l'injection de la vapeur ; une méthode d'extraction des hydrocarbures par effet thermique qui consiste à chauffer la roche à partir de vapeur. Cet agent de soutènement est résistant à l'essai d'écrasement [17] et ne réagit pas au contact avec les acides HCl et HCl/HF. Les températures élevées du réservoir n'ont pas affecté cet agent de soutènement. Les fractures induites sont donc mieux soutenues [20].

Pour réduire le phénomène de reflux du proppant dans le flow-back, Nguyen et al ont utilisé deux types d'agents de soutènement, l'un mélangé avec des matériaux fibreux

et l'autre avec un film thermoplastique. Ces mélanges ont été testés sur une large gamme de températures, de contraintes de fermeture et de débit d'injection [21].

### **I.3.3. Les fluides de fracturation :**

Le succès d'une opération lourde telle que la fracturation hydraulique des roches repose sur les performances du fluide de fracturation. Cependant, bien qu'actuellement ce terme fasse référence à l'utilisation d'un fluide à base d'eau, le fluide de fracturation peut être composé à partir de certains gaz tels que l'hélium, le propane, le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) ou l'azote, qui permettent d'élaborer des fluides de fracturation peu visqueux, assurant un excellent transport des agents de soutènement [22] et, éventuellement plus efficaces que l'eau pour l'extraction des hydrocarbures [8]. Ce sont des fluides composés d'un matériau non miscible à l'eau. Ils ont un très bon contrôle des pertes de fluide dans la roche, et sont facilement récupérables lors du traitement des fluides de retour.

Des gaz liquéfiés peuvent être utilisés seuls ou avec des additifs afin de constituer des mousses [8]. Ces fluides doivent rester à l'état liquide pour permettre d'assurer le transport du sable et générer une fracture. Il faut pour cela que la température du fond du puits soit contrôlée. A titre d'exemple, la température au fond du puits doit être ramenée à 31°C ou moins pour un fluide à base de CO<sub>2</sub>, ce qui correspond à la température critique du CO<sub>2</sub> [23]. Les pertes de pression par frottement sont plus élevées qu'avec les fluides de fracturation conventionnels [23]. Ce sont les principales contraintes liées à l'utilisation de ces gaz liquéfiés dans les opérations de fracturation.

D'autres techniques sont en cours de développement telles que la fracturation par arc électrique, thermique et pneumatique.

Actuellement, la totalité des fluides de fracturation utilisés pour la stimulation des réservoirs non conventionnels sont principalement constitués d'eau et de proppants mais comprennent également divers additifs. Le nombre d'additifs chimiques utilisés dans une opération de fracturation hydraulique varie en fonction des caractéristiques de l'eau et de la formation à fracturer. Les fluides de fracturation hydraulique sont très variés et contiennent un nombre important de substances chimiques dont la toxicité et/ou la cancérogénicité sont connues et qui constituent une menace pour l'environnement, la santé et la sécurité des travailleurs [24]. Chaque composant a une fonction spécifique. Les compositions chimiques de ces fluides consistent

généralement en un mélange de polymères, de biocides, de tensioactifs, de réducteurs de friction, d'additifs de contrôle de la corrosion, d'agents de réticulation, de breaker et d'autres additifs destinés à faciliter le processus d'extraction. Une description et l'usage des différents additifs chimiques sont donnés dans le tableau ci-dessous [22].

**Tableau I.1** : Liste des additifs du fluide de fracturation et leurs utilisations

Additif	Nom chimique	Usage/Rôle
Agents gélifiants/ Polymères	Gomme de guar xanthane	augmente la viscosité du fluide de fracturation, il permet d'améliorer la capacité de transport du Proppant dans les fractures ouvertes
Crosslinkers	Sels de borate	Maintien de la viscosité à haute température
Breakers	Oxydants	Réduction de la viscosité, par la dégradation des gels de polymères
Particules solides/ proppants	Sables, oxyde d'aluminium	Maintien de l'ouverture de la fracture
Surfactants	Alcools	Réduction de la tension de surface du fluide
Réducteurs de Friction	Polyacrylamides	Réduction des frictions et pertes de charges
Biocides	Glutaraldéhyde, chlorure d'ammonium	Elimination des bactéries qui pourraient acidifier le milieu (facteur de corrosion)

Le fluide de fracturation doit également remplir d'autres fonctions en introduisant d'autres additifs comme un Anti-dépôts pour protéger le tubage et la formation géologique des dépôts.

Dans le cadre de l'étude de la performance des fluides de fracturation, cette partie vise également à présenter une étude du comportement rhéologique du mélange eau - agent gélifiant (polymère), l'objectif est de préparer un fluide visqueux optimisé utilisé durant les opérations de fracturation hydraulique des réservoirs non conventionnels. Ce fluide doit présenter des propriétés rhéologiques diverses lui permettant de :

- Faciliter la création d'un réseau de fissures aussi complexe que possible et transporter efficacement l'agent de soutènement dans ce réseau de fissures interconnectées, il est donc nécessaire que le fluide doit avoir une forte viscosité

voire un seuil d'écoulement au repos pour éviter le dépôt des agents de soutènement.

- Pénétrer facilement la roche lors de son injection et minimiser ainsi le travail des pompes.
- Faciliter la récupération du fluide de retour (flow-back) à la fin de l'opération de fracturation.

#### **I.4. Modélisation de la fracturation :**

##### **I.4.1. Apport de la modélisation :**

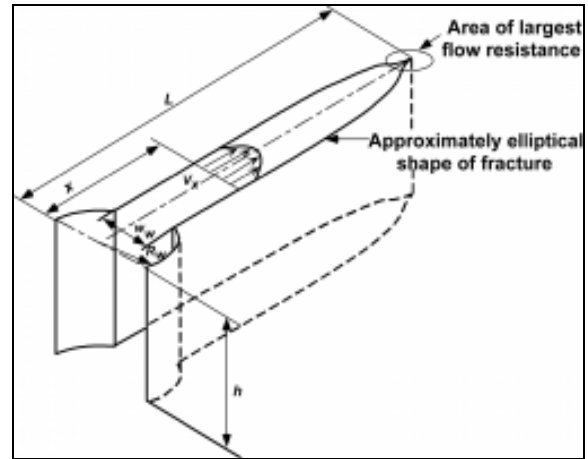
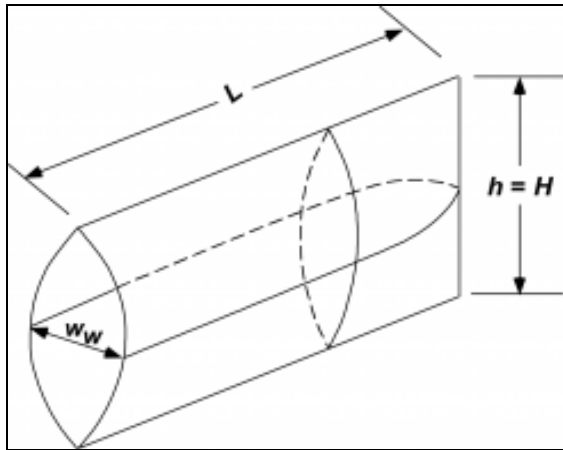
La modélisation ne peut s'assurer que par des méthodes de calcul et des formules pratiques exactes. Les travaux de modélisation de la propagation des fractures se sont considérablement améliorés, ces dernières années, grâce à l'apport des outils de l'informatique permettant une meilleure compréhension des données souterraines. Pour concevoir un traitement du modèle de fracturation hydraulique, il est nécessaire de prédire la propagation géométrique de la fracture en fonction des paramètres de traitement (longueur, largeur et hauteur d'une fracture) qui, par conséquent, influent considérablement sur la production du gaz et du pétrole provenant du réservoir ayant subi une opération de fracturation [25].

##### **I.4.2. Les modèles développés :**

Divers modèles sont utilisés pour définir d'une manière approximative la propagation et la géométrie des fractures. Parmi ceux utilisés dans l'industrie pétrolière, les modèles KGD et PKN sont les plus connues.

Ce modèle a été proposé et développé par Kristianovitch et Zheltov (1955), Geertsma et De Klerk (1969). Ce modèle suppose que la section de la fracture est une ellipse horizontale avec des conditions en déformations planes [26].

Quant au second, développé par Perkins et Kern (Perkins et Kern, 1961), on suppose que la fracture a une section elliptique avec des conditions en déformations planes et une hauteur fixe (les contraintes dans les couches du dessus et du dessous sont suffisamment importantes pour empêcher la propagation en hauteur) [25].



**Figure I.4:** Géométrie du Modèle PKN [27] **Figure I.5:** Géométrie du Modèle GDK [27].

Malgré d'importants efforts de recherches déployés, le processus reste sous-optimal en raison de l'hétérogénéité des propriétés et de la structure de la roche ainsi que de l'état de contrainte in situ vu la complexité du processus de fracturation hydraulique. Il est difficile de prédire ou même de mesurer le comportement des fractures hydrauliques dans les conditions de terrain.

Pour cela, nous avons développé un montage au laboratoire pour la simulation des essais et produire hydrauliquement des fractures sur des matériaux transparents synthétisés en variant différents paramètres, en particulier la taille de la fissure initiale, le débit d'injection et la viscosité du fluide. Les fractures qui en résultent ont été validées et comparées à ceux des résultats des études analytique et numérique par la méthode des éléments finis.

Bien que cette approche ne tienne pas compte des conditions réelles que subit un volume de roche qui subit l'action de trois contraintes : verticales, horizontale minimale et horizontale maximale, cette simple technique de laboratoire est très utile et efficace pour la production et l'observation de la propagation des fractures induites en temps réel.

Dans la littérature, de nombreux articles ont fait objet d'études de la propagation hydraulique de la fracture par des travaux de simulation à l'échelle de laboratoire sans prendre en considération l'effet de la taille initiale de la fissure (initial crack size). Frash et al (2014) ont mené des études de simulation sur le granit, le calcaire et le béton [28]. Ruiting et al (2007) ont introduit une technique simple pour contrôler l'orientation et la taille des fractures sur des échantillons de laboratoire, cela a été réalisé en chauffant ou en refroidissant les échantillons avant d'injecter du liquide de



fracturation [29]. Guruprasad et al (2012) ont étudié l'effet de la pression, de la température et du diamètre des trous d'injection sur la longueur de la fracture en utilisant des échantillons de PMMA [30].

Han Yi et al (2016) ont utilisé un modèle de propagation de fracture hydraulique basé sur la méthode des éléments finis étendue (XFEM) pour étudier l'interférence des fractures induites par un fluide dans des puits horizontaux [31], alors que Vahab et al (2017) ont utilisé cette méthode afin d'étudier les effets des différents régimes d'écoulement du fluide de fracturation sur le processus de hydrofracturation [32].

Yao et al (2018) reviennent à la méthode XFEM pour prédire l'extension de la fracture rencontrant une fracture naturelle sous des contraintes et afin d'obtenir la pression de fluide critique nécessaire pour traverser cette fracture naturelle [33].

Dontsov et al (2017) ont développé une solution approximative pour une fracture hydraulique à propagation plane dont le comportement a été évalué par une interaction combinée entre la viscosité du fluide et de la ténacité du matériau [34].

Jianchun et al (2017) ont étudié le comportement de propagation hydraulique dans le réservoir en utilisant la méthode des éléments finis. Ces auteurs ont étudié l'influence des paramètres géologiques et les paramètres de l'opération de fracturation sur la géométrie des fractures [35]. Guosheng et al (2018) ont utilisé la méthode des éléments finis pour étudier la sensibilité de la direction de propagation des fractures en fonction des propriétés de la roche (module de Young et coefficient de Poisson) [36]. Zhuo et al (2018) ont proposé un modèle théorique pour la fracturation hydraulique à travers une seule perforation radiale émanant d'un trou de forage afin d'étudier le comportement de la fracture [37].

Yintong et al (2018) ont étudié une comparaison entre trois carottes de forage distinctes avec différentes densités de couches de la roche ont été recueillies. Les propriétés mécaniques (module d'élasticité, coefficient de poisson) des roches schisteuses et la morphologie des fractures ont été étudiées [38]. Xing et al (2018) ont étudié l'effet des contraintes et de la pression sur la croissance de la fracture. Cette étude a été réalisée sur un matériau transparent en polyuréthane qui permet l'observation directe de la géométrie de la fracture dans toutes les directions [39]. Wanniarachchi et al (2018) ont étudié l'effet du fluide de fracturation sur le comportement des fractures et la perméabilité de la roche de silstone fissurée en utilisant deux types de fluide à base d'eau et à base de mousse [40].



Fu et al (2018) ont proposé une nouvelle solution analytique vérifiée par des tests expérimentaux en laboratoire pour prédire le résultat lorsqu'une fracture hydraulique induite traverse perpendiculairement une fracture naturelle [41]. Heider et al (2018) ont utilisé des modèles d'éléments finis en deux et trois dimensions et les ont comparés à des essais de fracturation hydraulique réalisés au laboratoire [42].

Les auteurs Zhiyuan et al (2019) ont étudié l'influence des fissures naturelles sur la propagation des fractures hydrauliques [43]. Yang et al (2019) ont étudié la fracturation hydraulique du polydiméthylsiloxane (PDMS) pour comprendre les défaillances dues à des défauts dans les élastomères ultra-souples [44]. Jun Xie et al (2020) introduisent un modèle de propagation de fractures hydrauliques en 3D. Ce modèle traite la déformation des roches et de l'écoulement des fluides [45]. Gan et al ont mené des expériences en utilisant des blocs de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et ont pu créer des fractures longitudinales et transversales en modifiant les conditions de contrainte appliquées [46].

Notre travail a porté sur la synthèse et l'utilisation du PMMA pour visualiser d'une part la carotte synthétique sous l'effet des contraintes, et suivre d'autre part le déclenchement de la fracture et sa propagation.

### **I.5. Conclusion :**

L'emploi de la fracturation hydraulique pour l'exploitation des ressources non conventionnelles, soulève de nombreuses interrogations relatives aux impacts environnementaux, sociaux et économiques, notamment celles concernant les risques potentiels sur la santé, l'aménagement des sites de forage, les importants besoins en eau et la vulnérabilité de cette ressource souterraine et de surface, ainsi que la contamination des sols.

La pollution engendrée par les opérations de fracturation hydraulique entraîne des coûts supplémentaires environnementaux importants. Ceux-ci comprennent les coûts dus à la réhabilitation des sites de forage, la pollution des puits d'eau potable, de l'air, notamment, les gaz à effet de serre.

Les coûts des fluides de fracturation représentent entre 10 et 40% du coût total d'une opération de fracturation d'un puits. Ils dépendent des quantités d'eau, des produits chimiques et des agents de soutènement utilisés. Le coût du processus et particulièrement celui du fluide utilisé doivent être pris en compte pour la réussite d'une opération de fracturation.

D'autre part, l'écoulement du fluide de fracturation dans les fissures naturelles ou induites peut aboutir à une infiltration ou migration dans les zones adjacentes ce qui constitue une menace de pollution des nappes sous terraines. Il est donc important de bien diriger la propagation des fractures induites en réalisant des simulations et modélisations afin de prédire la propagation géométrique de la fracture et limiter son extension.

Les recherches scientifiques devraient être orientées vers l'identification des impacts qui peuvent être engendrés par l'utilisation de la fracturation hydraulique et évaluer la performance des techniques utilisées pour l'exploitation de ces ressources non conventionnelles ainsi que l'apport de la technologie des fluides de fracturation qui peuvent être sans risques de pollution des nappes sous terraines, sol et atmosphérique et ce indépendamment du type d'hydrocarbures exploiter, voire même proposer d'autres techniques alternatives ou améliorer celles existantes.

**Chapitre II : Matériels et Méthodes**

## **II. Matériels et méthodes :**

Dans le cadre de cette thèse nous avons fait appel à plusieurs techniques et méthodes pour la caractérisation physico-chimique des matériaux utilisés à savoir : les minéraux constituant la roche mère, les agents de soutènement, les fluides de fracturation.

Dans un second volet nous avons conçu et développé un montage pour la simulation à l'échelle laboratoire de l'essai de fracturation hydraulique.

Enfin, pour la validation des résultats expérimentaux obtenus au laboratoire, une modélisation analytique ainsi qu'une analyse par la méthode des éléments finis ont été réalisées en utilisant le Logiciel « Ansys ».

### **II.1. Caractérisation de la matrice minérale :**

Deux équipements ont été utilisés pour la caractérisation de la roche mère et l'identification des matrices qui la composent.

#### **II.1.1. Analyse minéralogique par diffractométrie des rayons X (DRX) :**

**Principe d'analyse :** l'échantillon de roche mère finement broyé, est monté sur un porte échantillon adéquat, puis soumis à un faisceau des rayons X pour être diffractés par les plans réticulaires des phases cristallines présentes. En effet, il existe une relation entre l'angle du faisceau diffracté et la distance réticulaire séparant les plans d'atomes au sein d'un réseau cristallin. Celle-ci est régie par la loi de Bragg :  $n \lambda = 2d \sin \theta$  avec :

$\lambda$ : longueur d'onde en Angström.

d: distance réticulaire en Angström.

$\theta$  : l'angle de diffraction ou de réflexion en degrés.

Les diffractogrammes ainsi obtenus, à l'aide d'un diffractomètre à rayons X, sont interprétés. Les positions et les intensités de pics observés sont comparés à ceux des fichiers de références PDF-ICDD (Powder Diffraction File-International Center for Diffraction Data).

L'identification des phases minéralogiques présentes et éventuellement l'utilisation de RIR (Reference Intensity Ratio) inclus dans le logiciel HighScore Plus du fichier PDF-ICDD permet l'estimation semi quantitative des phases correspondantes détectées. Le diffractomètre utilisé est de type PANalytical Empyrean

Les conditions d'analyse sont :

- Puissance du générateur à RX: 40 mA, 45 kV,
- Longueur d'onde CuK $\alpha$  [Å]: 1,5418
- Angle de départ [ $^{\circ}$ 2Th.]: 3,0000
- Angle final [ $^{\circ}$ 2Th.]: 70,0000
- Taille du pas [ $^{\circ}$ 2Th.]: 0,0131
- Temps du pas [s]: 248,370
- Logiciel pour l'acquisition des données: DataCollector de PANalytical
- Logiciel pour traitement des données: HighScore Plus de PANalytical.

### II.1.2. Analyse par fluorescence des rayons x (fx) :

**Principe d'analyse** : l'échantillon de roche mère est séché, réduit en poudre, est mélangé à du tétra borate de lithium puis porté à une fusion à 1200°C afin d'obtenir un verre transparent homogène (perle boratée) qui sera utilisé pour l'analyse des éléments majeurs. En ce qui concerne l'analyse des éléments en traces, l'échantillon est mélangé à la cire pour subir un pressage et obtenir une pastille.

La perle ou la pastille ainsi obtenue est soumise à une source de rayonnement X primaire, il s'ensuit une excitation des atomes qui vont émettre un rayonnement X secondaire de fluorescence caractéristique de la composition chimique de l'échantillon analysé. Selon un programme d'analyse établi préalablement sur des standards internationaux par type d'échantillon, les concentrations des éléments chimiques composants l'échantillon sont déterminées.

#### **Conditions d'analyses :**

La concentration d'un échantillon inconnu est déterminée par des courbes d'étalonnage qui sont tracées pour chaque élément après avoir fixé tous les paramètres de mesure (kV-mA, cristal analyseur, collimateur, la longueur d'onde d'émission, le temps de mesure et le détecteur). L'équipement utilisé est de type spectromètre séquentiel (à dispersion de longueur d'onde) « Bruker-Axs » : S8 TIGER. Le traitement des données est réalisé par un software « Spectra plus ».

La perte au feu (PAF) est obtenue par calcination de l'échantillon brut à l'état naturel (sans séchage) dans un four à 1000 °C pendant une heure. Elle exprime la fraction volatile de l'échantillon (humidité, CO<sub>2</sub>, matière organique, etc).

## II.2. Etudes d'interactions additives–matrices minérales et additives proppant :

Les quantités adsorbées des additifs sur les différentes matrices modèles ainsi que sur l'agent de soutènement sont mesurées en utilisant la spectroscopie Ultraviolet-Visible à double faisceau de l'équipement type Shimadzu UV-1700 series.

Les densités optiques sont mesurées à l'aide des cellules en quartz de 1 cm de trajet optique. Nous avons procédé à un balayage (mode SCAN) des solutions afin de déterminer la longueur d'absorption maximale  $\lambda_{max}$  des additifs utilisés : xanthane et sp breaker,.

Enfin les quantités adsorbées sont déterminées à partir du rapport suivant :

$$q_{ads} = \left[ \left( \frac{C_0 - C_t}{m} \right) \right] * V_L$$

$C_0$ : Concentration initiale d'additif ( $\text{mg.L}^{-1}$ ).

$C_t$ : Concentration en additif à temps t ( $\text{mg.L}^{-1}$ ).

$m$  : Masse initiale de la matrice minéral en (g).

$V_L$  : Volume de la solution (ml).

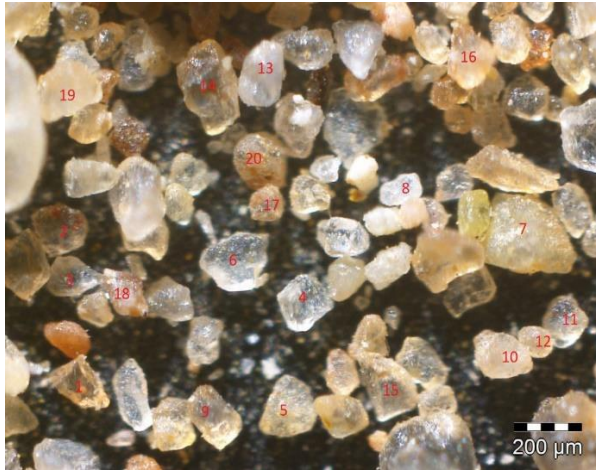
## II.3. Caractérisation du proppant selon la norme ISO 13503-2.

Les propriétés physiques prisent en considération dans cette étude sont : la rondeur et la sphéricité des grains de sable, la solubilité dans les acides, la turbidité, et la résistance à l'écrasement. Ces propriétés sont analysées pour les cinq (05) échantillons sélectionnés en suivant la procédure décrite par la norme ISO 13503-2, (2006) qui a été élaborée par le comité technique ISO/TC 67, (Matériel, équipement et structures en mer pour les industries pétrolières, pétrochimique et du gaz naturel, sous-comité SC3, fluides de forage et de complétion, et ciments à puits). L'ISO 13503 est une compilation modifiée de l'API RP 56, API RP 58 et l'API RP 60. Les modes opératoires ont été élaborés afin d'améliorer la qualité des agents de soutènement livrés sur le site du puits. Ils sont utilisés pour évaluer les propriétés physiques citées plus haut utilisées dans les opérations.

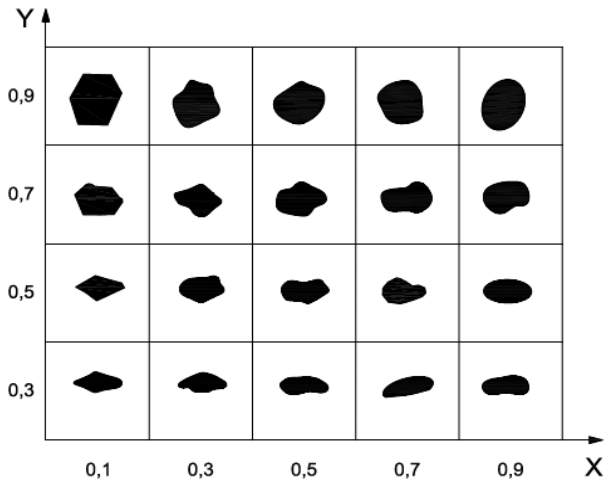
### II.3.1. Rondeur et sphéricité :

La rondeur est une mesure de l'acuité relative des angles ou des courbures. La sphéricité est une mesure de la proximité de forme entre une particule d'agent de soutènement et une sphère. Ces méthodes doivent être déterminées de manière séparée. La méthode la plus couramment utilisée pour la détermination de la rondeur

et de la sphéricité est celle de Krumbien /Sloss (Figure II.2). C'est une évaluation visuelle des agents de soutènement à l'aide d'un microscope optique, d'une caméra numérique et d'une lumière réfléchie.



**Figure II.1:** Exemple de Photographie de l'observation microscopique d'un échantillon de sable sous lumière réfléchie.



**Figure II.2 :** Graphique d'estimation visuelle de la rondeur et de la sphéricité (ISO 13503-2, 2006) Avec X : rondeur et Y : sphéricité.

L'échantillon de l'agent de soutènement est observé sur un arrière-plan approprié (arrière-plan sombre pour un agent de soutènement de couleur claire). L'échantillon est étalé en une couche d'une épaisseur d'une particule et examiné à faible agrandissement, (10 x à 40 x) au moyen d'un microscope.

L'estimation de ces deux grandeurs se fait par la sélection au hasard d'au moins 20 particules individuelles pour évaluation de la sphéricité et de la rondeur séparément. Des indices de sphéricité et de la rondeur sont attribués à chaque particule sélectionnée, des moyennes arithmétiques de ces indices de sphéricité et de rondeur sont calculées.

### II.3.2. Solubilité dans les acides :

La détermination de la solubilité dans les acides est utilisée afin d'établir l'aptitude d'un agent de soutènement à être utilisé dans des applications où il peut entrer en contact avec des acides.

La méthode préférentielle pour tester la solubilité dans les acides est d'utiliser une solution d'acide (HCl /HF) 12/3 (c'est-à-dire 12% en masse de HCl et 3% de HF).

La solubilité d'un agent de soutènement dans une solution acide (HCl et HF) est une indication de la quantité de matières solubles (c'est-à-dire les carbonates, les

feldspaths, les oxydes de fer, les argiles, etc....) présentes dans l'agent de soutènement.

Le calcul de la solubilité « S » de l'agent de soutènement dans les acides est exprimé en pourcentage, à l'aide de l'équation ci-dessous :

$$S = ((m_{is} - m_{fs}) / m_{is}) * 100$$

Où

$m_{is}$  : la masse initiale de l'agent de soutènement, exprimée en grammes;

$m_{fs}$  : la masse finale de l'agent de soutènement, exprimée en grammes.

### **II.3.3. Turbidité :**

Notre objectif est de déterminer la quantité de particules ou d'autres matières fines en suspension. L'essai de turbidité mesure la propriété optique d'une suspension qui résulte de la diffusion et de l'absorption de la lumière par les matières particulaires suspendues dans le fluide mouillant. Plus l'indice de turbidité est élevé et plus le nombre de particules en suspension est élevé.

Le turbidimètre est d'abord calibré en utilisant "GELEX secondary turbidity standart kit", il contient des bouteilles en verre étroitement fermées avec des différentes gammes de turbidité (0-2,0-20,200-400,200-4000) NTU.

Une solution de 20 ml d'un échantillon sec d'agent de soutènement (sable) et 100 ml d'eau déminéralisée est mise sous agitation maximale pendant 30 secondes. Après un repos de 05 minutes, une quantité de cette solution est prélevée à l'aide d'une seringue afin d'être mesurée dans le turbidimètre préalablement étalonné.

### **II.3.4. Résistance à l'écrasement :**

Les essais de résistance à l'écrasement sont réalisés sur des échantillons de sable afin de déterminer la quantité d'agent de soutènement écrasée sous une contrainte appliquée.

Cet essai est utile pour la détermination de la résistance à l'écrasement de l'agent de soutènement. Les essais doivent s'effectuer sur des échantillons de la même gamme granulométrique. Il convient que l'évaluation des résultats d'essai fournisse des indications sur le niveau de contrainte auquel l'écrasement de l'agent de soutènement est excessif et sur la contrainte maximale recommandée pour le matériau de soutènement. L'échantillon d'agent de soutènement est pesé dans la cellule d'essai, en bougeant constamment la source du flux de matériau, de sorte



que la surface dans la cellule soit plane. Une fois la cellule chargée, il convient d'éviter toute agitation (tapotement, secousse, etc.), car il a été démontré que la méthode de chargement de la cellule d'écrasement avait une importance primordiale sur la variance observée des résultats.

Les équipements et les matériaux suivants sont nécessaires à la réalisation de l'essai de résistance à l'écrasement de l'agent de soutènement.

- **Presse hydraulique** : capable d'appliquer la charge requise pour atteindre les niveaux de contrainte allant jusqu'à 103 MPa (15 000 psi).
- **Cellule d'écrasement** : employée pour maintenir l'agent de soutènement en place pour l'essai de résistance à l'écrasement.

À l'aide de l'équation ci-dessous, nous avons calculé la quantité de matériau broyé en pourcentage  $m'_t$ , de la masse de l'échantillon d'agent de soutènement placé dans la cellule. Cette valeur représente la quantité de l'agent de soutènement n'ayant pas résisté à l'écrasement. Selon la norme ISO 13503-2:2006, cette valeur ne doit pas dépasser 10%.

$$m'_t = (m_t / m_s) * 100.$$

$m_t$  est la masse du tamisât généré au cours de l'essai, exprimée en grammes ;

$m_s$  est la masse d'agent de soutènement utilisée comme partie aliquote de l'échantillon, exprimée en grammes.

**Tableau II.1 : Lignes directrices concernant le niveau des contraintes d'écrasement**

Agent de soutènement	Niveau de contrainte d'écrasement en MPa		L'effort appliqué en KN ( <i>kilo Newton</i> )	
	Minimal	Maximal	Minimal	Maximal
Agent de soutènement synthétique de fracturation	34.5	103.4	70.47	211.22
Agent de soutènement à base de sable naturel	13.8	34.5	28.19	70.47

#### **II.4. Etude de la biodégradabilité des additifs utilisés dans le fluide de fracturation :**

Ce test est effectué selon la norme ISO 9408 :1999. Il consiste en la détermination de la DBO<sub>28</sub> (demande biochimique en oxygène) et de la DCO (demande chimique en oxygène) d'une solution de concentration connue du PMMA. La demande biochimique en oxygène DBO est mesurée dans le but de déterminer le taux de dégradation des charges organiques polluantes sous l'action des microorganismes en milieu aérobie par la méthode respirométrique.

L'inoculum utilisé consiste en une boue activée prélevée au niveau du bassin d'aération de la station d'épuration biologique des eaux usées domestiques de Boumerdes.

Le mélange réactionnel consiste en un volume à 100 mg/l du PMMA ou du composé de référence auquel on ajoute l'inoculum.

#### **II.5. Etude des propriétés rhéologiques :**

Des échantillons fraîchement préparés ont été aussitôt versés dans le cylindre du rhéomètre de type Anton PAAR (MCR 302) équipé d'une cellule de géométrie double couette. Cette géométrie à cylindres coaxiaux est adaptée aux échantillons fluides. Le cylindre intérieur offre une très grande surface de contact avec les deux parois des cylindres intérieurs pour augmenter le couple résistant et donc la sensibilité.

Cette étude des propriétés rhéologiques du fluide a été réalisée au laboratoire IPREM de l'Université de Pau et des Pays de l'Adour à l'aide du Rhéomètre Anton PAAR (MCR 302) équipé d'une cellule de Couette.

Des mesures de la contrainte de cisaillement (shear stress) ont été réalisées pour un gradient de cisaillement croissant compris entre 100 s<sup>-1</sup> et 3600 s<sup>-1</sup>.

Des échantillons fraîchement préparés ont été aussitôt versés dans le cylindre du rhéomètre.

##### **II.5.1. Effet de la concentration du gélifiant (xanthane) :**

L'étude sur l'effet de la concentration a été divisée en deux parties principales. Tout d'abord, une série d'échantillons a été fraîchement préparée à partir d'eau pure et d'agent gélifiant avec des concentrations comprises entre 0.01% et 0.07%. Nous avons procédé à des mesures de variation de la contrainte de cisaillement et de la viscosité pour un taux de cisaillement croissant entre 100 s<sup>-1</sup> à 3600 s<sup>-1</sup>.

## II.5.2. Etude sur le vieillissement du mélange Eau –gélifiant :

Dans cette partie, une étude de l'évolution de la viscosité du polymère en fonction du temps a été effectuée, un minimum de 24 h de repos est requis sans agitation afin que les échantillons retrouvent leur état d'équilibre [47]. Les concentrations choisies pour ces mélanges sont proches des formulations conventionnelles utilisées dans les fluides de fracturation tout en appliquant une rampe de cisaillement dans la gamme de vitesse de cisaillement de  $100 \text{ s}^{-1}$  à  $3600 \text{ s}^{-1}$ .

Dans cette section, deux expériences de mesure de rhéologie ont été réalisées avec un intervalle de temps de 24 heures sur des mélanges eau-agent gélifiant avec des concentrations de 0.4% et 0.6%. Les résultats obtenus ont été comparés à ceux des mélanges fraîchement préparés.

## II.5.3. Variation de la contrainte de cisaillement (viscosité) en fonction du temps :

### A. Etude de modélisation :

Afin de sélectionner le meilleur modèle capable de simuler le comportement réel du mélange eau-agent gélifiant, quatre (04) modèles rhéologiques les plus connus ont été utilisés, à savoir Power Law (1), Herschel Bulkley (2), Bingham (3) et Casson (4) pour déterminer lequel de ces quatre modèles correspond le mieux aux données expérimentales.

## II.6. Protocole expérimental de synthèse de l'acide polyméthacrylique de méthyle :

### II.6.1. Produits chimiques :

Les caractéristiques des produits utilisés pour la synthèse du polyméthacrylique sont réunies dans le Tableau II.2.

**Tableau II.2:** les caractéristiques des produits utilisés dans le laboratoire

Réactifs	Masse molaire (g/mol)	Pureté (%)	Qualité	Fabricant
Méthacrylate de méthyle (MMA)	100,12.	99%	Matière première monomère	ACROS ORGANICS
Oxyde d'aluminium	101,96	99%	Adsorbant	RIEDEL-DE HAEN AG SEELZE-

(Aluminiumoxid S)			de filtration	HANNOVER
Toluène	92.14	99,5 %	Solvant	Biochem Chemopharma
Peroxyde de benzoyle : amorceur	242,23	99,9%	Initiateur	ACROS ORGANICS

A l'aide d'une pipette, le monomère d'acide Méthacrylate de méthyle (MMA) est versé progressivement du haut de la colonne en verre muni d'un matériau adsorbant ou filtre à base d'une poudre d'alumine ( $Al_2O_3$ ) pour être purifié afin d'éliminer d'éventuelle présence des inhibiteurs et impuretés.

Une polymérisation radicalaire du monomère méthacrylate de méthyle (MMA) est exécutée pour convertir le monomère en un acide polyméthacrylique de méthyle en utilisant l'initiateur peroxyde de benzoyle (BPO) à différents rapports molaires de  $[MMA]_0:[BPO]_0$ . D'autres paramètres ont été variés tels que le solvant, la température et le temps de réaction et ce dans l'objectif de synthétiser un polymère dépourvu de bulles. Les conditions de réaction des polymères préparés sont :

- a-** La variation du rapports molaires de  $[MMA]_0:[BPO]_0$  est de 500:1, 1000:1 et 1500 :1.
- b-** La variation de la température est de 80 et 90 °C, ces températures sont choisies sur la base de la vitesse de décomposition de l'initiateur (peroxyde benzoyle) afin de générer des radicaux.
- c-** La variation du temps de réaction est de 06, 12 et 24 heures.
- d-** La variation du solvant est de 0, 20 et 40 % (wt.% pourcentage massique) sur la base en poids du monomère.

Les polymères obtenus sont caractérisés par par FT-IR (spectroscopie Infrarouge à à transformée de Fourier) et RMN (Résonance magnétique nucléaire) du proton.

### **II.6.2. Caractérisation des polymères par spectroscopie infrarouge :**

Pour déterminer le type de fonctions présentes dans les l'acide polyacrylique de méthyle synthétisé, la méthode la plus couramment utilisée est la spectroscopie infrarouge FT-IR, des pastilles de KBr contenant le polymère sont préparées puis passées au spectrophotomètre à infrarouge de type Perkin Elmer fonctionnant en mode transmission. La bande spectrale de mesure s'étend de 400 à 4000  $cm^{-1}$ . La

spectroscopie IR consiste à sonder la matière au moyen d'un rayonnement IR et à analyser en retour l'absorption du rayonnement émis par les molécules qui se mettent à vibrer, la fréquence de vibration dépend des masses et de la force de liaison des molécules. Il est nécessaire d'effectuer un background avant chaque mesure afin d'éliminer les bandes d'absorbances non liées à l'échantillon proprement dit (air, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> etc....). Ces bandes d'absorbances sont éliminées du spectre de mesure par le logiciel qui effectue une simple soustraction.

### **II.6.3. Caractérisation des polymères synthétisés par RMN :**

Ces analyses sont réalisées avec un appareil de type Bruker Ascend™ 400 fonctionnant à 400 MHz. Des spectres RMN du proton sont réalisés sur des échantillons de PMMA dans le diméthylsulfoxyde deutéré. Les valeurs des déplacements chimiques ( $\delta$ ) caractéristiques des protons des groupements du PMMA sont en ppm par rapport au tétraméthylsilane (TMS) utilisé comme référence interne. Le TMS est en effet un composé inerte dont les 12 atomes d'hydrogène sont équivalents et produisent un signal à 0 ppm.



**Figure II.3 :** Equipement RMN type Bruker Ascend™ 400.

### **II.7. Caractérisation mécanique :**

Dans cette partie, des essais expérimentaux sont effectués sur les éprouvettes en PMMA, des mesures des propriétés mécaniques du PMMA optimal synthétisé ont été réalisées à température ambiante.

### II.7.1. Essai de traction :

L'essai de traction statique uniaxiale est effectué sur une machine d'essai universelle ZWICK en appliquant des essais de traction avec une vitesse de sollicitation de 2 mm/min sur des éprouvettes. La mesure de variation de la contrainte-déformation est réalisée pour mesurer les propriétés du PMMA synthétisé telles que le module élastique (module de young), la résistance à la traction (Tensile strength) et l'allongement au point de rupture. La figure II.4 (b) présente les dimensions de l'éprouvette d'étude.

Les figures II.4 (a) et (b) montrent respectivement des images d'échantillons de PMMA et la taille des échantillons utilisés pour les essais de traction et de flexion. Toutes ces expériences ont été réalisées au niveau du Centre de Recherche en Technologies Industrielles (CRTI Chéraga, Alger).



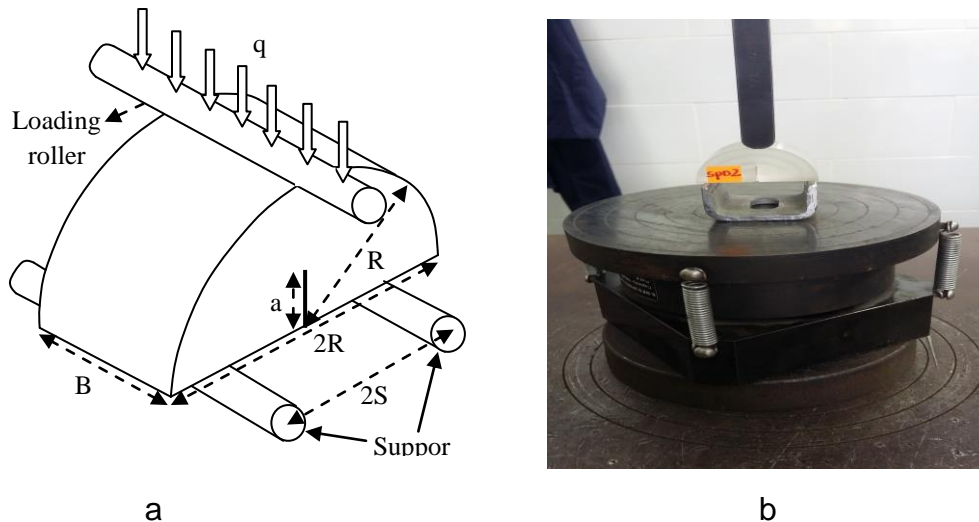
**Figure II.4 :** Échantillons de PMMA synthétisés (a), schéma de la dimension de l'échantillon de tension cylindrique (b) et de flexion à trois points (c).

### II.7.2. Essai de flexion à trois points :

Des mesures des propriétés mécaniques du PMMA sont réalisées, des essais de flexion à trois points sont effectués pour estimer la résistance du PMMA synthétisé en termes de facteur d'intensité de contrainte critique ( $K_{IC}$ ) selon la norme ASTM E399 [48]. L'équipement utilisé est de type INSTRON

La figure II.5 (a) montre le schéma des essais de flexion en trois points qui ont été effectués pour estimer la résistance du PMMA synthétisé en termes de facteur

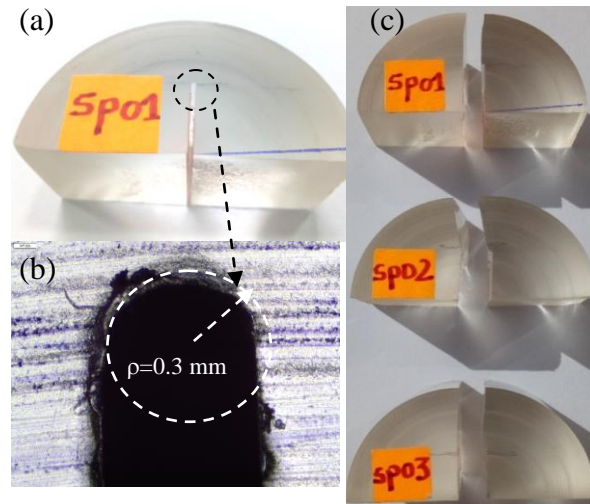
d'intensité de contrainte critique ( $K_{IC}$ ), selon la norme ASTM E399 [48]. Les spécimens ont été chargés dans un appareil de contrôle de déplacement avec une vitesse de chargement de 0,25 mm/min.



**Figure II.5 :** (a) Schéma et dimension de l'échantillon de PMMA synthétisés pour la réalisation de l'essai de flexion à trois points (b) photo de l'équipement utilisé. Référence

L'échantillon est posé sur deux appuis simples et soumis à une charge concentrée, appliquée au milieu avec un contact simple. L'épaisseur et le rayon de l'échantillon sont respectivement  $B=25$  mm et  $R=50$  mm et la distance entre les deux supports inférieurs est  $S=20$  mm. La longueur initiale de la fissure est  $a=12,5$  mm ( $a/R=0,5$ ). La vitesse de chargement est de 0,25 mm/min. La figure II.6 (a et c) présente la géométrie de l'échantillon avant et après l'essai de flexion à trois points. D'après cette figure II.6 (b), le rayon de la fissure est de  $=0,3$  mm.





**Figure II.6** Dimension de l'échantillon en trois points (a) échantillon de PMMA synthétisé et (b) dimension de la pointe de la fissure.

### II.8. Expériences de fracturation hydraulique :

Les essais de fracturation hydraulique expérimentale en laboratoire sont réalisés sur des échantillons de PMMA ayant un diamètre de 50 mm et une longueur de 100 mm, ces dimensions ont été choisies sur la base des études expérimentales de simulation de fracturation hydraulique à l'échelle laboratoire rapportées par Ruiting Wu et al [29]. Ces essais nous permettent d'étudier l'effet des paramètres suivants : la taille initiale de la fissure (initial crack size), le débit d'injection et la viscosité du fluide sur la propagation de la fracture.

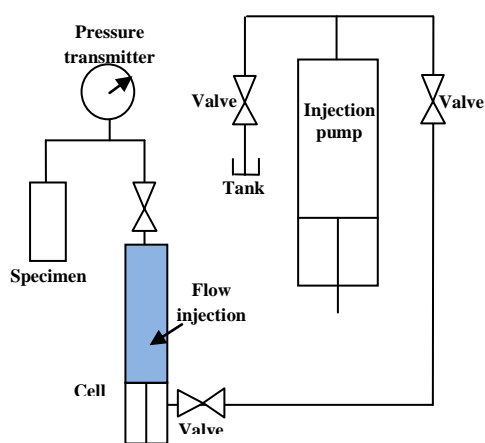
La taille du trou foré au centre de l'échantillon de PMMA est de 8 mm de diamètre et de 45 mm de profondeur. Il est à noter que dans les conditions réelles, la roche est soumise à trois contraintes indépendantes (contrainte verticale, contrainte horizontale maximale et minimale). La simulation de ces trois contraintes nécessite un véritable équipement triaxial où un échantillon de forme cubique est soumis à ces trois contraintes indépendantes à l'aide de vérins séparés. Il s'agit d'une installation compliquée qui nécessite beaucoup de moyens. Pour rappel, l'objectif de cette étude était de confirmer la faisabilité de l'utilisation, à l'échelle laboratoire, du PMMA comme matériaux transparent pour la réalisation des essais de simulation de propagation de fractures hydrauliques ainsi l'observation visuelle et en temps réel de la propagation de ces fractures à l'intérieur de l'échantillon durant l'expérience. Pour cet objectif, l'utilisation d'un échantillon cylindrique s'est avérée adéquate.



Pour la préparation du fluide de fracturation à utiliser, nous avons jugé utile d'utiliser seulement le xanthane pour l'augmentation de la viscosité vu que les paramètres température n'ont pas été pris en considération dans cette partie d'étude. La pression d'injection du fluide a été contrôlée à l'aide d'un transmetteur de pression avec une précision de 0,1 bar (figure II.7(b)).

Pour l'injection du fluide préparé à l'intérieur de l'échantillon, nous avons utilisé une pompe seringue à haute pression (Isco 260 HP) reliée à une cellule de stockage du fluide, par des tuyaux en acier inoxydable.

La figure II.7 (a) illustre schématiquement le montage réalisé au laboratoire. Le fluide injecté a été préparé à base de xanthane (gélifiant) afin d'augmenter sa viscosité et a été coloré au bleu de méthylène pour visualiser la propagation des fissures durant l'essai.



(a)

(b)

**Figure II.7 :** (a) Schéma du montage de l'essai de fracturation hydraulique et (b) transmetteur de pression.

### II.8.1 Influence des différents paramètres sur la propagation de la fracture :

Pour rappel ; l'objectif de cette partie est d'étudier l'effet de la taille initiale de la fissure (initial crack size), le débit d'injection et la viscosité du fluide sur la propagation de la fracture.

### II.8.2. Influence du débit d'injection du fluide sur la propagation de la fracture :

Des expériences de fracturation hydraulique sont réalisées sur des échantillons de PMMA sous trois différents débits d'injection constants de  $Q = 0,05, 0,5$  et  $5$  ml/min

PMMA (S01 S02 et S03) ayant approximativement la même taille de fissure initiale ( $d_1 \approx d_2 \approx d_3 \approx 6,50$  mm et  $c_1 \approx c_2 \approx c_3 \approx 10$  mm) et une viscosité de 6 mPa.s.

### II.8.3. Influence de la viscosité du fluide d'injection sur la propagation de la fracture :

Cette étape consiste en la variation de la viscosité du fluide d'injection ( $\nu_1 = 6,21$  mPa.s,  $\nu_2 = 59,79$  mPa.s et  $\nu_3 = 140,33$  mPa.s.) et son influence sur la propagation de la fracture. Les autres paramètres restent constants (débit d'injection constant de  $Q = 0,05$  ml/min, profondeur de la fissure initiale  $d_1 = 6,51$  mm).

### II.8.4. Influence de la profondeur de la fissure initiale sur la propagation de la fracture :

Dans cette partie, la profondeur de la fissure initiale varie ( $d_1 = 6,51$ ,  $d_2 = 9,53$  et  $d_3 = 12,95$  mm) tout en maintenant les autres paramètres constants à savoir une Viscosité de 6 mPa.s et un débit d'injection constant de  $Q = 0,05$  ml/min

### II.9. Modélisation analytique :

Dans cette partie, à des fins de comparaison, la pression de rupture correspondant aux essais expérimentaux réalisés au laboratoire, sera estimée d'une part à l'aide de formule analytique et d'autre part par une simulation numérique 3D par la méthode des éléments finis (FEM) en prenant en considération juste la taille de la fissure initiale.

Tout d'abord, l'étude analytique a été réalisée sur la base de l'équation suivante (1) rapportée par Ruiting Wu et al [29]. Le facteur d'intensité de contrainte  $K_I$  pour le cas de la fracturation hydraulique d'un échantillon cylindrique peut être écrit comme suit :

$$K_I = \frac{2}{\pi} P \sqrt{\pi d} \left[ \frac{1 - 0.5 \left( \frac{d}{R} \right) + 0.148 \left( \frac{d}{R} \right)^3}{\sqrt{1 - \frac{d}{R}}} \right] \quad (1)$$

$$K_I = K_{IC} \quad (2)$$

Où  $K_I$ ,  $P$ ,  $d$ ,  $R$ ,  $K_{IC}$  sont respectivement : la contrainte d'intensité, la pression du fluide, la profondeur de la fissure (depth), le rayon de l'échantillon et la ténacité critique de la fracture.

La propagation des fissures dépend de l'état indiqué dans l'équation (2), selon le critère de croissance de la fracture présenté par Rice, et al. [49].

À partir des équations (1) et (2), la pression critique de rupture peut être exprimée comme suit :

$$P_c(d) = \frac{\sqrt{\pi} K_{IC}}{2\sqrt{R} \left[ \frac{1 - 0.5\left(\frac{d}{R}\right) + 0.148\left(\frac{d}{R}\right)^3}{\sqrt{1 - \frac{d}{R}}} \right]} \sqrt{\frac{R}{d}} \quad (3)$$

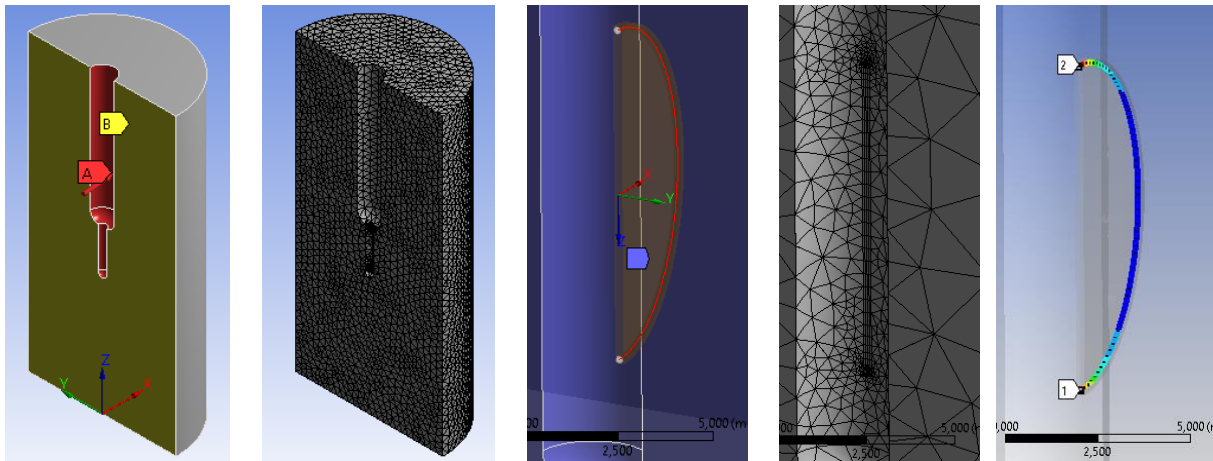
La solution analytique ci-dessus est uniquement basée sur la profondeur (d) de la fissure (depth) mais ne prend pas en considération l'effet de la longueur de la fissure semi-elliptique (c).

La fracture s'amorce quand le facteur d'intensité de contrainte  $K_I$  dépasse une certaine valeur critique  $K_{IC}$  appelée ténacité (valeur expérimentale), qui dépend du matériau et de l'environnement.

### II.10. Simulation numérique :

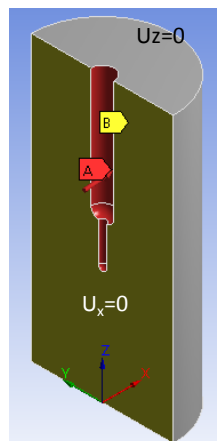
La modélisation par éléments finis est réalisée en utilisant le logiciel ANSYS [50], ce logiciel est largement utilisé pour la simulation des phénomènes physiques, il permet d'effectuer des simulations numériques grâce à la méthode des éléments finis GIRARD et al [51], cette simulation est l'une des méthodes les plus simples pour simuler les problèmes de propagation des fissures. Ce logiciel couvre toutes les étapes nécessaires à une simulation : le traitement géométrique, le maillage, définir les conditions aux limites, la résolution et enfin le traitement de résultats.

Le processus de construction de la géométrie du modèle de simulation du puits et de la fissure initiale de géométrie semi-elliptique en introduisant les propriétés mécaniques et physiques du matériau PMMA tel que : la masse volumique, le module de Young (élasticité) et le coefficient de Poisson, est représenté dans la figure ci-dessous. Dans notre cas les propriétés mécaniques sont égales à 1190 kg/m<sup>3</sup>, 2800 MPa, 0.35, et un maillage triahedral. Tel qu'il est illustré à la figure IV.17, de gauche à droite.



**Figure II.8 :** Modélisation par la méthode des éléments finis (de gauche à droite)

Pour permettre à l'outil de résoudre le problème, nous avons appliqué les conditions aux limites de symétrie qui suppose que les déplacements perpendiculaires à la section transversale sont nuls ( $U_x=0$ ). Aussi, on suppose que la surface supérieure est fixe par rapport au déplacement sur l'axe des Z donc  $U_z=0$ , comme illustré dans la figure ci-dessous.



**Figure II.9 :** Les conditions aux limites de symétrie et de pression appliquée.

Enfin, pour chaque échantillon dont la fissure est représentée par un demi-grand axe (c) et un demi-petit axe (d), nous avons varié à chaque fois la pression interne entre 14 et 18 MPa jusqu'à atteindre une pression critique dont le facteur d'intensité de contrainte  $K_I$  sera égale au facteur d'intensité de contrainte critique  $K_{IC}$  (dans notre cas d'étude  $K_{IC}$  égale à  $1,18 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{0.5}$ ).

***Chapitre III : Etude des interactions additifs–matrices minérales***

### III.1. Introduction

Une roche-mère est une combinaison de l'accumulation de matières minérales (en général des argiles) et de matières organiques qui se déposent au fond des lacs et des océans [52]. Sous l'effet de l'augmentation de la température et de la pression au cours de l'enfouissement dans les bassins, elle se transforme en partie en produits pétroliers (huile et gaz).

Ces types de gaz très coûteux à extraire et trop difficiles à produire, ont pu être accessibles et économiquement rentable grâce à des innovations technologiques telles que la "fracturation hydraulique". La combinaison de cette dernière avec le forage horizontal a révolutionné la production d'hydrocarbures dans le monde.

Il est estimé qu'au cours des prochaines années, 80 % des puits de gaz naturel forés utiliseront la technique de fracturation [53]. Pour optimiser le drainage du gisement, la liaison des puits avec le réservoir doit être la meilleure possible. La fracturation des puits horizontaux permet de suivre, sur de longues distances, les couches productrices.

La fracturation hydraulique est une technique utilisée pour fissurer localement les roches par injection de grande quantité de fluide de fracturation, dont la composition est la suivante : 90% eau, 9% proppant et environ 1% additifs, et ce dans le but d'augmenter la perméabilité et permettre une production économique.

La fracturation va permettre d'introduire ces proppants (généralement du sable ou des billes de céramique) dans les fractures, maintenant ainsi les fissures ouvertes, ce qui permet au flux de gaz de s'échapper de la roche [54].

Cependant, cette technologie engendre des nuisances pour l'environnement et notamment sur la pollution des eaux [55].

La connaissance de la composition de ce fluide est très importante non seulement pour fracturer la roche ou élargir les fractures déjà existantes mais aussi pour assurer un transport optimal et un placement efficace de l'agent de soutènement (proppant) dans les roches fracturées afin de maintenir ces fractures ouvertes pour l'extraction du pétrole et du gaz.

Le fluide de fracturation doit donc posséder des propriétés spécifiques garantant d'une bonne performance du procédé. Selon Luo et al [56] ce fluide doit posséder les caractéristiques suivantes :

- Être capable de transporter l'agent de soutènement dans la fracture ;

- Être compatible avec la roche et le fluide de formation ;
- Minimiser les pertes de pression par frottement lors de l'injection ;
- Être élaboré à l'aide d'additifs chimiques approuvés par la réglementation environnementale locale ;
- Avoir une viscosité suffisamment faible pour faciliter son injection.
- Être facilement éliminé lors du dégorgeage « flowback » sans pour autant emporter avec lui l'agent de soutènement déposé (phénomène du proppant diagenesis qui représente l'une des raisons possibles de l'effondrement de la production) dans le but de préserver la perméabilité créée [57];
- Résister aux forces de cisaillement (résistance à l'écrasement) ;
- Avoir une bonne stabilité dans les conditions réservoirs (haute pression et haute température) [58].

La Figure III.1 illustre le principe et les étapes de la fracturation hydraulique.

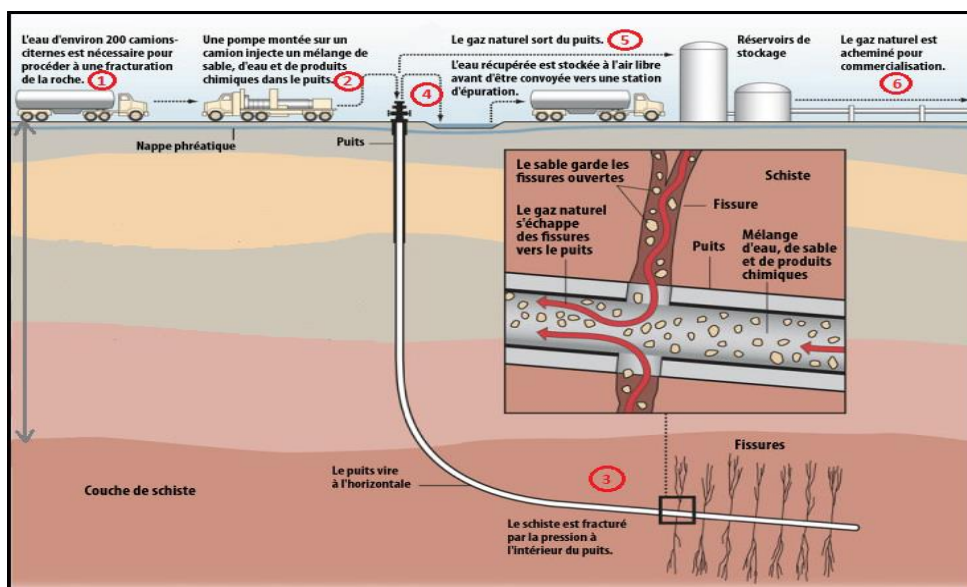


Figure III.1 : Procédé de fracturation hydraulique

A ce jour, plusieurs types de fluides sont utilisés. On peut citer par exemple les fluides à base : d'eau, de mousse, d'huile, d'acide, d'alcool, d'émulsion et les fluides à l'état supercritique cryogéniques ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2$ , He, .....) [59].

Ces dernières décennies, les gaz de schistes ont fait l'objet de nombreuses critiques liées aux moyens non conventionnels employés pour leurs extractions, notamment celles liées à l'eau et en particulier en raison de craintes de contamination des

nappes phréatiques. En effet, le fluide de retour d'une opération de fracturation est composé à la fois de métaux lourds naturels et des produits chimiques dangereux pour la santé humaine, Il est donc essentiel d'éviter tout contact de ces polluants avec les nappes phréatiques se trouvant dans les couches géologiques adjacentes.

Lors de l'exploitation des gaz non conventionnels, il est absolument nécessaire de s'assurer qu'aucun contact ne soit possible entre les fluides de forage et les nappes phréatiques traversées par ce forage.

Pour atteindre une parfaite isolation de ces différents niveaux aquifères il faut que le forage soit étanchéisé par un tubage et une cimentation de l'intervalle formé par ce tubage et les parois du puits.

### **III.2. Mécanismes d'adsorption des additifs de la fracturation :**

Afin d'étudier les mécanismes d'adsorption des additifs utilisés dans les fluides de fracturation sur la roche mère, des expériences sur l'adsorption à pression atmosphérique ont été menées sur seulement deux produits utilisés lors de la préparation des fluides de fracturation.

Notre choix s'est porté sur les polymères et les tensioactifs. Pour cela, nous avons étudié dans un premier temps leur impact environnemental engendré dans la fracturation hydraulique en :

- Identifiant les différentes matrices qui composent la roche mère ;
- Caractérisant la formulation des fluides de fracturations ;
- Quantifiant les composés qui restent piégés dans la matrice rocheuse lors du forage et cela en étudiant les différentes interactions entre les produits chimiques et les différentes matrices modèles.

Dans un second temps, nous avons étudié les interactions entre ces mêmes additifs et le proppant.

### **III.3. Choix et caractérisation de la matrice minérale :**

Pour rappel, le but de cette analyse repose sur l'identification des différentes matrices qui composent la roche mère afin de réaliser les études d'interaction des polymères et des tensioactifs qui composent le fluide de fracturation avec chaque matrice modèle séparément et étudier le phénomène d'adsorption de ces produits chimiques sur la surface de ces matrices.



### III.3.1. Résultats de DRX et FX de la roche mère :

Le diffractogramme de la roche mère échantillonnée au niveau du bassin d'AHNET, région située au cœur du Sahara algérien à environ 1064 km d'Alger et ayant subi des opérations de fracturation hydraulique, montre que l'échantillon est argileux gréseux et est composé de quartz, de carbonates de type calcite et dolomite. En outre, on note, une présence du sulfure de fer de type pyrite.

Les argiles sont représentées par l'illite, la kaolinite, la chlorite et les interstratifiés « Illite-smectite » (I/S) caractérisés par une large bande, qui représente une argile qui se forme par empilement de deux ou plusieurs types de feuillets [60]. Dans notre cas, c'est une phase intermédiaire ou de transformation par gonflement entre l'illite et la smectite quand la structure de l'illite capte par absorption des ions d'eau.

Les résultats de DRX sont proches de ceux trouvés dans la littérature [61].

Il est à préciser que l'analyse des échantillons par fluorescence des rayons X est purement semi quantitative. Aussi, les concentrations du chlore et du soufre "sous forme de sulfure" portées sur les tableaux des résultats sont juste à titre indicatif elles ne sont pas comptabilisées (déjà incluses dans la perte au feu)

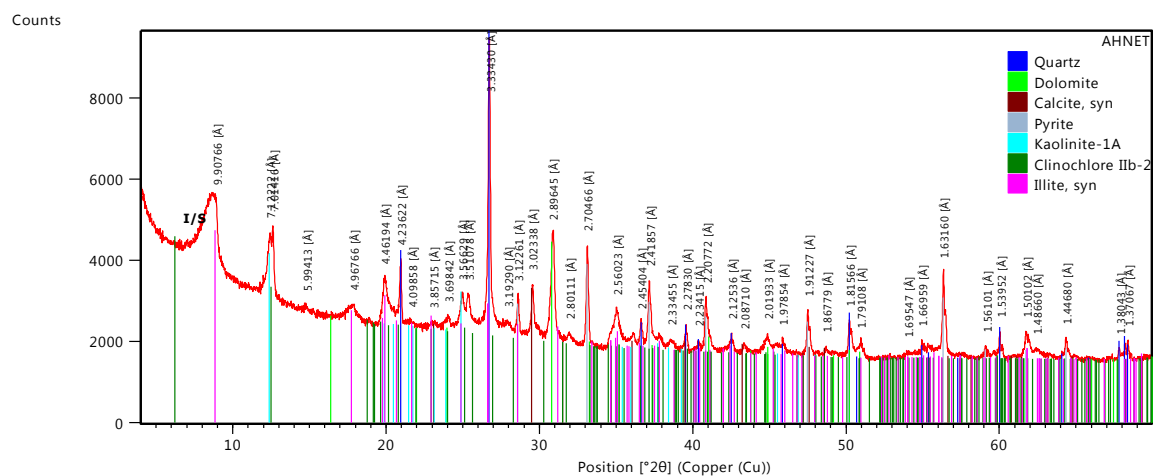


Figure III.2 : Spectre de diffraction des RX des phases de la roche mère

**Tableau III.1 :** Composition chimique élémentaire exprimée en pourcentage massique (%) de l'échantillon de roche mère.

% éléments chimiques													
Désignation	Na <sub>2</sub> O	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	CaO	TiO <sub>2</sub>	MnO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
Ahnet	0,73	1,33	24,63	33,77	0,14	9,32	2,60	6,04	0,81	0,03	8,90	0,13	0,01

% élément chimique (Suite)													
NiO	CuO	ZnO	SrO	ZrO <sub>2</sub>	MoO <sub>3</sub>	BaO	PbO	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Br	Cl	PAF	TOTAL	
0,03	0,02	0,03	0,03	0,02	0,02	0,13	<0,001	<0,001	<0,01	0,10	20,60	100,00	

PAF : perte au feu.

**Tableau III.2 :** Résultats d'analyses chimiques des éléments en traces (en ppm) de la roche mère

Elément	V	Cr	Ni	Cu	Zn	Rb	Sr	Zr	As	Mo	Ba	Co	Pb
AHNET	299	107	101	97	131	83	222	96	33	100	217	32	26

Le tableau II.3 représente un exemple de résultats d'analyse des métaux indésirables contenu dans un échantillon d'eau de retour (flow-back) issue des opérations de fracturation hydraulique d'un forage dans le bassin d'Ahnet..

**Tableau III.3 :** résultats des métaux lourds d'un échantillon d'eau de retour prélevé au niveau de la région d'Ahnet

Date de prélèvement	Plomb Pb (mg/l)	Zinc Zn (mg/l)	Cadmium Cd (mg/l)	Chrome Cr (mg/l)	Lithium Li (mg/l)	Cobalt Co (mg/l)	Béryllium Be (mg/l)	Cuivre Cu (mg/l)	Fer Fe (mg/l)	Manganèse Mn (mg/l)	Nickel Ni (mg/l)	Strontium Sr (mg/l)
10/05/2015	0,072	0,352	5,016	0,342	10,43	0,0258	0,093	<10 <sup>-3</sup>	38,12	6,056	<0,001	100,8

Les résultats indiquent que les éléments chimiques prépondérants dans la roche mère sont : le quartz, l'oxyde de fer (III), le calcaire et l'alumine. Cette dernière est un

indicateur de la présence d'argile et un constituant des roches mères [62]. D'autres éléments sont présents à faible pourcentage. La présence des métaux lourds a été également observée. En outre, le fait d'être imperméable, la roche mère a une capacité à retenir les minéraux lourds et les éléments radioactifs. Aux États-Unis, il a été observé sur un site que de l'uranium et du radon radioactifs ainsi que d'autres métaux lourds avaient été drainés dans le fluide de retour [8]. Des résultats confirment l'origine de la provenance des métaux lourds dans le fluide de retour (flowback).

Sur la base des résultats obtenus lors de la caractérisation de la roche mère par DRX, notre choix s'est porté sur trois minéraux modèles (calcite, Kaolinite et bentonite), dont la provenance est respectivement une carrière de M'Said (Tlemcen), un gisement de Tamazert de Mila et Hammam Boughrara (Maghnia) afin d'étudier leurs interactions avec chaque additif sélectionné séparément.

Le choix de chaque minéral modèle s'est fait pour les raisons suivantes :

- La calcite : elle substitue les carbonates décelés dans la roche mère (la calcite et la dolomite) ;
- Le kaolin : argile omniprésente et faiblement réactive ;
- La bentonite : argile réactive et gonflante en substitution des illite-smectite
- Le Quartz n'a pas été pris en considération comme matrice modèle dans cette étude car d'une part il n'est pas réactif comme les argiles et d'autre part il est présent sous forme d'agents de soutènement (proppant).
- La pyrite est présente faiblement, donc un effet d'adsorption négligeable (peu ou pas d'effets).

Ces minéraux modèles ont été caractérisés d'un point de vue physico-chimique par diffraction X et fluorescence X pour l'identification des minéraux en présence. Ci-après les résultats obtenus pour les trois échantillons.

#### **A. Caractérisation de la calcite :**

La calcite est le polymorphe le plus stable du carbonate de calcium ; il existe sous de nombreuses formes dans la nature. Elle cristallise dans le système trigonal [63].



Figure III.3 : Un échantillon de la calcite

Le résultat de l'analyse par DRX de l'échantillon montre la présence principale des deux minéraux suivants : Calcite ( $\text{CaCO}_3$ ) et le Quartz ( $\text{SiO}_2$ ).

- Les résultats de la FX complètent les résultats de la DRX car ils démontrent que l'élément chimique majeur est l'oxyde de calcium à 54.89 %. On note aussi la présence de quartz (0.43%) ; les autres éléments sont à l'état de traces.

Ces deux techniques confirment bien que l'échantillon prélevé est, en effet, de la calcite.

Tableau III.4 : Pourcentage des éléments chimiques pour la Calcite par la FX

% élément chimique													
Désignation	SiO2	Al2O3	Fe2O3	CaO	MgO	MnO	Na2O	K2O	P2O5	TiO2	SO3	PAF	TOT
ECH01	0,43	0,11	0,09	54,89	0,21	<0,01	<0,05	<0,05	0,05	<0,05	<0,05	44,03	99,38

PAF : perte au feu.

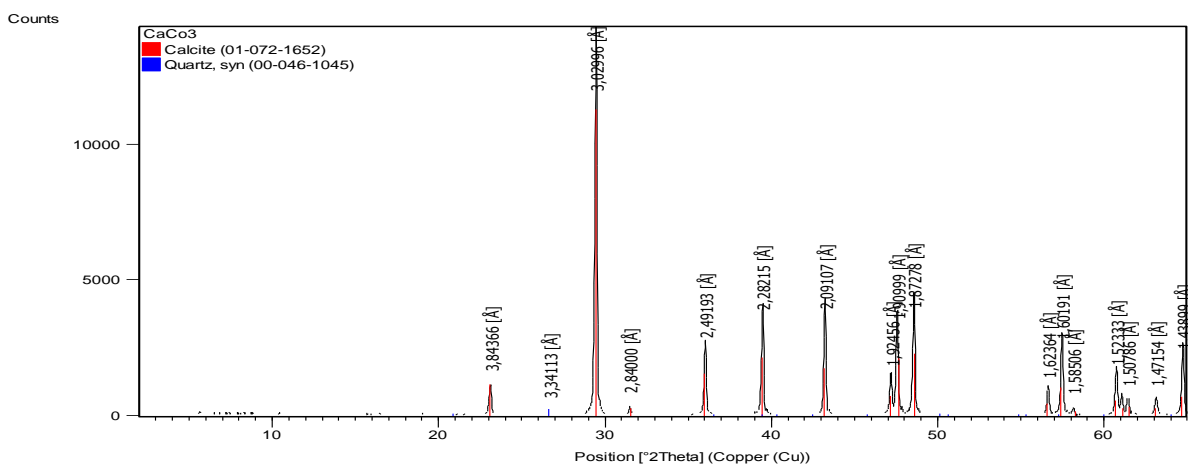


Figure III.4 : Spectre de diffraction RX de la calcite

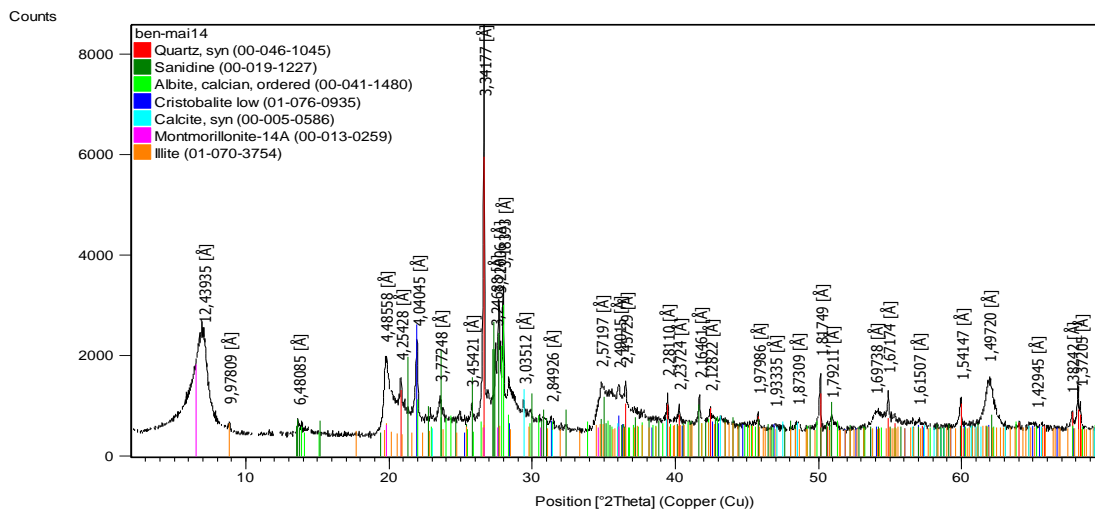
**B. Caractérisation de la bentonite :**

L'examen préliminaire du diffractogramme de l'échantillon prélevé montre qu'il renferme de la montmorillonite, du quartz, de la calcite, de l'illite, de la sanidine, de l'albite, du calcium et de la cristobalite.

D'après le tableau II.5 illustrant les résultats de la FX de l'échantillon montre que les éléments chimiques prépondérants sont : le quartz (52.67%) et l'oxyde d'alumine (17%). La présence de montmorillonite confirme que l'échantillon est une argile bentonitique.

**Tableau III.5 :** Pourcentage des éléments chimiques pour la bentonite par la FX.

% éléments chimiques											
Désignation	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	MnO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	TiO <sub>2</sub>	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
ECH01	52,67	17,02	2,17	1,07	3,01	0,054	4,23	1,62	0,049	0,129	0,011
% éléments chimiques (suite)											
SO <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub>	SrO	Rb <sub>2</sub> O	PbO	ZnO	CuO	NiO	BaO	PAF	Total	
0,04	0,0227	0,0130	0,0376	0,0048	0,007	0,0138	0,001	0,0379	17,44	99,65	



**Figure III.5 :** Spectre de diffraction des RX de la Bentonite.

### C. Caractérisation du kaolin :

Les analyses par diffraction des rayons X permettent d'identifier les principales phases cristallisées présentes dans les matériaux. La composition chimique de ce matériau est rapportée dans le Tableau III.6, où nous avons relevé une prédominance en  $Al_2O_3$  et  $SiO_2$  de l'ordre de 96,87 % [64]. Les oxydes restants sont partagés en deux catégories, ceux qui ont un pourcentage massique faible ( $Fe_2O_3$ ,  $K_2O$ ,  $MgO$ ) et ceux qui sont à l'état de trace ( $TiO_2$ ,  $MnO$ ,  $SO_3$ ). Ces résultats sont proches de ceux trouvés par T. Chouchane et al [65] et [66]

La figure III-6 présente le diffractogramme de la kaolinite. On observe principalement les pics caractéristiques de la kaolinite  $Al_2(Si_2O_5)(OH)_4$ . Ainsi, l'échantillon en question représente de la kaolinite pure.

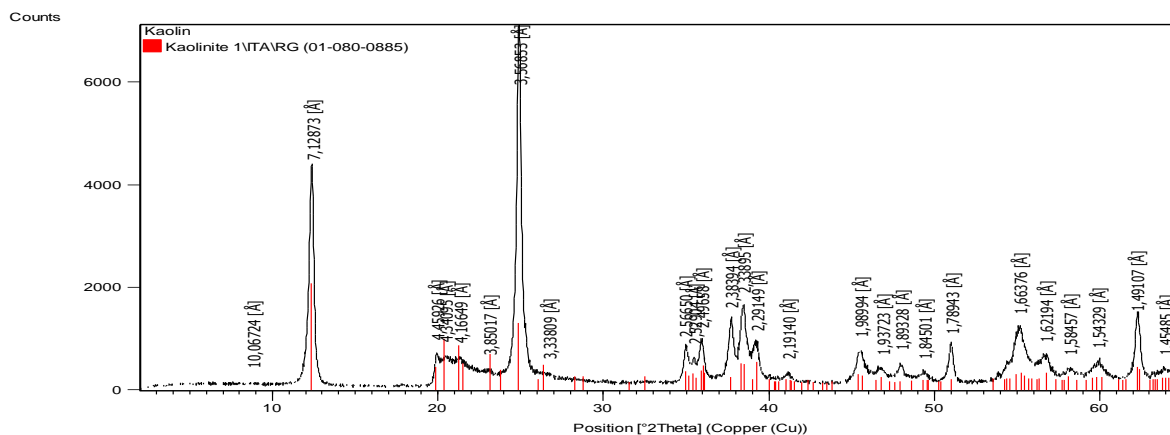


Figure III.6 : Spectre de diffraction des RX des phases du Kaolin

Tableau III.6 : Pourcentage des éléments chimiques pour le kaolin par la FX

% éléments chimiques													
Désignation	$SiO_2$	$Al_2O_3$	$Fe_2O_3$	CaO	MgO	MnO	$Na_2O$	$K_2O$	$P_2O_5$	$TiO_2$	$SO_3$	PAF	TOT
ECH 01	52,89	43,98	0,85	0,10	0,06	<0,01	0,09	0,20	0,15	1,60	<0,05	14,6	99,92

### III.4. Etudes interactions additifs chimiques-matrices modèles :

Après avoir choisi et caractérisé les principales matrices modèles qui composent la roche mère, nous avons voulu étudier en premier lieu les interactions entre les

additifs chimiques utilisés dans les fluides de fracturation et les matrices minérales modèles sélectionnées précédemment. Pour cela, nous avons suivi quatre étapes :

- Choix (identification) des additifs (polymère et tensioactif seulement) les plus utilisés du point de vue quantitatif dans les fluides de fracturation;
- La détermination de leurs longueurs d'adsorption maximales  $\lambda_{max}$  ;
- Etudes des interactions entre ces additifs et les matrices minérales modèles;
- Etude des interactions sp breaker –Proppant (sable naturel).

Des essais ont été effectués sur les deux principaux composés du fluide de fracturation à savoir le xanthane et le sp breaker tous deux des polymères.

#### **III.4.1. Identification des additifs les plus utilisés dans les fluides de fracturation :**

Le choix des additifs a été fait d'une façon sélective. Le principal critère est de viser les polymères et les tensioactifs souvent utilisés en grande quantité dans les fluides de fracturation, pour cela nous avons choisi :

##### **A. Le xanthane :**

Le xanthane est un polysaccharide microbien à haut poids moléculaire obtenu par fermentation aérobie de la bactérie *Xanthomonas campestris* [67], C'est une macromolécule dont la masse moléculaire est estimée entre  $1.5 \times 10^6$  et  $5 \times 10^6$  daltons [47]. Le xanthane est un polymère à caractère anionique, i.e. hydrophile, soluble dans l'eau dès  $10^\circ\text{C}$  [47].

Il est largement utilisé en tant qu'épaississant et viscosifiant vu ses propriétés rhéologiques (caractère rhéofluidifiant, thixotropie, seuil d'écoulement...), une insensibilité à la salinité et au milieu acide, ainsi qu'une bonne stabilité thermique [67]. Il présente, aussi, d'excellentes qualités telles qu'une bonne capacité de suspension de l'agent de soutènement à une concentration du polymère relativement faible et une résistance au cisaillement mécanique [68].

Il nécessite une agitation intense après son introduction dans un milieu aqueux afin d'éviter la formation de grumeaux [47]. Aussi, une addition lente de la poudre de xanthane dans le vortex d'une cuve d'eau en agitation est nécessaire. Elle est donc incorporée doucement, en pluie, en plusieurs fois dans un volume d'eau distillée. Ensuite, la vitesse d'agitation est réduite à mesure que la viscosité du mélange augmente afin d'éviter la formation de bulles d'air.

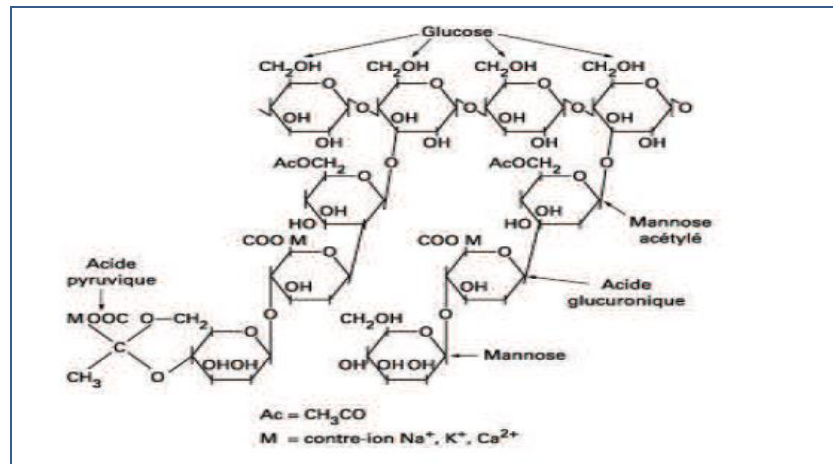


Figure III.7: Structure primaire de xanthane : Rigal [47].

Nous avons effectué un balayage dans le domaine UV-visible pour déterminer la longueur d'onde d'absorption maximale. Dans le cas du xanthane,  $\lambda_{\max}$  retenue = 294 nm.

### B. Le breaker

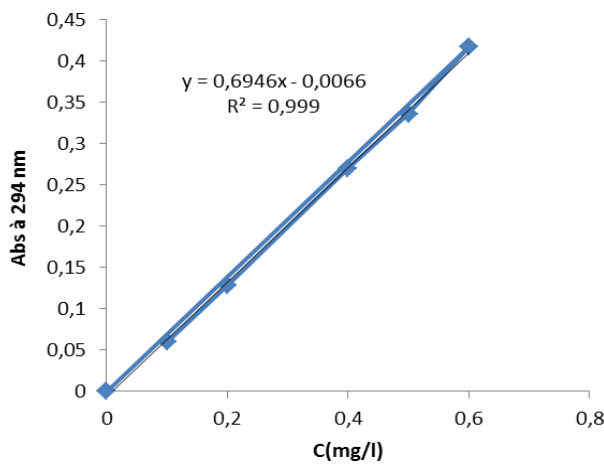
Le persulfate de sodium est un composé chimique. Il s'agit d'un oxydant fort. Il est utilisé dans le fluide de fracturation comme un breaker, il permet donc de réduire la viscosité des gels de polymères en les dégradant après la création de la fracture [69]. Il agit comme un agent de rupture chimique pour faciliter la dégradation du fluide polymère en décomposant les longues chaînes de polymère en molécules plus courtes, réduisant ainsi le poids moléculaire du polymère et par conséquent la viscosité du fluide [68].

Le balayage de ce produit à l'aide d'un spectrophotomètre UV-Visible nous a donné une longueur d'absorption maximale  $\lambda_{\max} = 310$  nm. La Courbe d'étalonnage est présentée ci-après.

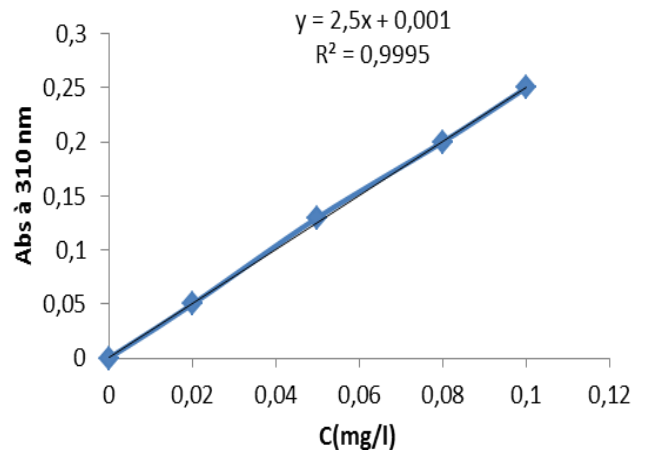
A ces longueurs d'ondes maximales ( $\lambda_{\max} = 294$ nm et  $\lambda_{\max} = 310$ nm) du xanthane et du breaker respectivement, nous avons établi les courbes d'étalonnages de ces deux produits, ces courbes d'étalonnages nous permettent de déterminer les concentrations résiduelles

Pour établir la courbe d'étalonnage, nous avons mesuré à la longueur d'onde maximale les absorbances des échantillons de la solution du xanthane et du breaker, préparées à partir de la solution mère de concentration 0.6 g/l dans le cas du xanthane et de 0.1 g/l dans le cas du breaker.





**Figure III.8** Courbe d'étalonnage du xanthane  
 $\lambda_{\max} = 294 \text{ nm}$



**Figure III.9** Courbe d'étalonnage du sp breaker  
 $\lambda_{\max} = 310 \text{ nm}$

### III.4.2. Etude interaction xanthane-bentonite :

L'étude des différentes interactions entre la bentonite et le xanthane, a nécessité 20 g de bentonite mises en suspension dans l'additif le dont la concentration initiale est de 0,6 g.L<sup>-1</sup>.

Ci-dessous le tableau récapitulatif des quantités adsorbées du xanthane sur la bentonite en fonction du temps.

**Tableau III.7** quantités adsorbées du xanthane sur la bentonite

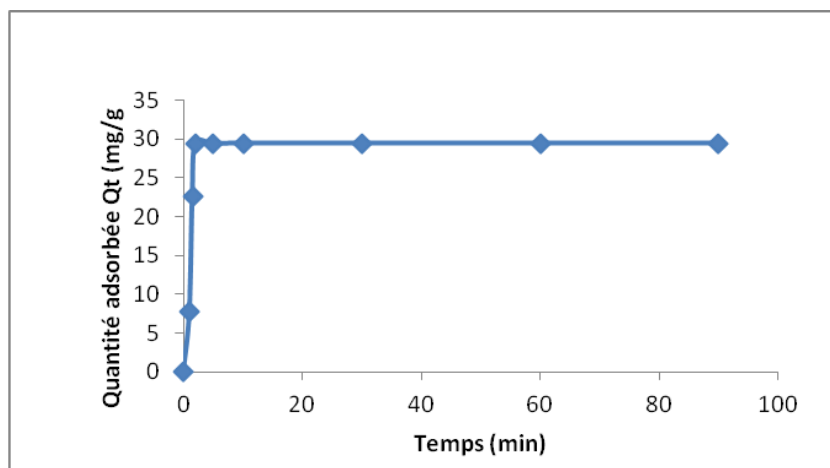
Temps (min)	A	C <sub>t</sub> (g/l)	Q <sub>t</sub> (mg/g)	R%
0,00	0,42	0,60	0,00	0,00
1,00	0,30	0,44	7,79	25,95
1,50	0,10	0,15	22,61	75,38
2,00	0,00	0,01	29,38	97,94
5,00	0,00	0,01	29,38	97,94
10,00	0,00	0,01	29,45	98,18
30,00	0,00	0,01	29,45	98,18
60,00	0,00	0,01	29,45	98,18
90,00	0,00	0,01	29,45	98,18

A : Absorbance

C<sub>t</sub> (g/l) : Concentration du xanthane à instant « t »

Q<sub>t</sub> (mg/g) : Quantité adsorbée de xanthane sur la bentonite à instant « t ». Calculée comme suit :  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/20) * 1000$

R%: le rendement  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/C_{\text{initiale}}) * 100$



**Figure III.10** : Evolution de l'adsorption du xanthane sur la bentonite

Le xanthane s'adsorbe sur la bentonite et atteint son maximum au bout de 2 minutes de contact en adsorbant une quantité de 29.38 mg/g d'adsorbat et qui correspond à un rendement d'environ 98%. Nous constatons, aussi, la présence d'un plateau horizontal confirmant une saturation, ce type d'isotherme est caractéristique du remplissage de micropores de l'adsorbant.

#### III.4.3. Interaction entre xanthane- calcite :

L'adsorption du xanthane sur la calcite a été étudiée à partir d'une solution aqueuse en introduisant 20 g de la calcite mis en suspension dans une solution dont la concentration initiale en xanthane est de 0,6 mg/L. Le tableau III.8 récapitule les quantités adsorbées du xanthane sur la calcite en fonction du temps.

**Tableau III.8** quantités adsorbées du xanthane sur la calcite

Temps (min)	A	$C_t$ (g/l)	$Q_t$ (mg/g)	R%
0,00	0,42	0,60	0,00	0,00
0,50	0,38	0,56	2,17	7,24
1,00	0,36	0,53	3,61	12,04
1,50	0,30	0,44	7,93	26,43
2,00	0,25	0,37	11,53	38,43
3,00	0,26	0,38	11,17	37,23
4,00	0,25	0,37	11,53	38,43
5,00	0,26	0,38	10,81	36,03
10,00	0,27	0,40	10,23	34,11
15,00	0,27	0,40	9,95	33,15
20,00	0,28	0,41	9,73	32,43
25,00	0,28	0,41	9,51	31,71
30,00	0,28	0,41	9,37	31,23

Temps (min)	A	$C_t$ (g/l)	$Q_t$ (mg/g)	R%
60,00	0,29	0,42	8,94	29,79
70,00	0,29	0,43	8,65	28,83
80,00	0,29	0,43	8,58	28,59
90,00	0,31	0,46	7,21	24,03

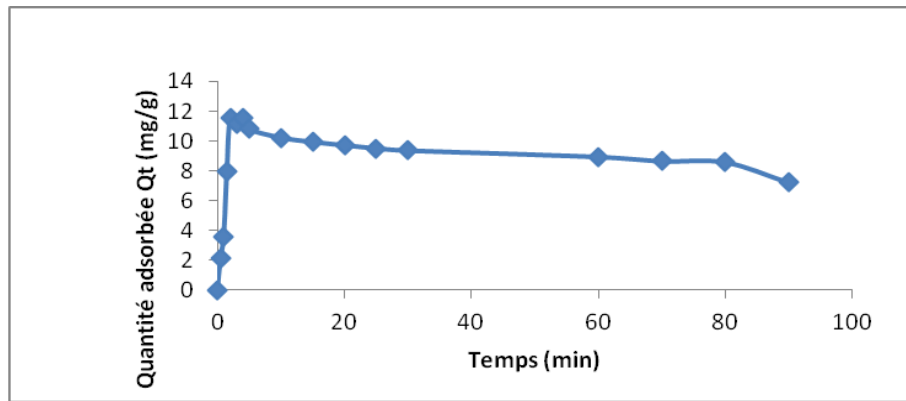
A : Absorbance

$C_t$  (g/l) : Concentration du xanthane à instant « t ».

$Q_t$  (mg/g) : Quantité adsorbée de xanthane sur la bentonite à instant « t ». calculée comme suit :

$$(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/20) * 1000$$

R%: le rendement  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/C_{\text{initiale}}) * 100$ .



**Figure III.11 :** Evolution de l'adsorption du xanthane sur la calcite.

D'après cette figure, il a été constaté que le xanthane s'adsorbe moins bien sur la calcite, atteignant une quantité adsorbée de 11 mg/g qui correspond à un rendement de 38 % pour une durée de deux minutes de contact, un très faible relargage (désorption) est observé après une durée d'équilibre, indiquant une éventuelle concentration limite d'adsorption.

#### III.4.4. Interaction xanthane-kaolin :

Pour réaliser cette étude, 20 g de kaolinite mis en suspension dans une solution dont la concentration initiale en xanthane est de 0,6 mg/L.

Nous présentons ci-dessous les résultats des quantités adsorbées du xanthane sur la kaolinite en fonction du temps.

**Tableau III.9** quantités adsorbées du xanthane sur la kaolinite.

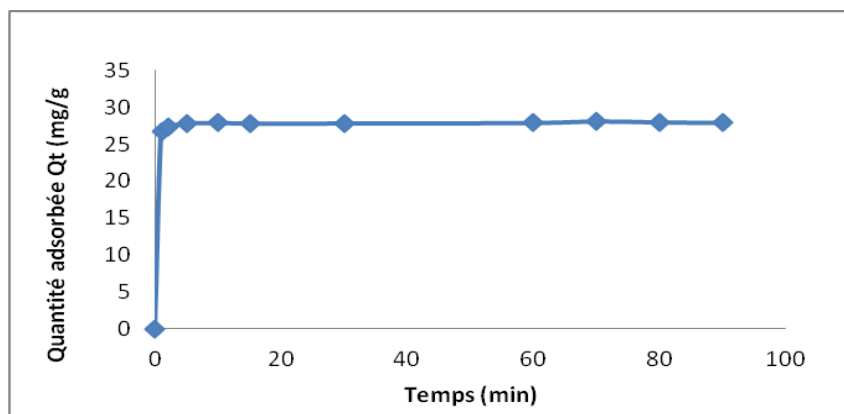
t	A	C <sub>t</sub> (g/l)	Q <sub>t</sub> (mg/g)	R%
0,00	0,44	0,60	0,00	0,00
1,00	0,04	0,06	26,79	89,30
2,00	0,03	0,05	27,37	91,22
5,00	0,02	0,04	27,80	92,66
10,00	0,02	0,04	27,87	92,90
15,00	0,02	0,04	27,80	92,66
30,00	0,02	0,04	27,80	92,66
60,00	0,02	0,04	27,87	92,90
70,00	0,02	0,04	28,09	93,62
80,00	0,02	0,04	27,94	93,14
90,00	0,02	0,04	27,87	92,90

A : Absorbance

C<sub>t</sub> (g/l) : Concentration du xanthane à instant « t »

Q<sub>t</sub> (mg/g) : Quantité adsorbée de xanthane sur la bentonite à instant « t ». Calculée comme suit :  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/20) * 1000$

R%: le rendement  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/C_{\text{initiale}}) * 100$ .



**Figure III.12 :** Evolution de l'adsorption du xanthane sur le kaolin

La courbe indique qu'au bout de 5 min la quantité adsorbée de xanthane par le kaolin atteint son maximum d'adsorption de 27.8 mg par gramme d'adsorbant qui correspond à un rendement de 93 %.

#### III.4.5 Interaction sp breaker–matrices modèles :

20 g de bentonite, de calcite et de Kaolin sont séparément mises dans des solutions aqueuses dont la concentration initiale en sp Breaker est de 0,1 g.L<sup>-1</sup>. Les trois tableaux ci-dessous illustrent les résultats des quantités adsorbées du breaker respectivement sur la bentonite, la calcite et la kaolinite.

**Tableau III.10 :** quantités adsorbées du breaker sur la bentonite

Temps (min)	A	C <sub>t</sub> (g/l)	Q <sub>t</sub> (mg/g)	R%
0	0,25	0,1000	0,00	0
1	0,20	0,0796	1,02	20,4
2	0,01	0,0036	4,82	96,4
5	0,01	0,0036	4,82	96,4
10	0,01	0,0036	4,82	96,4
15	0,01	0,0036	4,82	96,4
20	0,01	0,0036	4,82	96,4
25	0,01	0,0036	4,82	96,4
30	0,01	0,0036	4,82	96,4
60	0,01	0,0036	4,82	96,4

**Tableau III.11 :** quantités adsorbées du breaker sur la calcite

Temps (min)	A	C <sub>t</sub> (g/l)	Q <sub>t</sub> (mg/g)	R%
0	0,250	0,1000	0,00	0
1	0,190	0,0756	1,22	24,4
2	0,100	0,0396	3,02	60,4
5	0,090	0,0356	3,22	64,4
10	0,090	0,0356	3,22	64,4
15	0,091	0,0360	3,20	64,0
20	0,092	0,0364	3,18	63,6
25	0,092	0,0364	3,18	63,6
30	0,093	0,0368	3,16	63,2
60	0,120	0,0476	2,62	52,4

A : Absorbance

C<sub>t</sub> (g/l) : Concentration du xanthane à instant « t »

Q<sub>t</sub> (mg/g) : Quantité adsorbée de xanthane sur la bentonite à instant « t ». Calculée comme suit :  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/20) * 1000$

R% : le rendement  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/C_{\text{initiale}}) * 100$ .

**Tableau III.12** : quantités adsorbées du breaker sur la kaolinite.

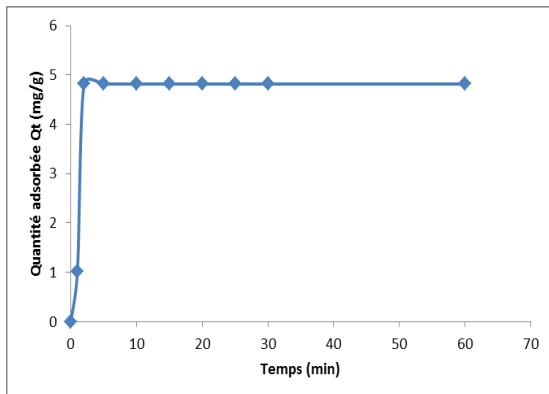
A : Absorbance

Temps (min)	A	C <sub>t</sub> (g/l)	Q <sub>t</sub> (mg/g)	R%
0	0,25	0,1000	0	0
1	0,20	0,0796	1,02	20,4
2	0,01	0,0036	4,82	96,4
5	0,02	0,0076	4,62	92,4
10	0,03	0,0116	4,42	88,4
15	0,03	0,0116	4,42	88,4
20	0,02	0,0076	4,62	92,4
25	0,01	0,0036	4,82	96,4
30	0,01	0,0036	4,82	96,4
60	0,01	0,0036	4,82	96,4

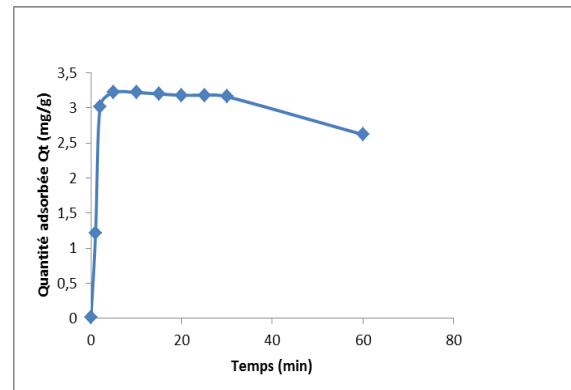
C<sub>t</sub> (g/l) : Concentration du xanthane à instant « t »

Q<sub>t</sub> (mg/g) : Quantité adsorbée de xanthane sur la bentonite à instant « t ». Calculée comme suit :  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/20) * 1000$

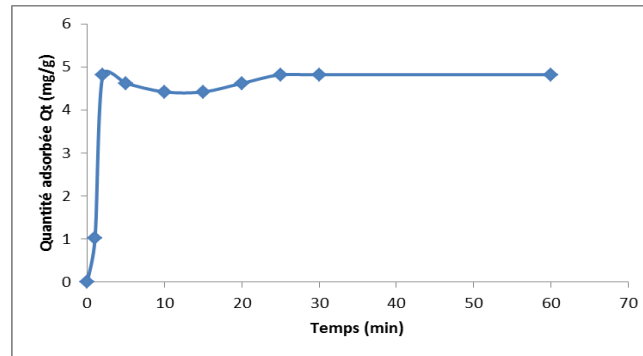
R%: le rendement  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/C_{\text{initiale}}) * 100$ .



**Figure III.13** Evolution de l'adsorption du sp breaker sur la Bentonite à 25°C.



**Figure III.14:** Evolution de l'adsorption du sp breaker sur la calcite à 25°C.



**Figure III.15:** Evolution de l'adsorption du sp breaker sur le Kaolin à 25°C

Selon les résultats présentés sur les trois figures ci-dessus, le sp breaker s'adsorbe sur les deux matrices bentonite et kaolin en atteignant le maximum d'adsorption en un temps très court de 2 minutes, avec un rendement d'adsorption identique qui avoisine les 96%. Pour la calcite, le sp breaker s'adsorbe moins bien que les deux premières matrices et on remarque, aussi, un relargage après 30 minutes de contact. Comme conclusion, les trois matrices modèles présentent des capacités d'adsorption certaines, la bentonite paraît être un très bon adsorbant à comparer aux deux autres matrices (Kaolin et la calcite), cet avantage est dû au fait que sa surface spécifique (90 m<sup>2</sup>/g) est nettement supérieure que celles des deux autres (20 m<sup>2</sup>/g pour le Kaolin et 0.22 M<sup>2</sup>/g pour la calcite).

Aussi, la bentonite possède une épaisseur totale du feuillet et de l'espace interfeuillet associé d'environ 14 Å, Cependant, elle a la capacité de gonfler, par écartement de ses feuillets, en présence d'eau de 10 à 15 fois son volume initial et peut absorber jusqu'à 6,5 fois son poids en eau, ce qui favorise une nette augmentation de cette épaisseur [64] et [45]. Cette propriété est traduite par une augmentation de l'hydratation et donc une expansion des feuillets et par conséquent, une augmentation de la rétention des molécules d'eau chargées de polluants.

#### **III.4.6. Les essais d'interactions xanthane – roche mère et sp breaker –roche mère à 85°C :**

Des essais ont été effectués à une température de 85°C. Ce choix de température a été fait afin de se rapprocher le plus possible des conditions réelles des gisements car la température au niveau des réservoirs est très élevée (atteignant parfois les 130 °C) [71].

20 g de roche shale broyée est mise dans une solution aqueuse dont les concentrations initiales en xanthane et sp breaker sont respectivement de  $0,6\text{g.L}^{-1}$ ,  $0,1\text{g.L}^{-1}$ .

Les tableaux ci-après représentent les résultats des quantités adsorbées respectivement, du breaker et du xanthane sur la roche mère à  $85^\circ\text{C}$ .

**Tableau III.13** quantités adsorbées du sp breaker sur la roche mère à  $85^\circ\text{C}$ .

Temps (min)	A	Ct (g/l)	Qt (mg/g)	R%
0	0,25	0,100	0,00	0
1	0,23	0,092	0,42	8,4
2	0,22	0,088	0,62	12,4
5	0,08	0,032	3,42	68,4
10	0,10	0,040	3,02	60,4
15	0,11	0,044	2,82	56,4
20	0,11	0,044	2,82	56,4
30	0,13	0,052	2,42	48,4
60	0,15	0,060	2,02	40,4

**Tableau III.14** quantités adsorbées du xanthane sur la roche mère à  $85^\circ\text{C}$ .

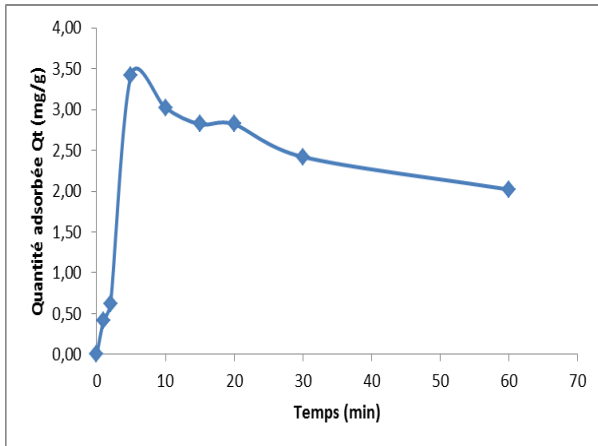
Temps (min)	A	Ct (g/l)	Qt (mg/g)	R%
0	0,417	0,600	0,00	0,0
1	0,34	0,499	5,05	16,8
2	0,315	0,463	6,85	22,8
5	0,270	0,398	10,09	33,6
10	0,250	0,369	11,53	38,4
15	0,200	0,297	15,13	50,4
20	0,202	0,300	14,98	49,9
30	0,201	0,299	15,06	50,2
60	0,230	0,341	12,97	43,2

A : Absorbance

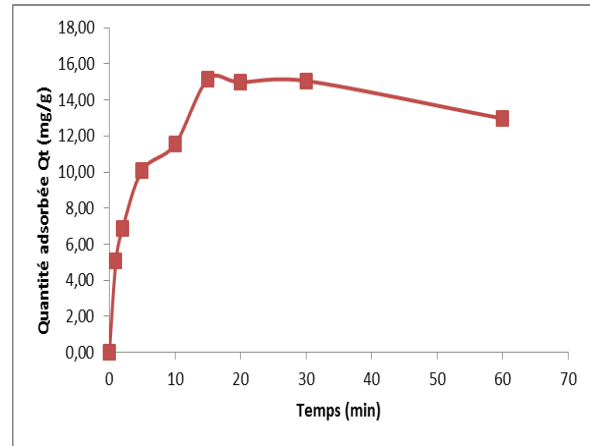
$C_t$  (g/l) : Concentration du xanthane à instant « t »

$Q_t$  (mg/g) : Quantité adsorbée de xanthane sur la roche mère à instant « t ». Calculée comme suit :  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/20) * 1000$

R%: le rendement  $(C_{\text{initiale}} - C_{\text{finale}}/C_{\text{initiale}}) * 100$ .



**Figure III.16** Evolution de l'adsorption du sp breaker sur la roche mère à  $85^\circ\text{C}$ . ( $C_0=0.1\%$ ,  $C_s = 20\text{g.L}^{-1}$ ).



**Figure III.17:** Evolution de l'adsorption du xanthane sur la roche mère à  $85^\circ\text{C}$ . ( $C_0=0.6\%$ ,  $C_s = 20\text{g.L}^{-1}$ ).

Il a été observé que la roche mère adsorbe le sp breaker au bout 5 minutes et atteint un rendement de 68 %. Alors qu'avec le xanthane, le rendement maximal atteint 50% au bout de 15 minutes.

Cette différence de rendement est du éventuellement au fait que le sp breaker est un tensioactif de structure amphiphile, cette dernière lui confère une affinité particulière pour les interfaces de type huile/eau et eau/huile ce qui facilite sa pénétration dans les pores de la roche mère. À l'inverse, le xanthane est un polymère composé de longues chaînes moléculaires appelées macromolécules, sa structure ne permet pas, à la fois, un accès facile à la surface de l'échantillon et une pénétration dans les pores de la roche. Cette raison de restriction de taille réduit leurs interactions et par conséquent le polymère ne s'adsorbe pas facilement sur l'échantillon.

### **III.5. Etude des interactions sp breaker –proppant (sable naturel) :**

En considérant que le sable est l'agent de soutènement le plus utilisé dans les opérations de fracturation hydraulique, des essais d'interactions ont été réalisés pour évaluer l'adsorption du sp breaker sur un sable éolien Algérien. Cette partie de travail, nous permettra d'une part d'apprécier le taux d'adsorption des additifs chimiques sur le proppant et l'effet sur l'endommagement de la roche réservoir (colmatage et par conséquent la réduction de production de gaz). D'autre part, comparer les taux d'adsorption du sp breaker entre le sable et les autres matrices minérales.

Au préalable, plusieurs échantillons de sable ont été caractérisés et évalués selon la norme ISO 13503-2. Cette dernière propose des modes opératoires afin d'améliorer la qualité des agents de soutènement livrés sur les sites des puits. Elle permet d'évaluer certaines propriétés physiques essentielles utilisées dans les opérations de fracturation hydraulique et de remplissage de gravier. Ces essais rendent possible la comparaison des caractéristiques physiques de différents agents de soutènement potentiels et permet la sélection des matériaux utiles.

Cette étude nous permettra aussi, d'étudier l'interaction des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation avec le sable qui est constitué principalement de silice considérée aussi comme matrice qui compose la roche mère.



**Tableau III.15** : Résultats d'analyses obtenus selon l'ISO 13503-2

Type de sable	Echantillon	Solubilité acide (%)	Turbidité (NTU)	Écrasement (%)	SiO <sub>2</sub> (%)	Rondeur	Sphéricité
Éolien	1	12.09	2.55	20.091	95.07	0.6	0.8
	2	07.40	0.443	07.283	96.44	0.1	0.6
	3	08.06	0.57	06.932	97.74	0.8	0.9
	4	03.83	0.633	08.007	98.67	0.5	0.5
	5	03.71	0.45	09.727	98.09	0.8	0.6
<b>Normes</b>		<b>≤ 3.0</b>	<b>≤ 250</b>	<b>≤ 10 %</b>	<b>98.00</b>	<b>≥ 0.6</b>	<b>≥ 0.6</b>

L'analyse a porté sur cinq (05) échantillons de sable analysés, un seul échantillon a été sélectionné et retenu à savoir, l'échantillon 05 pour les critères suivants :

- Teneur en silice très appréciable (supérieure à 98.00 %) ;
- Bonne rondeur et sphéricité des grains. Il est nécessaire que les agents de soutènement aient une sphéricité moyenne de 0,6 ou plus et une rondeur moyenne de 0,6 ou plus. Elles sont d'une grande utilité car la forme du proppant est garante d'une bonne performance ;
- Très bonne résistance à l'écrasement avec un pourcentage écrasé nettement inférieur au seuil maximal requis.
- Une faible solubilité à l'acide. Le principe de cet essai est d'évaluer si l'agent de soutènement peut être mis en contact avec l'acide dans d'éventuelles applications. On testera donc cette aptitude en présence de l'acide chlorhydrique (HCl) et le bifluorure d'ammonium (NH<sub>4</sub>F<sub>2</sub>).
- Une turbidité ≤ 250 NTU, en général il est souhaitable de la limiter car elle rend plus difficile le traitement du fluide de fracturation flow back.

De plus, cela peut diminuer les performances du fluide en créant des phénomènes de diagenèses de la roche shale et peut provoquer le colmatage des passages fracturés créés. Ce phénomène est considéré comme l'une des raisons possibles du déclin accru de la production [57]. En conséquence, il est préférable d'opter pour un agent de soutènement possédant une faible turbidité. Cependant, pour le sable naturel, objet de notre étude, nous pouvons toujours procéder au préalable à un lavage, si nécessaire.

A ce sujet, avant d'étudier les interactions, plusieurs lavages à l'eau chaude ont été effectués dans le but d'éliminer les éventuelles impuretés.

Du point de vue pratique, le proppant est véhiculé par le fluide de fracturation pour atteindre le niveau réservoir ciblé. A ce propos, nous avons étudié en premier l'influence du temps de contact sur l'adsorption du sp breaker.

### III.5.1 Evolution de l'adsorption sp breaker sur sable :

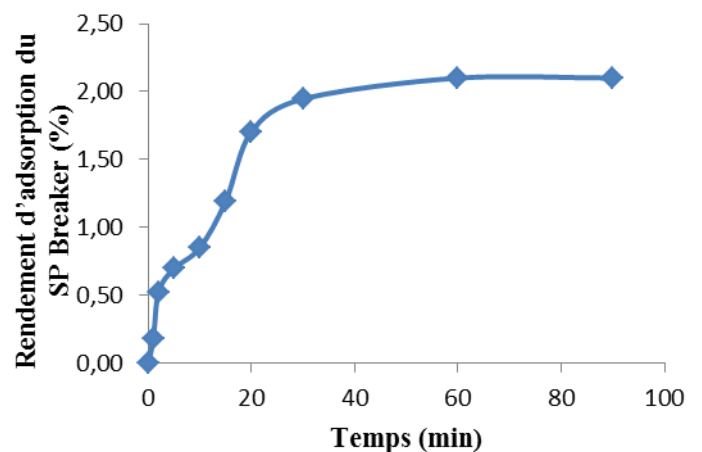
#### A. Effet du temps de contact :

L'effet du temps de contact est représenté sur la Figure II.16 qui présente une nette augmentation de la quantité adsorbée lors des 30 premières minutes atteignant un rendement d'adsorption avoisinant les 2%, à partir de ce moment-là la quantité adsorbée évolue d'une manière moins importante atteignant une valeur maximale de 2.1%, ce qui forme un palier entre  $t = [30 - 90\text{min}]$ . Ainsi, l'équilibre est atteint à 60 min. Ce temps d'équilibre (60min) sera fixé pour la suite de l'étude paramétrique.

Le tableau ci-après représente l'évolution du rendement d'adsorption du sp breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05).

**Tableau III.16 :** Evolution du rendement d'adsorption du sp breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05) en fonction du temps

Temps	A	Ct (g/l)	R%
0	0	0,0	0,00
1	0,0583	0,00998	0,17
2	0,0581	0,00995	0,51
5	0,0580	0,00993	0,68
10	0,0579	0,00992	0,85
15	0,0577	0,00988	1,19
20	0,0574	0,00983	1,7
30	0,0573	0,00981	1,93
60	0,0572	0,00979	2,10
90	0,0572	0,00979	2,10



**Figure III.18:** Evolution du rendement d'adsorption du sp breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05) en fonction du temps. ( $C_0=0.01\%$ ,  $C_s = 10 \text{ g.L}^{-1}$ ,  $T = 23.5^\circ\text{C}$ ).

Xu et al (2012) ont étudié l'adsorption du bromate sur le nano akaganeite cristalline revêtu de sable de quartz, le temps d'équilibre atteint est de 10 min, sous les conditions suivantes : la masse d'adsorbant 10 mg/L,  $V = 150 \text{ tr. min}^{-1}$  à  $T = 25^\circ\text{C}$  [72].

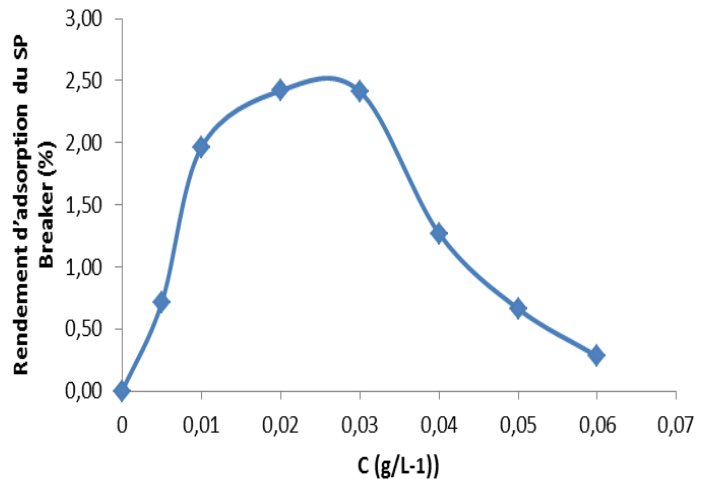
#### B. Effet de la concentration :

L'effet de concentration initiale du sp breaker a été étudié. L'étude de l'adsorption a été réalisée par variation de la concentration dans la gamme de 0.005 à 0.06  $\text{g.L}^{-1}$ , et

les résultats sont donnés sur la figure II.17. Dans un premier temps, nous observons une augmentation de l'adsorption avec l'augmentation de la concentration du sp breaker atteignant une valeur maximale de 2,41% pour une concentration de 0,02 g.L<sup>-1</sup> et 0.03 g.L<sup>-1</sup> puis l'adsorption diminue au fur à mesure que la concentration augmente. Le tableau ci-après représente l'évolution du rendement d'adsorption en fonction de la variation de la concentration du breaker.

**Tableau III.17 :** Evolution du rendement d'adsorption sp breaker sable éolien en fonction de la variation de la concentration initiale du sp breaker (sable éolien)

Concentration (%volumique)	A	C <sub>t</sub> (g/l)	R%
0	0,0	0	0
0,005	0,0290	0,005	0,71
0,01	0,0573	0,010	1,96
0,02	0,1140	0,020	2,42
0,03	0,1710	0,029	2,41
0,04	0,2307	0,039	1,27
0,05	0,2902	0,050	0,66
0,06	0,3495	0,060	0,28



**Figure III.19 :** Evolution du rendement d'adsorption breaker sur l'échantillon de sable éolien (N°#05) en fonction de la variation de la concentration initiale du sp breaker (C<sub>s</sub> = 10 g.L<sup>-1</sup>, T =23.5°C)

L'augmentation du rendement d'adsorption est le résultat de l'occupation de la surface des sites libres, accessibles à de faibles concentrations du sp breaker dans la solution. Les résultats restent en accord avec ceux trouvés par Dubey et coll. (2015) [73].

La fraction décroissante du soluté adsorbé avec l'augmentation de la concentration de la solution indique une saturation des sites d'adsorption à la surface des grains de sable [74].

La concentration de 0.01 g.L<sup>-1</sup> en volume qui représente la concentration du sp breaker réelle dans le fluide de fracturation. Elle sera retenue pour la suite des paramètres à étudier.

### C. Effet de la température :

La température est un facteur important affectant le taux d'adsorption. Son effet sur l'adsorption du sp breaker par le sable a été étudié en variant la température de 23.2

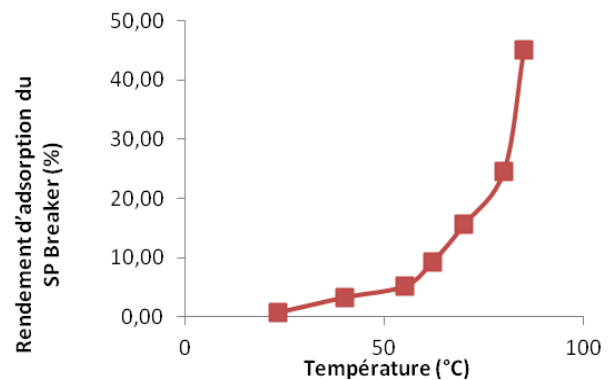
à 85 °C tout en maintenant les autres conditions expérimentales constantes. Il est à préciser que le prélèvement des différents échantillons se fait instantanément dès l'atteinte de la température ciblée (dans notre cas entre 0 à 30 secondes).

Le rendement d'adsorption est d'environ 0.7 % à 23.2 °C et de 45% à 85 °C. Les résultats ont montré que la capacité d'adsorption du sp breaker sur le sable a fortement augmenté avec l'augmentation de la température, ce qui indique que le processus est endothermique [75].

On attribue ce phénomène à l'augmentation de la surface active des sites d'adsorption disponibles due à l'élargissement de la taille des pores et l'activation de la surface de l'adsorbant. Ce qui signifie que le système adsorbat-adsorbant suit un processus endothermique [76].

**Tableau III.18 :** Evolution de l'adsorption du sp breaker sur le sable (N°#05) en fonction de la température.

Température	A	C <sub>t</sub> (g/l)	R%
23	0,0580	0,0099	0,71
40	0,0565	0,0097	3,28
55	0,0554	0,0095	5,17
62	0,0530	0,0091	9,23
70	0,0493	0,0084	15,56
80	0,0441	0,0075	24,56
85	0,0321	0,0055	45,00



**Figure III.20 :** Evolution de l'adsorption du sp breaker sur le sable (N°#05) en fonction de la température. ( $C_0=0.01\%$ ,  $C_s = 10 \text{ g.L}^{-1}$ ).

Vu les résultats d'adsorption des additifs chimiques sur les proppants, l'usage des sables enrobés pourrait réduire les interactions et par conséquent l'adsorption des additifs chimiques présents dans les fluides de fracturation.

### III.6. Etude de la Biodégradabilité des additifs utilisés dans le fluide de fracturation :

Sur la base des résultats précédents, une étude de biodégradabilité est nécessaire afin d'avoir d'une part une idée sur la tendance de la biodégradabilité de ces deux produits chimiques à savoir le xanthane et le sp breaker en phase aérobie lors de la remontée du fluide de retour (flowback) et son stockage en surface et d'autre part pour prédire leur devenir au sein du gisement compte tenu de la preuve de leurs adsorptions dans le réservoir (roche mère).

Face aux contraintes d'évaluation et de suivi de la biodégradation d'une panoplie d'additifs utilisés dans l'activité pétrolière (coût, temps, fiabilité...), plusieurs travaux ont porté sur l'étude de la biodégradation en étudiant les propriétés physiques des composés.

Haus et al. (2000, 2001 et 2003) ont montré que la biodégradabilité diminue avec l'augmentation de la teneur en aromatiques [77], Ils ont montré aussi que la viscosité cinématique est le facteur le plus significatif dans la variation de la biodégradabilité avec la composition chimique et les propriétés physico-chimiques des huiles [78]. Pour établir des méthodes de calcul de la biodégradabilité, Jiang, Zhanpeng, et al. (2002) se sont basés sur le rapport DBO<sub>5</sub>/DCO, la production du CO<sub>2</sub> et l'activité des microorganismes par l'analyse de l'activité des microorganismes ATP (adénosine triphosphate) [79].

Dans notre cas nous nous sommes basés sur la détermination de la DBO<sub>28</sub> (Demande biochimique en oxygène durant 28 jours) et de la DCO d'une solution de concentration connue du produit à tester.

La DBO<sub>5</sub> est mesurée dans le but de déterminer le taux de dégradation des charges organiques polluantes sous l'action des microorganismes en milieu aérobie. La demande biochimique en oxygène a été mesurée après 5 jours (DBO<sub>5</sub>) par la méthode respirométrique, selon la norme ISO 9408.

Pour que les tests de biodégradabilité soient validés :

- Le pH des milieux testés doit être compris entre 6 et 8,
- Le taux de biodégradabilité du milieu de référence doit dépasser 50% dans les premiers cinq jours du test.

**Tableau III.19** : pH des solutions (au début et à la fin de l'essai).

		Référence	Blanc	Sp breaker	Xanthane
pH	Début d'essai	7,36	7,39	7,40	7,38
	Fin d'essai	7,79	7,63	7,50	7,62

**Tableau III.20** : DCO du produit référence, de xanthane et sp breaker.

	Produit référence	Xanthane	Sp breaker
DCO (mg O <sub>2</sub> /L)	132	154	181

DCO: Demande chimique en oxygène.

La consommation d'oxygène dans la solution à blanc ne doit pas dépasser 60 mg/Len 28 jours ce qui est vérifié (voir les résultats du test de biodégradabilité).

On considère donc que le test de biodégradabilité effectué sur les produits étudiés est valide conformément à la norme.

**Tableau III.21** : Résultats de la biodégradabilité des deux additifs

Réactifs	DBO <sub>5</sub> (mg O <sub>2</sub> /L)	DBO <sub>28</sub> (mg O <sub>2</sub> /L)	Taux de Biodégradabilité (%)
Blanc	6,7	19,5	0
Référence	59,2	94,7	71,74
Xanthane	25,9	135	87,66
Sp breaker	9,9	25,4	14,03

Taux de biodégradabilité = (DBO/DCO)\*100.

Les résultats de biodégradabilité des produits utilisés ont révélé que le sp breaker se situe dans la deuxième catégorie c'est-à-dire non biodégradable puisque son taux de biodégradabilité est nettement inférieur à 60 %. Pour le xanthane, il appartient à la première catégorie c'est-à-dire biodégradable avec un taux proche à 60%. Cette tendance a été aussi confirmée par Khodja (2008) qui a montré que le xanthane est biodégradable avec un pourcentage de 87%. Il s'agit d'un biopolymère de fermentation utilisant le *xanthomonas campestris*.

### III.7. Conclusion :

Le premier forage d'exploration des ressources non conventionnelle réalisé en Algérie dans la région d'AHENET nous a permis d'approfondir davantage nos données sur nos réserves gazières. Notre travail a pour but d'éclaircir et d'évaluer l'impact lié à l'exploitation de ces ressources en Algérie et savoir quel impact induit l'utilisation des fluides de fracturation hydraulique sur l'environnement et quel est le devenir des produits chimiques utilisés dans ce cas là.

Les résultats de l'analyse minéralogique par FX de la roche mère illustrent la présence des métaux lourds et donc leur présence dans le fluide de retour (flowback) par conséquent, la nécessité de prévoir un traitement poussé de ces fluides de retour.

Le but du test d'adsorption du tensioactif « sp breaker » sur le sable naturel est de montrer que ce dernier est inerte vis-à-vis des produits chimiques et principalement les tensioactifs qui peuvent jouer le rôle de réducteur de la tension de surface entre le fluide et le brut et pouvant donc modifier la mouillabilité de la roche.

Les résultats ont montré que le sp breaker s'adsorbe sur le sable, ce qui peut réduire considérablement la perméabilité de la roche mère. Il est donc recommandé de modifier la surface des sables en les enrobant avec une résine thermodurcissable pour éviter ce phénomène. Aussi, nous avons constaté que La température a un effet considérable sur l'adsorption du sp breaker (tensioactif) sur le sable. En effet, pour une variation de température de 0 à 85 °C le rendement d'adsorption a augmenté de 45%.

Les résultats ont montré que la capacité d'adsorption du sp breaker augmente avec le temps et atteint une valeur constante à partir de 60 min. Le temps d'équilibre était d'environ 60 min mais les expériences d'adsorption ont quand même été effectuées pendant 90 min à des fins de comparaison avec la littérature

D'autre part, les études d'interactions entre les deux produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation à savoir le sp breaker et xanthane ont été sélectionnées dans l'objectif de viser les polymères et les tensioactifs les plus utilisés en grande quantité dans les fluides de fracturation et souvent les plus chers. Les interactions de ces deux produits ont été étudiées avec chaque matrice modèle sélectionnée séparément et nous a permis de constater que :

- La bentonite a un pouvoir très adsorbant du xanthane par rapport aux autres minéraux contenus dans la roche mère, cette quantité avoisine les 29.4 mg/g soit

(98%) de la quantité injectée et par conséquent une source de pollution de la roche mère ; Cet avantage est dû principalement au fait que la surface spécifique de la bentonite est supérieure à celles du Kaolin et de la calcite. L'épaisseur totale du feuillet et de l'espace interfeuillet associé que possède la bentonite lui attribue un pouvoir de gonfler, par écartement de ses feuillets, en présence d'eau, ce qui favorise une augmentation de la rétention des molécules d'eau chargées de polluants.

- Les matrices modèles, le kaolin et bentonite ont le même pouvoir adsorbant du tensioactif (sp breaker), on signale une quantité proche de 5 mg/g soit 96 % de la quantité initiale injectée ; Pour la calcite, le sp breaker s'adsorbe moins bien que les deux premières matrices

- La roche mère adsorbe une quantité de 15,13 mg du xanthane par gramme de roche mère équivalent à un rendement de 50% et une quantité de 3,42 de sp breaker par gramme d'adsorbant équivalent à un rendement de 68,46%, par voie de conséquence une éventuelle pollution de la roche mère.

- Ces résultats nous permettent de conclure que les tensioactifs sont facilement adsorbés et donc retenus dans la roche que les polymères. Cet avantage est dû au fait que la structure du tensioactif lui confère une affinité particulière pour les interfaces de type huile/eau et eau/huile ce qui facilite sa pénétration dans les pores de la roche mère. À l'inverse, le xanthane est un polymère composé de longues chaînes moléculaires, ce qui ne favorise pas un accès facile à la surface de l'échantillon et une pénétration dans les pores de la roche

- Selon notre étude et les résultats des tests d'adsorption obtenus, la bentonite s'avère être un très bon adsorbant pour le traitement des eaux de retour pour l'élimination du xanthane et du sp breaker, dont leurs quantités ne sont pas négligeables dans les eaux de retour et qui posent un problème environnemental assez important.

Les résultats de biodégradabilité des produits utilisés ont révélé ce qui suit :

- Le xanthane est un produit biodégradable car c'est un biopolymère de fermentation utilisant le xanthomonas Campestris, une espèce de protéobactéries de la famille des xanthomonadaceae.

- Le sp breaker est un produit non biodégradable, nécessitant d'autres méthodes de traitement autres que la méthode biologique.



Dans le chapitre suivant, nous allons se focaliser sur une étude rhéologique d'un polymère gélifiant (xanthane). La formulation du fluide ayant une concentration optimale sera utilisée en tant que fluide de fracturation. Nous rappelons qu'il faut avoir un compromis en terme de viscosité du fluide :

- Le plus visqueux possible pour mettre en suspension et transporter l'agent de soutènement (proppant).
- Le moins visqueux possible afin de minimiser le travail des pompes d'injection et la consommation d'énergie durant toute l'opération de fracturation.

***Chapitre IV : Etude Rhéologique***

#### **IV.1. Introduction :**

Le succès d'une opération de fracturation hydraulique est lié directement au bon choix du fluide utilisé ainsi que les produits qui le compose. A cet effet, le fluide de fracturation est choisi en fonction de plusieurs facteurs, il doit accomplir plusieurs fonctions à savoir :

- créer une pression afin d'éviter les fuites,
- Avoir une forte capacité de transporter le proppant et une faible chute de pression par frottement
- Posséder une stabilité et compatibilité avec la formation et le fluide d'origine [80]
- Enfin, le fluide ne doit pas engendrer de résidus solides après la rupture du gel, lors d'un débit de retour élevé [81].

Les additifs chimiques sont toujours mélangés à l'eau pour réduire les fuites de liquide, améliorer sa capacité à transporter l'agent de soutènement dans la roche et réduire les pertes de friction [80].

Les additifs injectés pour la facilitation du processus de fracturation et de la prévention des différents problèmes susceptibles de surgir sur le puits comprennent principalement des agents gélifiants, des agents réticulants, des crosslinker, des breaker, des polymères réducteurs de friction, des inhibiteurs de corrosion, d'entartrage et des biocides [82]. Il est donc nécessaire de comprendre les propriétés du fluide pour obtenir les résultats souhaités.

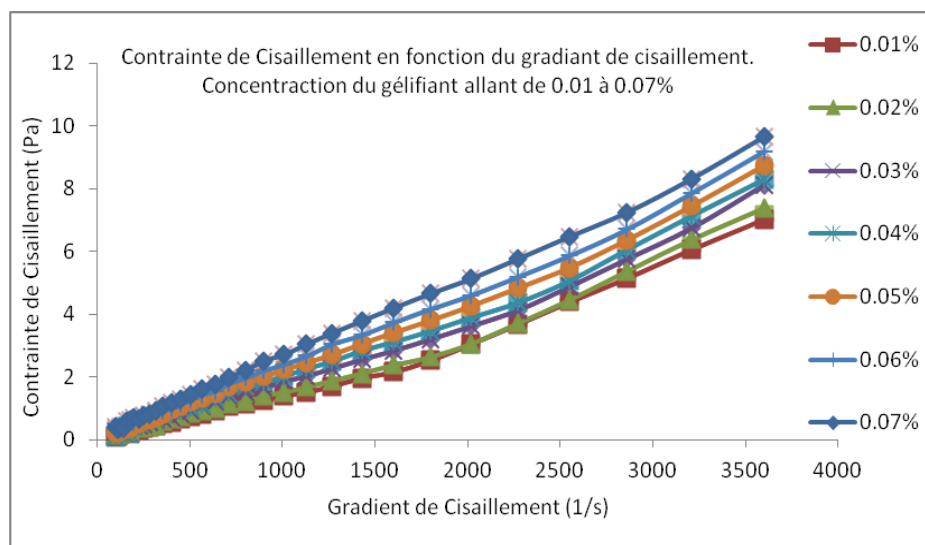
A travers l'étude du comportement rhéologique du mélange eau - agent gélifiant (polymère), nous avons procédé à une optimisation de la concentration du gélifiant et une modélisation de ce mélange. Ce fluide visqueux optimisé sera utilisé comme fluide de fracturation des réservoirs non conventionnels en véhiculant le proppant (agent de soutènement) à l'intérieur des fractures créées. Ce dernier permet de maintenir la fracture ouverte dans le réservoir facilitant ainsi la récupération du pétrole/gaz.

D'autre part, ce fluide doit être le moins visqueux possible afin de minimiser le travail des pompes d'injection et la consommation d'énergie durant toute l'opération de fracturation.

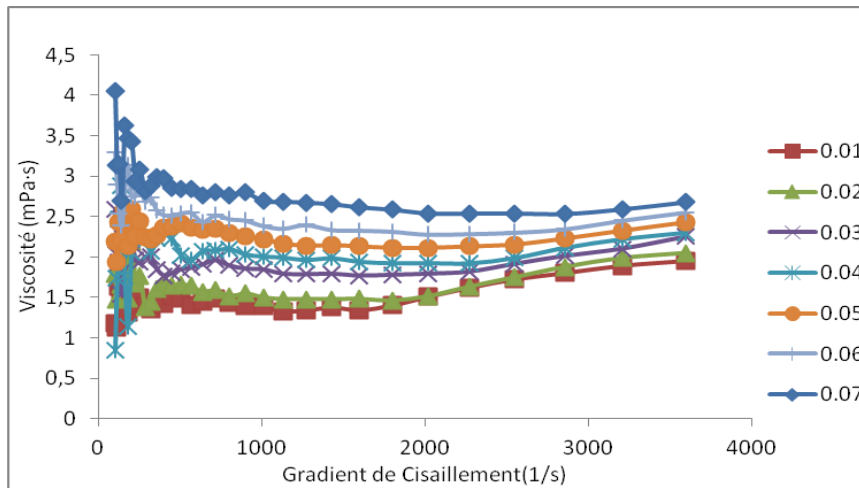
## IV.2. Effet de la concentration du gélifiant (xanthane) :

Pour rappel, l'étude sur l'effet de la concentration a été divisée en deux parties principales. Dans la première partie nous avons varié les concentrations du gélifiant entre 0.01% et 0.07%, pour la seconde partie les concentrations varient entre 0.1 % et 1.0 %.

Nous avons remarqué que les principaux paramètres rhéologiques n'étaient pas très affectés dans la première plage de concentration (0.01 à 0.07), pour un taux de cisaillement compris entre  $100 \text{ s}^{-1}$  à  $3600 \text{ s}^{-1}$ , les variations de la contrainte de cisaillement et de viscosité sont négligeables (Figure IV.1 et Figure IV.2). Pour les concentrations 0.06% et 0.07 % du gélifiant, la contrainte de cisaillement et la viscosité varient respectivement de 0.867 à 0.915 Pa et 2.731 à 2.883 mPa.s respectivement. A titre d'exemple, on remarque une faible augmentation de 5.53% de la viscosité pour un gradient de cisaillement appliqué de  $318 \text{ s}^{-1}$ .



**Figure IV.1:** Contrainte de cisaillement du mélange Eau-Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant allant de 0.01 à 0.07%.

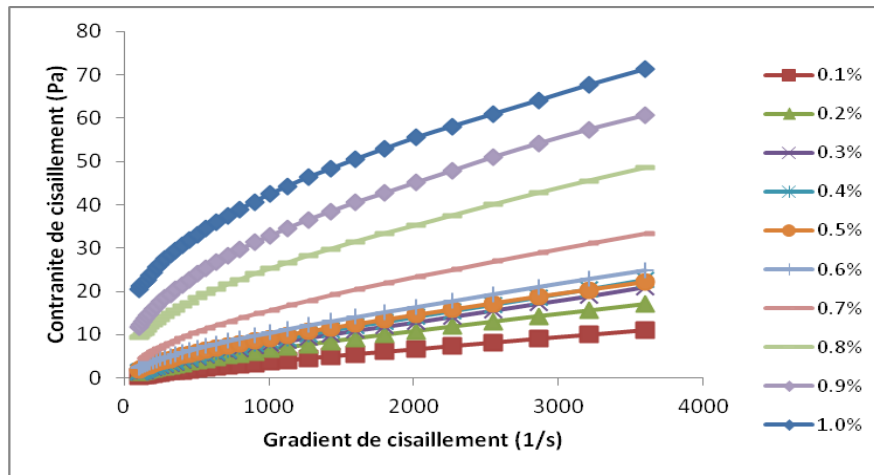


**Figure IV.2:** Viscosité du mélange Eau- Géifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du géifiant allant de 0.01 à 0.07%

D'après la figure ci-dessus, la viscosité est donc presque indépendante de la vitesse de déformation appliquée. Le mélange se comporte quasiment comme un fluide newtonien dans cette gamme de concentrations (0.01 à 0.07%).

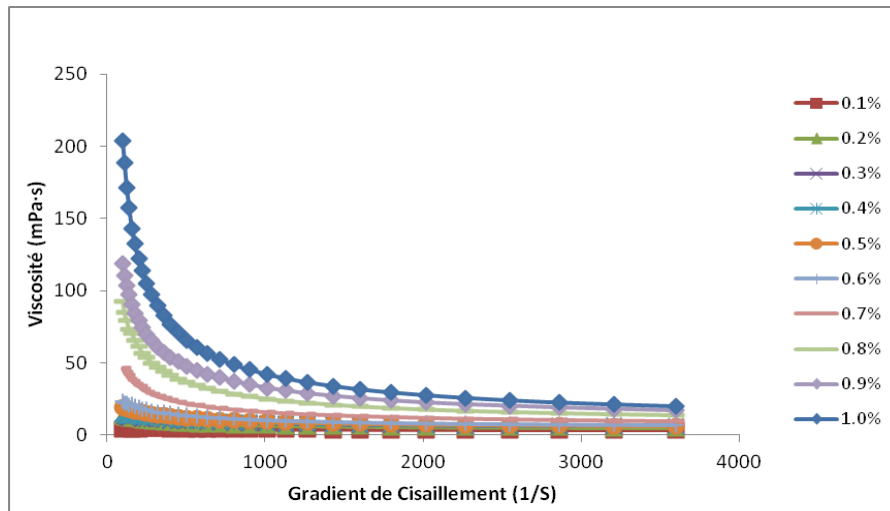
Dans la seconde partie les concentrations ont été augmentées et variées entre 0.1 % et 1.0 %. Les variations de la viscosité et de la contrainte de cisaillement par rapport au taux de cisaillement sont illustrées dans les Figures IV.3 et IV.4.

Les figures montrent que dans cette gamme de concentrations, le mélange se comporte comme un fluide non-newtonien, présentant un caractère pseudo-plastique (rhéofluidifiant) avec une contrainte critique. Le fluide a tendance à se fluidifier avec l'augmentation de cisaillement (cela correspond éventuellement à une valeur de l'exposant «n» inférieure à 1 (loi d'Herschel-Bulkley), ce qui se traduit par une diminution de leur viscosité.



**Figure IV.3** : Contrainte de cisaillement du mélange Eau-Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant 0.1 à 1.0%.

En effet, pour ce type de fluide à seuil, l'écoulement est observé uniquement lorsque la contrainte de cisaillement appliquée est supérieure à cette valeur critique (appelée aussi limite d'élasticité). Pour rappel, si la contrainte appliquée reste inférieure à cette valeur critique ( $\tau_0$ ), le matériau se comporte comme un solide. Dans le cas contraire, le matériau retrouve le comportement d'un fluide. Les deux modèles les plus utilisés pour caractériser les fluides à seuils sont, respectivement, le modèle de Herschel-Bulkley (1926) et le modèle de Bingham (1922) étant donné que ce dernier est un cas particulier du modèle du premier [83]. On peut également observer que les courbes du rhéogramme montrent des tendances similaires pour toutes les concentrations testées, exprimées par une augmentation progressive et significative de la contrainte de cisaillement avec l'augmentation du gradient de cisaillement. Une augmentation de la contrainte critique (limite d'élasticité) est constatée en fonction de l'augmentation des concentrations du xanthane (Figure IV.3)



**Figure IV.4:** Viscosité du mélange Eau- Gélifiant en fonction du gradient de cisaillement. Concentration du gélifiant 0.1 à 1.0%

Aussi, nous remarquons que l'ensemble des courbes d'écoulement obtenues pour le xanthane ( $\eta = f(\dot{\gamma})$ ) montrent deux régions distinctes, donc deux comportements. La première région à faible taux de cisaillement où la viscosité apparente du mélange diminue de manière significative, et la seconde où les gradients de cisaillement sont élevés. La viscosité apparente du mélange est stabilisée, presque linéaire reste constante (comportement newtonien).

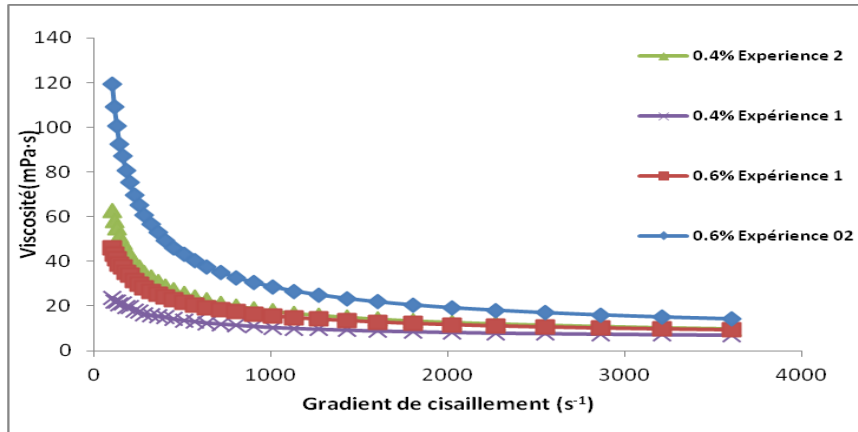
Le matériau soumis à de faibles taux de cisaillement a tendance à maintenir un ordre irrégulier des chaînes qui le composent avec une viscosité de cisaillement élevée. À des taux de cisaillement élevés, les chaînes du polymère se réorganisent, s'étirent et s'alignent dans la direction du cisaillement. Une des conséquences de ces réarrangements est la diminution de l'interaction entre les molécules ce qui contribue à une forte baisse de la viscosité [84] et [85].

### IV.3. Etude sur le vieillissement du mélange Eau –Gélifiant :

Cette partie a été consacrée à la mise en évidence de l'évolution de la viscosité en fonction du temps. Il a été observé que les mélanges conservent le comportement non newtonien (pseudo-plastique) même après les 24 heures. Leur comportement est très similaire à celui des mélanges fraîchement préparés. A travers ces résultats, il a été constaté, aussi, que la contrainte de cisaillement a augmenté pour les deux cas de mesures (0.4 et 0.6%), ce qui signifie que le fluide devient plus visqueux.

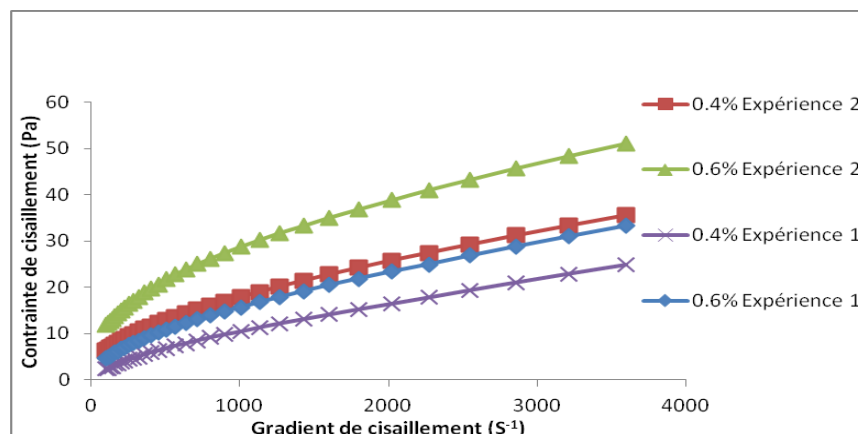
Par conséquent, les mélanges conservés nécessitent plus d'énergie de pompage pour être injectés dans le gisement.

A cet effet, il est recommandé de procéder à l'injection des fluides dès leurs préparations.



Expérience 1 : mesure réalisée sur des échantillons fraîchement préparés  
 Expérience 2 : mesure réalisée sur des échantillons laissés au repos pendant 24 heures.

**Figure IV.5:** Evolution de la viscosité du Gélifiant en fonction du temps  
 Concentration du gélifiant 0.4% et 0.6%



Expérience 1 : mesure réalisée sur des échantillons fraîchement préparés  
 Expérience 2 : mesure réalisée sur des échantillons laissés au repos pendant 24 heures.

**Figure IV.6:** Evolution de la contrainte du Gélifiant en fonction du temps  
 Concentration du gélifiant 0.4% et 0.6%

#### IV.4. Variation de la contrainte de cisaillement (viscosité) en fonction du temps :

##### IV.4.1. Etude de modélisation :

Afin de simuler le comportement réel du mélange eau-agent gélifiant, quatre (04) modèles rhéologiques les plus connus ont été utilisés :



$$\tau = k \dot{\gamma}^n \quad \text{Law (1)}$$

$$\tau = \tau_0 + k \dot{\gamma}^n \quad \text{Herschel Bulkley (2)}$$

$$\tau = \tau_0 + \eta \dot{\gamma} \quad \text{Bingham (3)}$$

$$\sqrt{\tau} = \sqrt{\tau_0} + \sqrt{\eta \dot{\gamma}} \quad \text{Casson (4)}$$

$\tau$  : Contrainte de cisaillement appliquée (Pa)

$k$  : Indice de cohérence ou de consistance (Pa sn)

$\dot{\gamma}$  : Gradient de cisaillement (S<sup>-1</sup>)

$\eta$  : Viscosité apparente

$\tau_0$  : Contrainte de rendement apparente

$n$  : Indice d'écoulement.

**Tableau IV.1** : Modélisation rhéologique du mélange eau-gélifiant pour des concentrations allant de 0.1, 0.4, 0.8 et 1.0 %.(le nombre de chiffres après la virgule doit-être cohérent avec les incertitudes de l'appareil).

Modèle de Rhéologie	Concentration %	Paramètre Rhéologique				R <sup>2</sup>
		$\tau_0$ (Pa)	$k$ (Pa s <sup>n</sup> )	$n$	$\eta$ (Pa s)	
Power Law	0,1	-	0.0100	0.8562	-	0.9992
	0,4	-	0.1135	0.6561	-	0.9993
	0,8	-	0.9385	0.4785	-	0.9983
	1,0	-	1.3463	0.4633	-	0.9994
Herschel Bulkley	0,1	0.1260	0.00783	0.8854	-	0.9993
	0,4	0.5333	0.08217	0.6938	-	0.9995
	0,8	3.3451	0.45336	0.5606	-	0.9997
	1,0	2.5418	0.91047	0.5068	-	0.9998
Bingham	0,1	0.4651	-	-	0.0031	0.9975
	0,4	3.0517	-	-	0.0065	0.9854
	0,8	11.3738	-	-	0.0114	0.9691
	1,0	15.1208	-	-	0.0142	0.9603
Casson	0,1	0.0833	-	-	0.0026	0.9992
	0,4	1.1836	-	-	0.0043	0.9969
	0,8	6.3052	-	-	0.0058	0.9942
	1,0	8.5953	-	-	0.0070	0.9907

Les résultats reportés dans le tableau ci-dessus montrent que pour une concentration de 0,1% de l'agent gélifiant, les quatre modèles cités ci-dessus conviennent à ce mélange. La différence entre eux est très faible, le coefficient de corrélation ( $R^2$ ) est compris entre 0.9975 et 0.9993). Il est à noter que le modèle Hershel-Bulkley est le plus adapté que les trois autres. Pour toutes les concentrations, il est le plus adapté aux données expérimentales. L'accord est encore meilleur lorsque la concentration du gélifiant augmente. On remarque que l'indice de flux 'n' est inférieur à 1 (entre 0,5 et 0,9) avec une existence d'une contrainte seuil d'écoulement. Cela signifie que ce fluide a un comportement fluidifiant (pseudo-plastique) ; un comportement type d'un polymère.

#### **IV.5. Conclusion :**

A travers les résultats précédents, nous pouvons conclure qu'une concentration optimale du polymère doit être respectée pour obtenir un mélange capable, d'une part, de créer une pression à l'intérieur du puits afin d'éviter les fuites et transporter le proppant à l'intérieur des fractures créées et d'autre part ce fluide doit être le moins visqueux possible afin de minimiser le travail des pompes et la consommation d'énergie lors de l'injection.

Aussi, la viscosité du polymère utilisé comme agent gélifiant (xanthane) a tendance à croître (forte viscosité) quand il est soumis à de faibles contraintes de cisaillement et à se fluidifier (faible viscosité) dans le cas contraire.

Ce comportement facilite la récupération du fluide de retour à la fin des opérations de fracturation (flow-back).

L'étude menée sur le vieillissement a montré que le polymère conserve un comportement non newtonien (pseudo-plastique) et que la contrainte de cisaillement a augmenté pour les échantillons conservés pendant 24 heures ce qui nécessite éventuellement plus d'énergie de pompage pour injecter le mélange dans le gisement.

Enfin, la modélisation rhéologique a montré que le mélange se comporte comme un fluide rhéofluidifiant avec une existence d'une contrainte seuil (critique) d'écoulement. Lorsque la contrainte de cisaillement appliquée est supérieure à cette valeur critique, l'écoulement est observé et le modèle Hershel-Bulkley est le plus adapté à ce type de comportement.

Les résultats obtenus seront considérés par la suite dans les expériences de simulation à l'échelle laboratoire de la fracturation en utilisant des échantillons de PMMA avec un fluide de fracturation composé de xanthane.

Les résultats obtenus dans ce chapitre seront exploités et utilisés ultérieurement dans ce qui va suivre. Au fait, plusieurs caractéristiques gouvernent le succès d'une opération de fracturation hydraulique et il est difficile de maîtriser tous les mécanismes mis en jeu. Parmi les facteurs les plus importants ; les propriétés de la roche et les caractéristiques du fluide de fracturation, influencent énormément la réussite de l'opération.

L'objectif du chapitre suivant est de simuler la roche par un matériau synthétique transparent (PMMA) afin de pouvoir visualiser l'initiation et suivre la propagation des fractures en fonction de la viscosité du fluide et du débit d'injection. Une solution de xanthane sera utilisée comme modèle du fluide de fracturation. Un travail de modélisation numérique sera réalisé en fin de compte afin d'analyser la sensibilité et comparer les résultats obtenus avec les résultats analytiques.

***Chapitre V : Etude de simulation de fracturation sur matériau transparent synthétisé***

## **V.1. Introduction :**

L'hydrocarbure est la source d'énergie non renouvelable et facile à obtenir dont le monde a le plus besoin. Comme la demande de cette énergie augmente et que les énergies alternatives (solaire, géothermique, nucléaire, etc.) sont insuffisantes, la plupart des compagnies pétrolières déploient beaucoup d'efforts pour exploiter davantage de réservoirs non conventionnels tels que les shale, tight... et ce grâce au développement avancé de la technologie de fracturation hydraulique qui a permis d'exploiter les réservoirs non conventionnels (schisteux ou étanches) en augmentant artificiellement la perméabilité par l'injection de fluide de fracturation dans le réservoir.

Cette technique est donc, généralement, appliquée dans les réservoirs à faible perméabilité ou lorsqu'il existe des barrières imperméables, où la production est très faible. Toutefois, cette technique est coûteuse et a un impact élevé sur l'environnement. Il est donc nécessaire de bien diriger la propagation des fractures induites en contrôlant le débit, la taille initiale des fissures et les propriétés du fluide injecté. Par ailleurs, la fracture doit être limitée dans la zone ciblée pour éviter sa propagation dans les formations adjacentes et par conséquent éviter toute éventuelle pollution.

Ce chapitre sera présenté en trois parties, La première partie présente la synthèse et la caractérisation du poly (méthacrylate de méthyle) (PMMA) par polymérisation radicalaire en utilisant le peroxyde de benzoyle (BPO) comme initiateur radical et le toluène comme solvant. Le polymère transparent qui en résulte a été utilisé comme matériau approprié pour réaliser des essais de fracturation hydraulique en variant différents paramètres, notamment la taille de la fissure initiale, le débit d'injection et la viscosité du fluide. Enfin, une modélisation analytique ainsi qu'une analyse par la méthode des éléments finis ont été réalisées en utilisant le logiciel «Ansys» afin de valider les résultats et les comparer à ceux des résultats expérimentaux obtenus au laboratoire.

## **V.2. Synthèse du polymère poly (méthacrylate de méthyle) (PMMA) :**

### **V.2.1. Procédure de préparation :**

L'homopolymère PMMA a été préparé par polymérisation radicalaire du monomère méthacrylate de méthyle (MMA), composé organique dont la formule est

$\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{CO}_2\text{CH}_3$ , il est essentiel de rappeler que dans cette partie, une polymérisation des radicaux libres est exécutée pour convertir un acide méthacrylique de méthyle en un acide polyméthacrylique de méthyle afin d'obtenir un polymère ayant des propriétés mécaniques proches à celles de la roche mère, pour cela il est nécessaire de varier à la fois la concentration de l'initiateur, la quantité du solvant, la température et le temps de la réaction.

Pour rappel, la polymérisation radicalaire s'effectue en trois (03) étapes

- L'amorçage : est la première étape de la polymérisation. Cette réaction permet la formation des premiers radicaux qui par la suite vont pouvoir réagir sur les monomères (résultant de la dissociation de l'amorceur), ce temps de dissociation ne doit ni être trop long (l'amorceur doit être suffisamment actif pour déclencher la polymérisation) ni être trop court (en se consommant entièrement sans polymériser tout le monomère) [85].
- La propagation : les espèces actives créent la chaîne qui croît avec la fixation de monomères sur chaque centre actif suivant. L'étape de propagation est en moyenne environ 100 000 fois plus rapide que l'amorçage. Cette étape peut être contrôlée par un agent de transfert, ainsi stopper la propagation.
- La terminaison : à un moment, la quantité d'amorceur n'est plus suffisante, donc le centre actif est détruit : la chaîne ne peut plus se former.

Avant de procéder la synthèse du polymère, nous avons procédé à la purification du monomère acide méthacrylate de méthyle (MMA) dans une colonne en verre muni d'un matériau adsorbant ou filtre à base d'une poudre d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) supporté sur des bouts de coton. Le monomère est versé progressivement du haut d'une colonne en verre à l'aide d'une pipette.

Le tableau ci-dessous illustre les conditions de réaction des différents polymères synthétisés. Comme exemple, le polymère optimal (PMMA-5) a été obtenu en utilisant l'initiateur peroxyde de benzoyle (BPO) à un rapport molaire de  $[\text{MMA}]_0:[\text{BPO}]_0 = 1500:1$ . Pour indication le temps de demi-vie du BPO est de 3.7 h et 7.3 heures à des températures de 80 et 70°C respectivement et par conséquent, le choix des températures sélectionnées pour les réactions de synthèses [86]. Le mélange MMA purifié (236.47g, 2.36 mol), BPO (0,38g, 1.57 mmol), une quantité de 182 mL de solvant de toluène a été ajouté dans un moule en verre de forme cylindrique de 500 ml. Le moule a ensuite été scellé et placé dans un bain d'huile

préchauffé. La polymérisation a été réalisée à 80 °C pendant 24 heures, puis a été trempée par refroidissement à température ambiante afin de stopper la réaction de polymérisation.

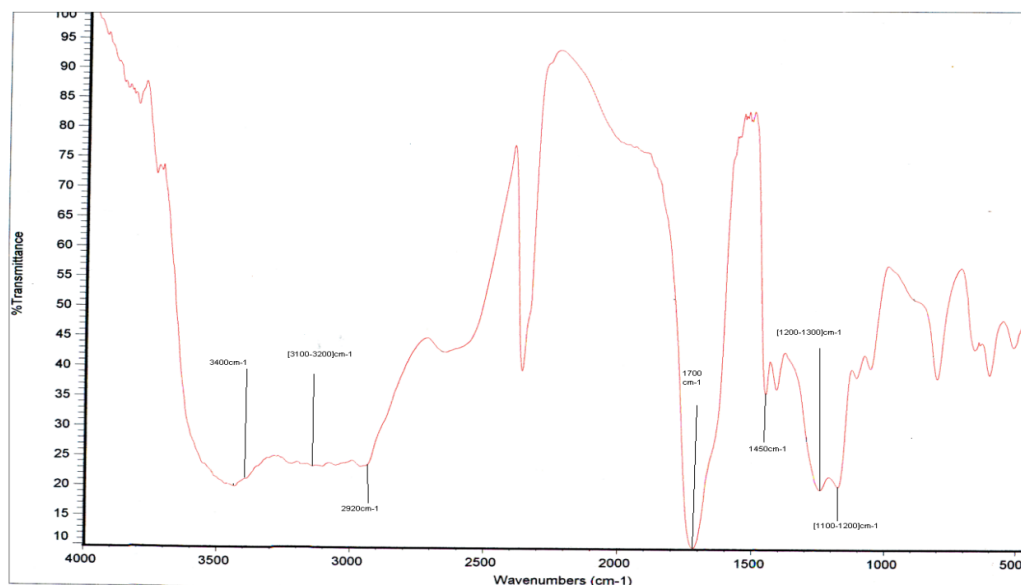
L'objectif principal de cette partie est de synthétiser un polymère dépourvu de bulles d'air afin d'être utilisé comme matériaux transparent pour la réalisation des essais de simulation de propagation de fractures hydrauliques. Ceci peut être réalisé en variant plusieurs paramètres à la fois : le ratio Monomère /initiateur, le solvant, la température et enfin le temps de réaction.

La présence de ces bulles d'air pourrait augmenter la perméabilité du matériau et par conséquent augmente l'aptitude du matériau poreux à se laisser traverser par le fluide ce qui empêchera la réalisation du test de simulation de fracturation. Pour rappel, les schistes se caractérisent par une très faible porosité (généralement inférieure à 5%) et une très faible perméabilité (généralement inférieure à 1000 nD) [87]. Ce qui rend la récupération de ces hydrocarbures très difficile et très coûteuse économiquement.

### **V.2.2. Caractérisation des polymères synthétisés par spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier FTIR :**

L'acide polyacrylique de méthyle synthétisé a été identifié par spectroscopie infrarouge à l'aide d'un FT-IR Perkin Elmer de la Division laboratoire de Boumerdes (CRD).

La figure **V.1** met en évidence les différentes bandes d'adsorption. Celles situées à  $2920\text{ cm}^{-1}$  et  $1450\text{ cm}^{-1}$ , caractérisent les groupements d'hydrocarbures comme le  $-\text{CH}_2$  et  $-\text{CH}_3$ . Le groupement fonctionnel carboxylique ( $\text{C}=\text{O}$ ) du polymère est confirmé par le pic à environ  $1700\text{ cm}^{-1}$ . La bande située entre  $1100$  et  $1200\text{ cm}^{-1}$  identifie la liaison  $-\text{C}-\text{C}$ . Enfin, la bande située entre  $1200$  et  $1300\text{ cm}^{-1}$  représente la liaison  $-\text{C}-\text{O}$ .



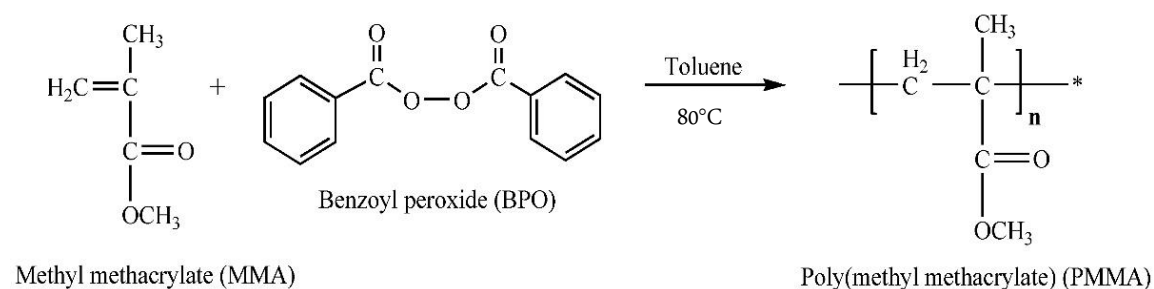
**Figure V.1 :** Spectre infrarouge de l'acide polyacrylique synthétisé

De part les informations que cette technique peut apporter, elle reste une méthode limitée car elle nous renseigne que sur les groupements fonctionnels existants sur le composé en question. Cette technique doit être complétée par d'autres méthodes d'analyse telle que la résonance magnétique nucléaire (RMN).

### V.2.3. Caractérisation des polymères synthétisés par RMN :

#### A. Structure chimique :

La figure V.2 illustre, à titre d'exemple, le spectre RMN 1H pour le polymère PMMA-5. La polymérisation du monomère MMA en PMMA a produit des signaux larges à 1,0 ppm et 2 ppm correspondant aux protons du groupe méthyle (chaîne principale CH<sub>3</sub>) et du groupe méthylène (chaîne principale CH<sub>2</sub>) dans le motif répétitif du polymère, indiquant la transformation du monomère MMA en PMMA-5.



**Figure V.2 :** Synthèse radicalaire du poly(méthacrylate de méthyle) dans le toluène



Le Poly(Méthyle méthacrylate) obtenu a été lavé à l'eau et séché dans des conditions de température ambiante. La conversion du monomère MMA a été de 98,278 % (232,40 g). Le  $M_n$  calculé selon l'équation mentionnée en bas de page du tableau V.1 est de 147 583 g/mole.

**Tableau V.1** : Conditions de réaction et masses moléculaires des polymères préparés par polymérisation radicalaire

Polymère	$[MMA]_0/$ $[BPO]_0$ b	Monomère dans toluène wt.% <sup>c</sup>	Temp (°C)	Temps (hr)	Rendement (g)	Conversion (%) <sup>d</sup>	$M_n$ (calculée) g/mole <sup>e</sup>	Observation
PMMA-1 <sup>a</sup>	500 : 1	Bulk	90	6	3.26	99.93	50 026	Formation de bulles à l'intérieur du PMMA
PMMA-2	500 : 1	80	90	12	6.84	98.47	49 295	Formation de quelques bulles
PMMA-3	500 : 1	60	80	24	7.18	95.48	47 797	Pas de bulles formées
PMMA-4	1000:1	60	80	24	5.45	97.20	97 307	Pas de bulles formées
PMMA-5	1500:1	60	80	24	232.40	98.28	147 583	Pas de bulles formées

<sup>a</sup> Poly(methyl methacrylate);

<sup>b</sup> molar feed ratio:  $[MMA]_0$ , (methyl methacrylate, monomer);  $[BPO]_0$ , (benzoyl peroxide, initiator);

<sup>c</sup> concentration of monomer (MMA) versus solvent (toluene).

<sup>d</sup> was determined considering yields of resulting PMMA.

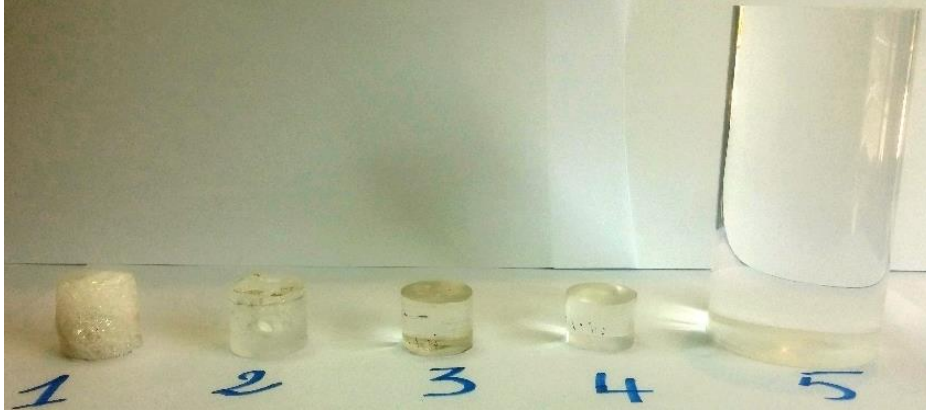
<sup>e</sup> was calculated according to the equation  $M_{n(calcd),PMMA} = [MMA]_0/[BPO]_0 \times M_{w,MMA} \times conversion$ .

$[MMA]_0$  and  $[BPO]_0$  are the initial concentration of MMA and BPO, whereas  $M_{w,MMA}$  is the molecular weight of monomer.

Le tableau V.1 montre les conditions de réaction des polymères préparés par polymérisation radicalaire. Il est à noter que le poids moléculaire moyen ( $M_n$ ) augmente avec l'augmentation du rapport molaire du monomère MMA par rapport à l'initiateur BPO (peroxyde de benzoyle), ce qui indique une caractéristique radicalaire de la polymérisation, un processus contrôlable en faisant varier le rapport molaire du monomère/ l'initiateur ( $[MMA]_0/[BPO]_0$ ).

Les températures de synthèse de ces polymères ont été choisies sur la base de la vitesse de décomposition de l'initiateur (peroxyde benzoyle) afin de générer des

radicaux, la température de dissociation de cet initiateur est située entre 80–95 °C. [88]. Au-dessous de cet intervalle, la solution composée par le monomère et l'initiateur reste molle.

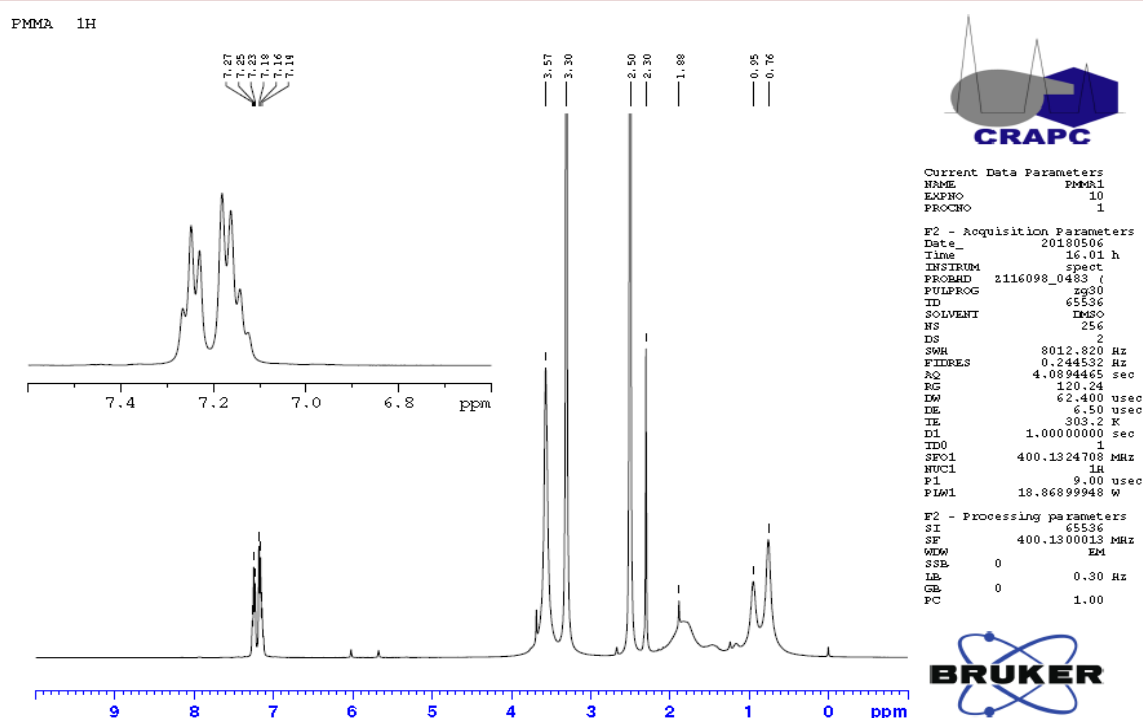


**Figure V.3** : Photos de la PMMA préparée avec différents poids moléculaires.

La figure **V.3** présente les photos des cinq (05) échantillons de PMMA synthétisées correspondant au tableau V.1. Pour les deux premiers échantillons PMMA-1 et PMMA-2, nous pouvons observer des bulles de gaz piégées à l'intérieur du polymère, ces bulles sont formées pendant le processus de polymérisation, tandis que les trois autres échantillons PMMA-3, PMMA-4 et PMMA-5 étaient dépourvus de bulles, ceci est dû, principalement, à l'effet du solvant (le toluène) et de la température de synthèse de 80 °C.

Selon la littérature et sur la base des études expérimentales de simulation de fracturation hydraulique à l'échelle laboratoire rapportées par Ruiting Wu et al [29], la longueur du polymère synthétisé doit être au moins deux fois plus grande que son diamètre. Pour cela, après optimisation des conditions de réaction, nous avons synthétisé un polymère « PMMA-5 » de 10 cm longueur et 5 cm de diamètre.

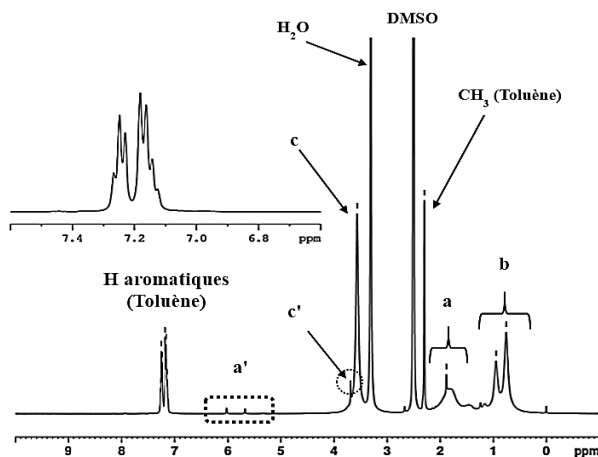
Afin de vérifier que la réaction de synthèse du polymère, nous avons comparé le spectre RMN du PMMA synthétisé avec celui du monomère MMA de la littérature. Nous avons remarqué sur le spectre du polymère la disparition presque totale des signaux à 5,46 et 6,00 ppm (a') qui sont caractéristiques de la double liaison C=C du monomère MMA. De plus, l'apparition de nombreux signaux caractéristiques du PMMA prouve la formation du polymère.



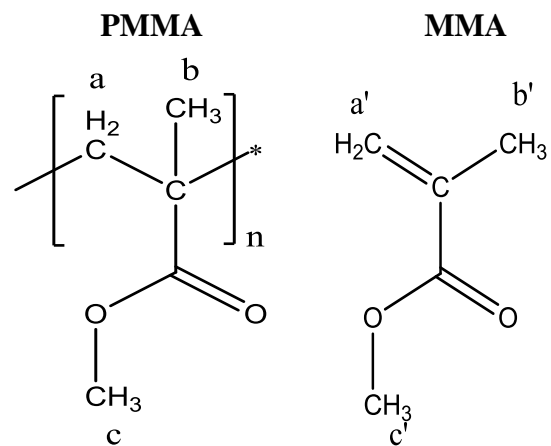
**Figure V.4.** Spectre RMN 1H du poly (méthacrylate de méthyle).

Le spectre RMN du proton du PMMA, illustré sur la figure **V.4** montre la présence de 3 signaux principaux. Le signal à 1,88 ppm (a) correspond aux protons du groupement méthylène ( $-\text{CH}_2-$ ), tandis que le signal à 3,57 ppm (c) est dû aux protons du groupement méthoxyle ( $-\text{OCH}_3$ ) de la fonction ester du PMMA. Les protons du groupement méthyle ( $\alpha\text{-CH}_3$ ) apparaissent en deux pics entre 0,76 et 0,95 ppm (b sur la figure **V.5**), à cause de la stéréochimie (tacticité) du PMMA. Ces résultats sont en parfaite concordance avec les études réalisées par Emsley, White, Koichi, Zaikov, et Mark [89-92].

Dans le spectre RMN, les signaux à 2,30 ppm et à 7,14 - 7,27 ppm correspondent, respectivement, aux protons méthyle ( $-\text{CH}_3$ ) et aux protons aromatiques du toluène résiduel. Sur le spectre apparaît également le signal de  $\text{H}_2\text{O}$  à 3,30 ppm et le signal du solvant DMSO à 2,50 ppm.



**Figure V.5 :** Agrandissement du spectre RMN<sup>1</sup>H du poly (MMA)



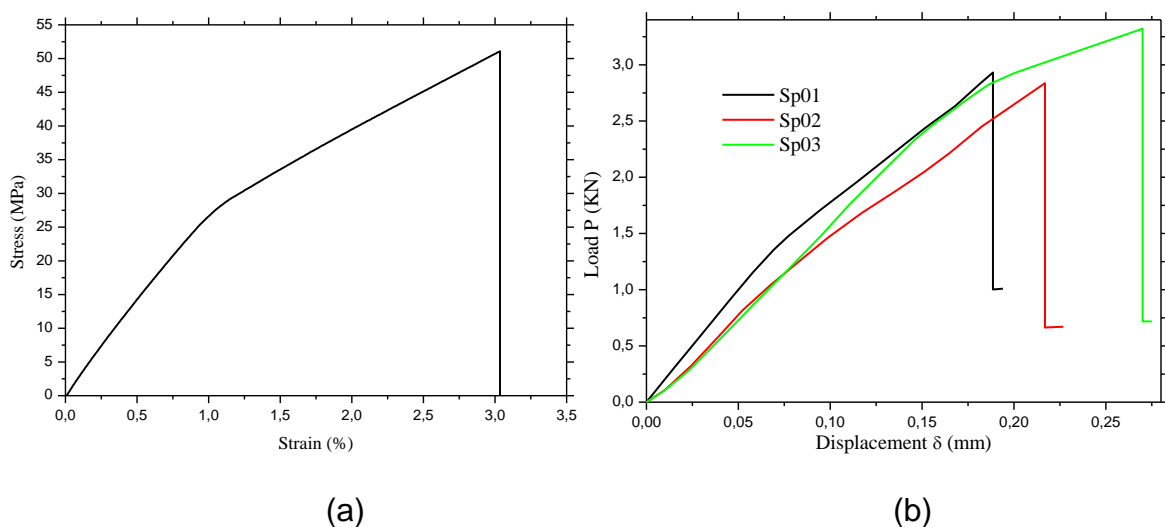
**Figure V.6 :** Formule chimique du monomère et du polymère méthyle méthacrylate

## V.2.4 Caractérisation mécanique :

### A. Propriétés mécaniques :

La figure V.7 montre les courbes de contrainte-déformation et de charge-déplacement du PMMA synthétisé. D'après la réponse du comportement de l'échantillon subissant une chute soudaine de la charge, il est évident que l'échantillon se comporte de manière fragile. C'est en effet une caractéristique qui favorise les expériences de fracturation hydraulique.

Pour rappel, l'objectif de ce chapitre est de synthétiser un matériau transparent (PMMA) afin d'illustrer la technique de fracturation hydraulique en laboratoire ce qui nous permettra de visualiser l'initiation et suivre la propagation des fractures.



**Figure V.7.** Les résultats des essais mécaniques pour un échantillon de PMMA synthétisé. Courbes de contrainte-déformation (a) et de charge-déplacement (b).

La tangente de la partie linéaire de la courbe contrainte-déformation (la déformation est proportionnelle à la contrainte) représente le module de Young du matériau (de la figure **V.7** (a)).

Le facteur d'intensité des contraintes critique ou la tenacité ( $K_{IC}$ ) a été calculé sur la base de l'ASTM E399, équation proposée par Chang et présenté par [93]:

$$K_{IC} = \frac{P_c \sqrt{\pi a}}{DB} f\left(\frac{a}{D}\right) \quad (1)$$

$P_c$  : La charge critique ;

$a$  : La longueur de la fissure ;

$D$  : est le diamètre du disque pour l'échantillon avec  $0.25 \leq a$  et  $D \leq 0.35$  ;

$B$  : est l'épaisseur de l'échantillon ;

$K_{IC}$  : est la résistance à la fracture ;

$f\left(\frac{a}{D}\right)$  C'est le facteur de correction dépend de la géométrie de la structure. Dans notre cas ce facteur est exprimé par :

$$f\left(\frac{a}{D}\right) = 4.47 + 7.40\left(\frac{a}{D}\right) - 106.0\left(\frac{a}{D}\right)^2 + 433.3\left(\frac{a}{D}\right)^3 \quad (2)$$

Les résultats des essais de traction et de résistance à la rupture sont présentés dans le tableau **V.2**. Dans ce tableau, les résultats sont comparés avec certains des échantillons utilisés par d'autres chercheurs pour des expériences de fracturation hydraulique [94-97]. Les résultats montrent une bonne concordance, confirmant que les propriétés mécaniques du PMMA synthétisé sont acceptables pour la réalisation d'essais de fracturation hydraulique au laboratoire.

**Tableau V.2** : Ténacité mécanique et résistance à la fracture du PMMA de synthèse comparées aux résultats de la littérature.

		Module de Young (d'élasticité)	Coefficient de poisson	Résistance à la traction	Ténacité
Symbole		E	$\nu$	$\sigma_t$	$K_{IC}$
Unité		GPa	/	MPa	MPa.m <sup>0.5</sup>
PMMA Synthétisé		<b>2.8</b>	<b>0.35</b>	<b>50.1</b>	<b>1,18</b>
Shale	[38]	24.9	0.217	78.41	/
Références PMMA	[94]	15.0	0.30	/	1.50
	[95]	2.4	0.37	/	1.08
	[96]	2.9	0.35	55	1.40
	[97]	2.9	0.38	70.5	1.96

### V.3. Expériences de fracturation hydraulique :

Dans cette partie, nous présentons les résultats des essais de fracturation hydraulique expérimentale en laboratoire réalisés sur des échantillons cylindriques de PMMA synthétisé afin d'étudier l'effet des paramètres : taille initiale de la fissure (initial crack size), le débit d'injection et la viscosité du fluide sur la propagation de la fracture.

Il est bien connu que la fracture induite se propagera perpendiculairement à la direction de la contrainte minimale [98]. Cependant, à l'échelle réelle, la fracturation hydraulique autour du puits de forage prend son origine dans les fractures naturelles existantes (Sweet spot) ou dans tout autre défaut généré pendant l'opération de forage. Par conséquent, la fracture peut s'amorcer dans n'importe quelle direction, mais finira par se propager perpendiculairement à la contrainte minimale.

À l'échelle du laboratoire dans le cas d'un échantillon de roche réelle ou en particulier pour le matériau PMMA, l'échantillon est très homogène et exempt de défauts visible ou de fractures naturelles. Par conséquent, afin d'amorcer la fracture autour de la paroi très lisse du trou de forage, il est nécessaire de créer une fissure initiale, qui est située au niveau de l'extrémité du trou de forage dans une direction

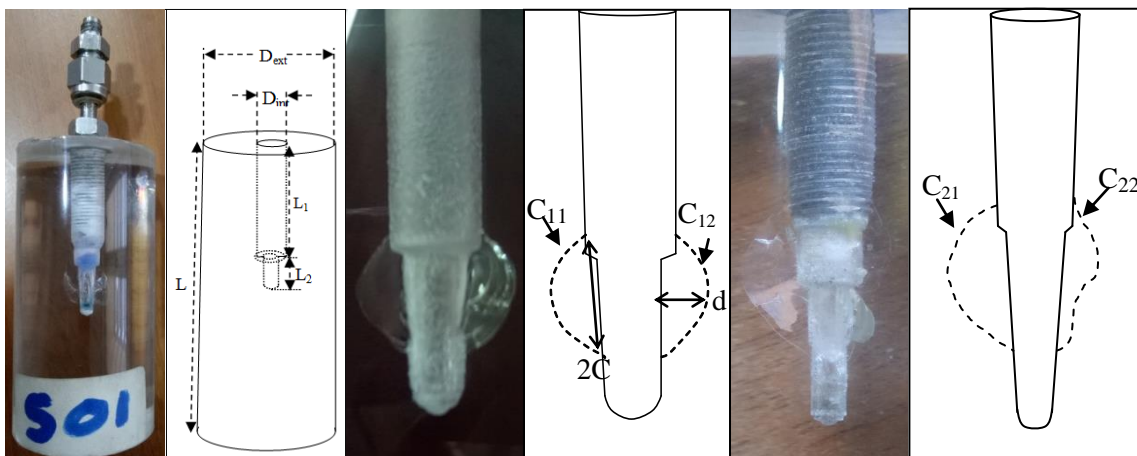
perpendiculaire à la contrainte minimale pour faciliter l'amorce de la fracture dans la direction souhaitée.

La géométrie de la fissure initiale (initial Crack), y compris sa longueur ( $c$ ) et sa profondeur ( $d$ ), aura un impact significatif sur la propagation de la fracture [99]. En laboratoire, la fissure initiale est créée en utilisant un marteau et un outil pointu pour générer une différence dans la taille de la fissure initiale (initial crack size). La figure V.8 présente le schéma de la géométrie de l'échantillon et la taille initiale des fissures créée. Les diamètres  $D_{ext}$  et  $D_{int}$  sont respectivement les diamètres de l'échantillon et du trou de forage. Dans cet exemple  $L_1=45\text{mm}$  et  $L_2 =15\text{mm}$  représentent respectivement la longueur du trou de forage initial et la longueur du trou de forage percé à l'extrémité de ce trou initial pour faciliter la réalisation de la fissure sur les deux côtés du trou. La fissure initiale créée a deux côtés, donc pour chaque échantillon la fissure est définie comme  $C_{ij}$ , où «  $i$  » représente le numéro de l'échantillon et «  $j=1$  » pour la fissure gauche et «  $j=2$  » pour celle de droite, comme le montre la figure V.8. Le tableau V.3 indique les profondeurs et les longueurs des fissures pour chaque échantillon.

**Tableau V.3** : Taille des fissures des trois échantillons utilisés.

	Echantillon (S01)		Echantillon (S02)		Echantillon (S03)	
Crack	$C_{11}$	$C_{12}$	$C_{21}$	$C_{22}$	$C_{31}$	$C_{32}$
<b>d (mm)</b>	6.51	5.94	9.53	6.44	12.95	10.57
<b>c (mm)</b>	10.43	8.81	19.43	19.51	22.52	20.84

d : profondeur de la fissure  
C : demi- longueur de la fissure

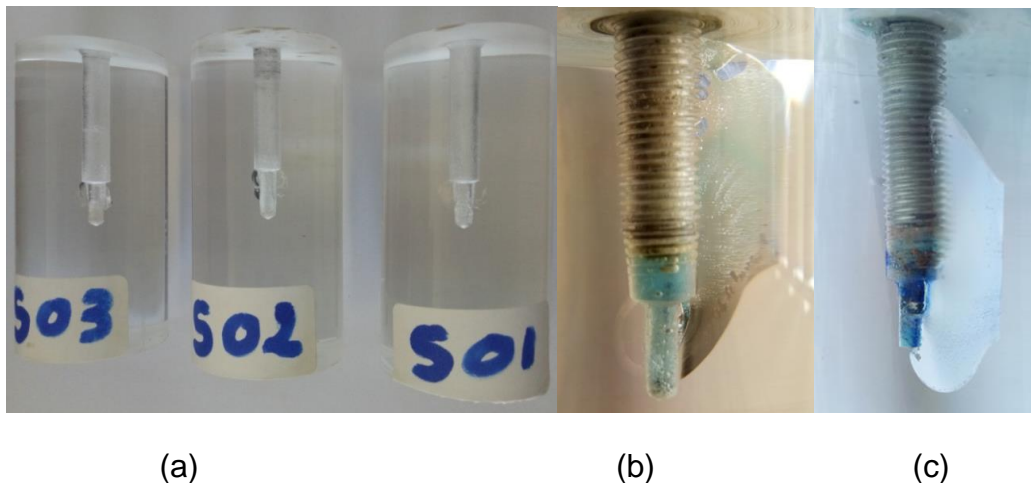


(a) (b) (c)

**Figure V.8** : représente les dimensions de l'échantillon cylindrique de PMMA et (a) Dimension de l'échantillon ; (b) fissure courte ; (c) fissure profonde.

### V.3.1. Analyse de sensibilité des paramètres :

Pour étudier l'effet du débit d'injection sur la propagation des fissures, nous avons utilisé trois échantillons de PMMA (S01 S02 et S03) ayant approximativement la même taille de fissure initiale ( $d_1 \approx d_2 \approx d_3 \approx 6,50$  mm et  $c_1 \approx c_2 \approx c_3 \approx 10$  mm) et avons mené des expériences de fracturation hydraulique sous trois différents débits d'injection constants de  $Q = 0,05, 0,5$  et  $5$  ml/min. La figure V.9 montre la géométrie des fractures propagées (induites) correspondants à deux débits  $Q = 0,05$  et  $5$  mL/min. Le faible débit représente la simulation de la croissance quasi-statique de la fracture (figure V.9 b) tandis que le débit élevé représente la croissance de la fracture dans des conditions dynamiques (figure V.9 c). On remarque sur cette figure qu'un débit plus élevé provoque une fissure plus profonde par rapport au débit plus faible. D'autre part, l'augmentation du débit d'injection du fluide, comme le montre la figure V.10 (b), fait que la fracture s'amorce et s'ouvre à proximité du puits de forage beaucoup plus rapidement et avec moins de pression appliquée au point de rupture.



**Figure V.9** : (a) Les échantillons utilisés, (b) propagation de la fracture à débit de 0,05 ml/min (gauche) et (c) propagation de la fracture à débit de 5 ml/min (droite).

Les courbes de pressions appliquées en fonction du temps en faisant varier respectivement la taille initiale de la fissure, le débit d'injection du fluide ainsi que la viscosité du fluide injecté sont présentées sur la figure V.10.



En général, la pression augmente linéairement avec le temps jusqu'au point de rupture lorsque la fracture commence à se propager près du trou de forage. La pression de rupture est définie comme la pression maximale atteinte, lors de l'injection du fluide dans un trou de forage, jusqu'à ce qu'une rupture soudaine se produise. On suppose qu'elle correspond au début de la propagation de la fracture.

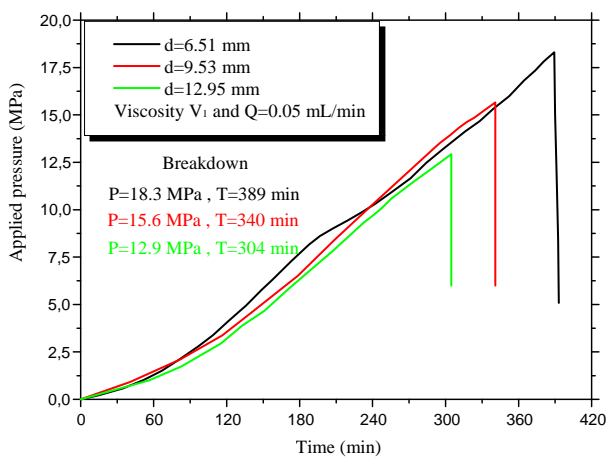
Les résultats indiquent clairement un comportement très fragile (mécaniquement) du matériau après le point de rupture (breakdown pressure) dû à la propriété fragile du matériau PMMA. La figure V.10 (a) montre que plus la taille initiale de la fissure est profonde, plus la pression appliquée nécessaire pour la rupture (applied pressure) est faible. Cela est dû au fait qu'une fissure initiale plus grande facilite l'écoulement du fluide dans la roche avec une plus grande surface de contact. D'un point de vue théorique, le facteur d'intensité de contrainte ( $K_I$ ) varie proportionnellement en fonction de la taille de la fissure initiale, comme noté par Rice et al. [49] :

$$K_I = \sigma \sqrt{\pi d} \quad (3)$$

Ou

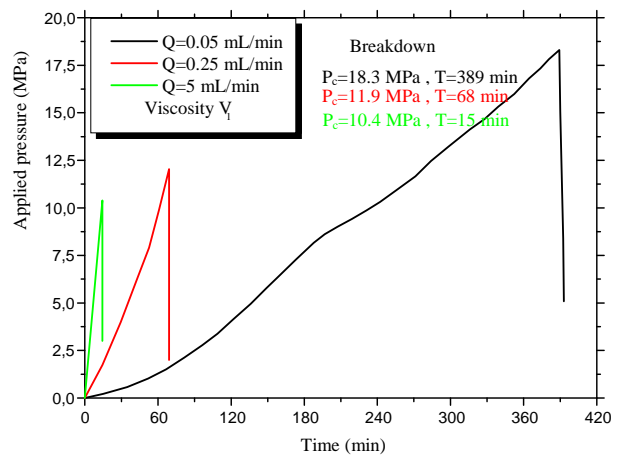
$K_I$  : est le facteur d'intensité de contrainte en mode I, c'est la contrainte appliquée.

$d$  : est la profondeur de la fissure.



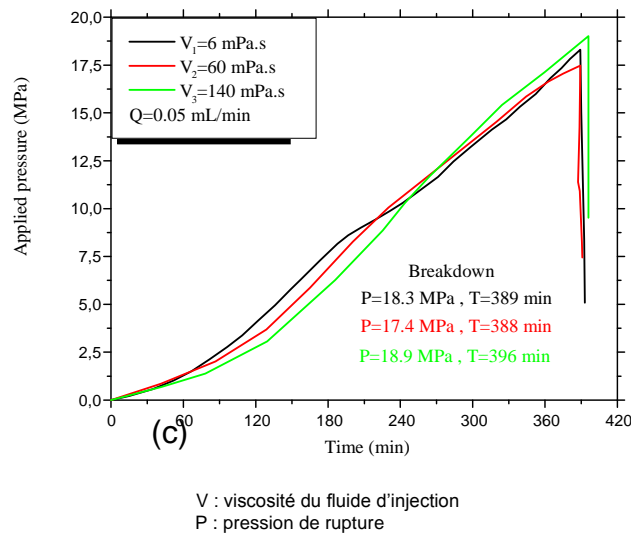
(a)

$d$  : Profondeur de la fissure  
 $P$  : pression de rupture



(b)

$Q$  : débit d'injection  
 $P$  : pression de rupture



**Figure V.10 : Les résultats expérimentaux de la simulation à l'échelle laboratoire.** La pression appliquée en fonction de : effet de la taille de la fissure initial (a), effet du débit d'injection (b) et effet de la viscosité du fluide d'injection (c).

La figure **V.10** (c) montre que le changement de viscosité du fluide injecté n'a pas un impact majeur sur la pression appliquée de fracturation (applied pressure). Cette observation est probablement due d'une part, à la petite taille de l'échantillon de PMMA testé et d'autre part à la nature fragile du matériau PMMA qui a entraîné une propagation très rapide des fissures.

On suppose, aussi, que l'effet de la viscosité sur la pression de rupture ne peut être visible que si le matériau ou la roche possède un nombre suffisant de pores autour du trou de forage, ce qui permettra au fluide de fracturation de pénétrer dans les pores interconnectés de la roche et facilite l'infiltration du fluide et du gradient de pression dans les pores, dans ce cas de figure un fluide de faible viscosité est recommandé afin que ce dernier s'infiltré facilement dans la fracture, par conséquent la pression de rupture sera plus faible qu'avec un fluide de forte viscosité qui nécessite une pression plus élevée [100].

D'autre part, la viscosité a un effet sur la direction de propagation de la fracture. Ce constat a été observé par A. Takada et al qui ont considéré que la direction de la propagation de la fissure est régie par la différence de densité entre le liquide injecté et le matériau utilisé (gélatine dans leur cas d'étude) [101].

**Tableau V.4** : Résultats expérimentaux des pressions de rupture.

Echantillon			Débit d'injection $Q_i$ (mL/min)			Viscosité du fluide $V_i$ ( mPa.s)		
<b>S01</b>	<b>S02</b>	<b>S03</b>	<b>S01</b>			<b>S01</b>		
$Q_1=0.05$			$Q_1=0.05$	$Q_2=0.5$	$Q_3=5$	$Q_1=0.05$		
$V_1=6.21$			$V_1=6.21$			$V_1=6.21$	$V_2=59.79$	$V_3=140.33$
Critical pressure (MPa)								
18.40	15.68	12.45	18.40	12.04	10.38	18.40	17.48	19.15

$V_i$  : viscosité du fluide.

$Q_i$  : débit d'injection.

#### V.4. Modélisation analytique :

Le tableau **ci-dessous** représente les résultats des différentes pressions de rupture (pression critique) calculés à l'aide de méthodes analytiques en variant uniquement la profondeur de la fissure (depth). Pour rappel la pression critique de rupture peut être exprimée comme suit :

$$P_c(d) = \frac{\sqrt{\pi} K_{IC}}{2\sqrt{R} \left[ \frac{1 - 0.5\left(\frac{d}{R}\right) + 0.148\left(\frac{d}{R}\right)^3}{\sqrt{1 - \frac{d}{R}}} \right]} \sqrt{\frac{R}{d}}$$

Nous avons supposé que la propagation de la fracture s'amorce quand le facteur d'intensité de contrainte  $K_I$  dépasse une certaine valeur critique  $K_{IC}$  appelée ténacité qui dépend du matériau et de l'environnement.

**Tableau V.5** : Résultats Analytiques des pressions de rupture (pression critique)

Echantillon	Dimensions Fissure initiale	Pression critique (MPa)		
	d (mm) profondeur de la fissure	Analytique (Eq.6)	Expérimentale (Q1=0.05 mL/min, v1=6.21 mPa.s.)	Erreur (%)
<b>S01</b>	6.51	<b>15.16</b>	<b>18.40</b>	17.61
<b>S02</b>	9.53	<b>12.22</b>	<b>15.68</b>	22.07
<b>S03</b>	12.95	<b>9.94</b>	<b>12.45</b>	20.16

A la lumière des résultats présentés dans le tableau V.5, on remarque que la pression de rupture est inversement proportionnelle à la variation de la profondeur de la fissure. Au fur et à mesure que la profondeur de la fissure augmente, pression nécessaire de rupture diminue.

Cette variation peut être liée à la grande surface de contact qu'offre une grande profondeur de la fissure initiale.

### V.5. Simulation numérique :

D'après les résultats obtenus en utilisant l'outil de simulation ANSYS, il a été constaté, aussi, que la pression de propagation diminue avec l'augmentation des dimensions de la fissure (profondeur et demi-longueur de la fissure), les résultats de la pression mesurés sont proches à ceux des résultats expérimentaux. Car l'écart est inférieur à 10 %.

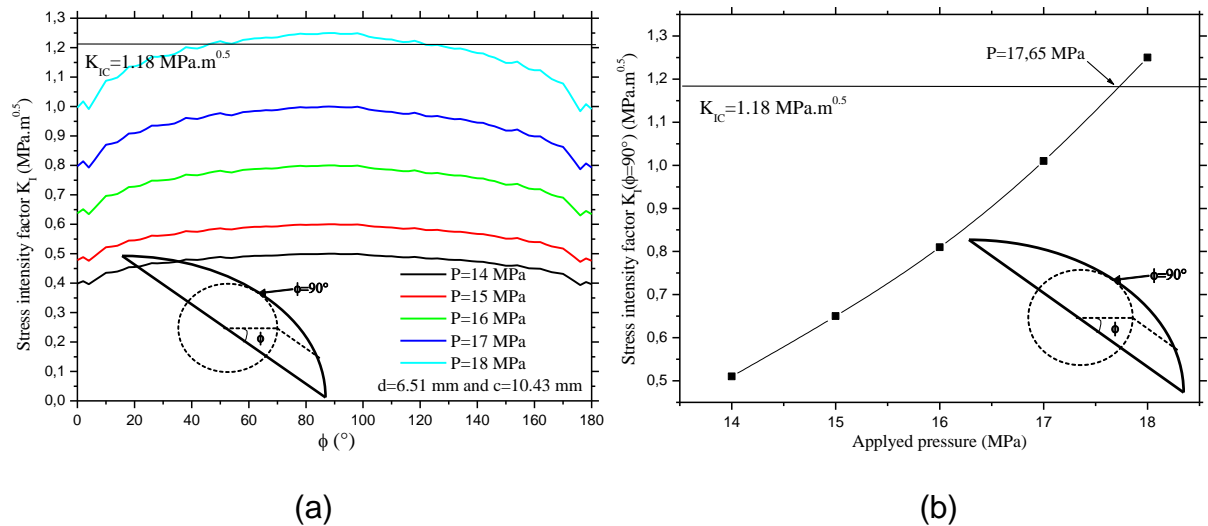
Les résultats sont portés dans le tableau V.6

**Tableau V.6 :** Résultats des pressions de rupture (pression critique) calculés par simulation numérique.

Echantillon	Dimensions Fissure initiale		Pression critique (MPa)		
	d (mm) profondeur de la fissure	c (mm) demi- longueur de la fissure	Numérique (FEM)	Résultats expérimentaux (Q1=0.05 mL/min, v1=6.21 mPa.s.)	Erreur (%)
SP <sub>01</sub>	6.51	10.43	<b>17.65</b>	<b>18.40</b>	4.08
SP <sub>02</sub>	9.53	19.43	<b>14.23</b>	<b>15.68</b>	9.25
SP <sub>03</sub>	12.95	22.52	<b>11.57</b>	<b>12.45</b>	7,09

La figure V.11 (a) représente un exemple de distribution du facteur d'intensité des contraintes pour une fissure semi-elliptique de profondeur  $d=6,51$  mm et  $c=10,43$  mm. Le facteur d'intensité de contrainte maximale pour une pression critique a été localisé à un angle de propagation de la fissure de position  $\phi=90^\circ$ . Pour une pression appliquée de 18 MPa, le facteur d'intensité de contrainte maximale ( $K_I$ ) a été dépassé par la ténacité à la rupture ( $K_{Ic}$ ).

Le facteur d'intensité de contrainte maximale en fonction de la pression appliquée est présenté dans la figure V.11 b. La pression critique ( $P_c$ ) a été estimée par la projection de l'intersection entre la courbe de variation de facteur d'intensité des contraintes maximal  $K_I$  à ( $90^\circ$ ) et la ténacité à la rupture ( $K_{Ic}$ ). La pression critique est d'environ  $P_c=17,65$  MPa.



**Figure V.11 :** Distribution du facteur d'intensité de contrainte( $K_I$ ) pour  $p=14$  à  $18$  MPa de l'échantillon  $SP_{01}$  ( $d=6,51$  mm et  $c=10,43$  mm) (a) distribution de  $K_I$  au niveau du front de fissure (b) distribution de  $K_{I\phi=90^\circ}$  en fonction de pression appliquée.

Les résultats des différentes pressions de rupture calculés à l'aide des méthodes analytique et numériques sont confrontés à ceux des résultats expérimentaux réalisés au laboratoire pour les trois échantillons  $S01$ ,  $S02$  et  $S03$  présentant des fissures de tailles différentes (voir tableaux **V.5** et **V.6**). A la lumière de ces résultats, nous avons remarqué que les résultats obtenus par simulation numérique sont proches de ceux des résultats expérimentaux, car elle prend en considération la forme de la fissure semi-elliptique (demi-longueur et profondeur). Contrairement à la méthode analytique (Eq.6) qui ne prend en compte que la profondeur de la fissure.

## V.6. Conclusion :

Ce travail présente les essais analytiques, numériques et expérimentaux de fracturations hydrauliques réalisées au laboratoire en utilisant un matériau de synthèse de polyméthacrylate de méthyle (PMMA). Ce polymère transparent a été synthétisé avec succès et utilisé pour réaliser des expériences de fracturation hydraulique en laboratoire tout en observant l'évolution de la fracture durant l'essai.

Les essais mécaniques du PMMA, y compris les essais de traction et les essais de flexion à trois points, nous ont permis d'obtenir respectivement les propriétés mécaniques et la ténacité du matériau. Les résultats montrent que ces dernières présentent des similitudes à celles du schiste afin d'être utilisé dans le test de fracturation hydraulique en laboratoire.

Des essais de fracturation hydraulique ont été effectués sur un certain nombre d'échantillons cylindriques de PMMA afin d'étudier l'effet de la viscosité du fluide, le débit d'injection ainsi que la taille initiale de la fissure sur la pression de rupture et les caractéristiques de la propagation de la fracture. La possibilité d'observer directement la géométrie de la fracture tout au long de l'expérience nous a permis d'établir une bonne correspondance entre la courbe pression-temps et l'évolution de la géométrie de la fracture. Une modélisation numérique en utilisant l'outil ANSYS [50] a été réalisée pour exécuter de multiples simulations et faire une analyse de la sensibilité des pressions critiques afin de les comparer à ceux des résultats expérimentaux de laboratoire. Les résultats ont également été comparés avec ceux de la solution analytique.

A la lumière des résultats obtenus, il a été observé que le débit et la taille des fissures ont plus d'impact que la viscosité sur la pression de rupture. Un accord raisonnable a été obtenu en comparant les résultats des modèles analytiques et numériques à ceux des données expérimentales. Les résultats de cette étude suggèrent que pour réaliser une opération de fracturation hydraulique optimale, le débit et la taille initiale des fissures doivent être conçus avec soin de façon à assurer une opération de fracturation rentable économiquement et sûr point de vue écologique.

### **Conclusion Générale :**

L'emploi de la fracturation hydraulique pour l'exploitation des ressources non conventionnelles, soulève de nombreuses interrogations relatives aux impacts environnementaux, sociaux et économiques, notamment celles concernant les risques potentiels sur la santé, les besoins en eau et la vulnérabilité de cette ressource souterraine et de surface.

Les recherches scientifiques devraient être orientées vers l'identification des impacts, spécifiques dans chaque site, qui peuvent être engendrés par l'utilisation de la fracturation hydraulique et démontrer quels sont les risques potentiels de pollution, voire même proposer d'autres techniques alternatives ou améliorer celles existantes.

Ce travail de thèse s'articule autour de quatre parties :

1. L'étude des mécanismes d'adsorption des produits chimiques utilisés dans les fluides de fracturation pour une évaluation de l'impact de ces produits,
2. L'étude du comportement rhéologique du mélange eau - agent gélifiant en traitant la modélisation de ce mélange et l'optimisation de la concentration du gélifiant pour l'amélioration de la capacité de transport du proppant dans les fractures créées,
3. La réalisation d'expériences de fracturation hydraulique sur du PMMA, en variant différents paramètres, notamment la taille de la fissure initiale, le débit d'injection et la viscosité du fluide,
4. Une modélisation analytique ainsi qu'une analyse par la méthode des éléments finis seront réalisées en utilisant le Logiciel « Ansys » pour la validation des résultats et la comparaison avec les résultats expérimentaux.

Les résultats de l'analyse minéralogique par DRX et chimique par FX de la roche mère et des effluents de la fracturation révèlent la présence des métaux lourds dans le fluide de retour (flowback), et par conséquent, la nécessité d'un traitement poussé de ces fluides.

Les résultats ont montré que le sp breaker s'adsorbe sur le sable. Ce phénomène peut réduire considérablement la perméabilité de la roche mère. Il est donc recommandé de modifier la surface des sables en sélectionnant des additifs appropriés et en les enrobant avec une résine thermodurcissable pour éviter ce

phénomène. Aussi, nous avons constaté que la température a un effet considérable sur l'adsorption du sp breaker (tensioactif) sur le sable. En effet, pour une variation de température de 0 à 85 °C le rendement d'adsorption a augmenté de 45%.

Les résultats ont montré que la capacité d'adsorption du sp breaker augmente avec le temps et atteint une valeur asymptotique à partir de 60 min. Le temps d'équilibre était d'environ 60 min mais les expériences d'adsorption ont quand même été effectuées pendant 90 min à des fins de comparaison avec la littérature.

D'autre part, les deux produits chimiques à savoir le sp breaker et xanthane sélectionnés pour les études d'interaction ont été choisis dans l'objectif de viser les polymères et les tensioactifs les plus utilisés en grande quantité dans les fluides de fracturation et souvent les plus chers. Pour cela, une matrice modèle a été sélectionnée sur la base de la composition de la roche. Les interactions de ces deux produits ont été étudiées avec chaque matrice modèle sélectionnée séparément et nous a permis de constater que :

- La bentonite a un pouvoir très adsorbant du xanthane par rapport aux autres minéraux contenus dans la roche mère. La quantité adsorbée avoisine les 29.4 mg/g soit (98%) de la quantité injectée ;
- Les trois matrices modèles ont le même pouvoir adsorbant du SP Breaker, une quantité proche de 5 mg/g soit (96 %) de la quantité initiale injectée a été recensée ;

Selon notre étude et les résultats des tests d'adsorption obtenus, la bentonite s'avère être un très bon adsorbant pour le traitement des eaux de retour pour l'élimination du xanthane et du sp breaker, dont les quantités ne sont pas négligeables dans les fluides de retour et qui posent un problème environnemental assez important.

Les résultats de biodégradabilité des produits utilisés ont montré que :

- Le xanthane est un produit biodégradable car c'est un biopolymère de fermentation utilisant le xanthomonas Campestris, une espèce de protéobactéries de la famille des xanthomonadaceae.
- Le sp breaker est un produit non biodégradable, nécessitant d'autres méthodes de traitement autres que les procédés biologiques.



La formulation du fluide ayant une concentration optimale en polymère gélifiant a été utilisée en tant que fluide de fracturation. Nous rappelons qu'il faut avoir un compromis en terme de viscosité du fluide :

- Le moins visqueux possible afin de minimiser le travail des pompes d'injection et la consommation d'énergie durant toute l'opération de fracturation,
- Le plus visqueux possible pour mettre en suspension et transporter l'agent de soutènement (Proppant) vers la fracture.

A travers les résultats obtenus, nous pouvons conclure qu'une concentration optimale du polymère doit être respectée pour obtenir un mélange capable, d'une part, de créer une pression à l'intérieur du puits afin d'éviter les fuites et d'autre part assurer le transport du proppant à l'intérieur des fractures créées. La viscosité du polymère utilisé comme agent gélifiant (xanthane) a tendance à croître (forte viscosité) quand il est soumis à de faibles contraintes de cisaillement et à se fluidifier (faible viscosité) quand il est soumis aux fortes contraintes de cisaillement. Ce comportement facilite la récupération du fluide de retour à la fin des opérations de fracturation (flow-back).

L'étude menée sur le vieillissement a montré que le polymère conserve un comportement non newtonien (pseudo-plastique) et que la contrainte de cisaillement augmente pour les échantillons conservés pendant 24 heures ce qui nécessite éventuellement plus d'énergie de pompage pour pouvoir injecter le mélange dans le gisement.

Enfin, la modélisation rhéologique a montré que le mélange se comporte comme un fluide rhéofluidifiant avec l'existence d'une contrainte seuil (critique) d'écoulement. Lorsque la contrainte de cisaillement appliquée est supérieure à cette valeur critique, un écoulement est observé qui peut être décrit par le modèle Hershel-Bulkley

Au fait, plusieurs caractéristiques gouvernent le succès d'une opération de fracturation hydraulique et il est difficile de maîtriser tous les facteurs mis en jeu. Parmi les facteurs les plus importants ; les propriétés de la roche et les caractéristiques du fluide de fracturation, influencent énormément la réussite de la fracturation hydraulique. L'étude avait pour objectif la simulation de la roche par un matériau synthétique transparent de Polyméthacrylate de Méthyle (PMMA) pour pouvoir visualiser l'initiation et suivre la propagation des fractures en fonction de la

viscosité du fluide, de la fissure initiale et du débit d'injection Le PMMA est un polymère transparent synthétisé et utilisé pour réaliser des expériences de fracturation hydraulique en laboratoire. Une solution de xanthane a été utilisée comme modèle du fluide de fracturation. Le travail de modélisation numérique a été réalisé afin d'analyser la sensibilité et comparer les résultats obtenus avec les résultats analytiques.

Les essais mécaniques du PMMA, y compris les essais de traction et les essais de flexion trois points, nous ont permis d'obtenir les propriétés mécaniques et la ténacité du matériau. Les résultats montrent que le PMMA synthétisé est un matériau similaire au schiste qui peut être utilisé dans le test de fracturation hydraulique en laboratoire.

Des essais de fracturation hydraulique ont été effectués sur un certain nombre d'échantillons cylindriques de PMMA afin d'étudier la possibilité d'observer directement la géométrie de la fracture tout au long de l'expérience, ce qui nous a permis d'établir une bonne correspondance entre la courbe pression-temps et l'évolution de la géométrie de la fracture. Une modélisation numérique utilisant l'outil ANSYS a été réalisée pour exécuter de multiples simulations et faire une analyse de sensibilité de la pression de rupture. Les résultats ont également été comparés avec certaines solutions analytiques.

Les résultats obtenus montrent que le débit et la taille des fissures ont plus d'impact que la viscosité sur la pression de rupture. Les résultats des modèles analytiques et numériques ont été comparés aux données expérimentales et un accord raisonnable a été obtenu. Les résultats de cette étude suggèrent que la taille initiale de la fissure et le débit d'injection sont des paramètres qui doivent être optimisés pour assurer une opération de fracturation rentable.

## Références bibliographiques

- [1] Liu, Jiawen., Wang, Shibin., Wang, Chuan., et al. Influence of nanomaterial morphology of guar-gum fracturing fluid, physical and mechanical properties. *Carbohydrate Polymers*, 2020, vol. 234, p. 115915.  
<https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2020.115915>
- [2] Waxman, H.A., Markey, E.J., Degette, D. Produits chimique utilisées pour la fracturation. United states house of representatives committee on energy and commerce minority staff, april 2011
- [3] Curtis, John B. Fractured shale-gas systems. *AAPG bulletin*, 2002, vol. 86, no 11, p. 1921-1938.
- [4] Montgomery, Carl T., Smith, Michael B., et al. Hydraulic fracturing: history of an enduring technology. *Journal of Petroleum Technology*, 2010, vol. 62, no 12, p. 26-40.
- [5] Frash, Luke P. Laboratory-scale study of hydraulic fracturing in heterogeneous media for enhanced geothermal systems and general well stimulation. 2014. Thèse de doctorat. Colorado School of Mines. Arthur Lakes Library.
- [6] Gandossi, Luca et Von Estorff, Ulrik. An overview of hydraulic fracturing and other formation stimulation technologies for shale gas production. Publications office of the European Union; 2013.
- [7] Coup d'œil sur les produits de base -Édition spéciale sur le gaz de schiste. Conférence des nations unies sur le commerce et le développement. Édition N°9, 2018.
- [8] LENOIR, Jean-Claude et BATAILLE, Christian. Les techniques alternatives à la fracturation hydraulique pour l'exploration et l'exploitation des hydrocarbures non conventionnels. Rapport fait au nom de l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques n° 174, 2013.
- [9] Geoffron, Patrice et MÉRITET, Sophie. Effets internes et externes du développement des hydrocarbures non conventionnels aux États-Unis: bilan d'étape et perspectives. *Revue d'économie industrielle*, 2014, no 148, p. 105-131.
- [10] Brunner, Todd et Axsen, Jonn. Oil sands, pipelines and fracking: Citizen acceptance of unconventional fossil fuel development and infrastructure in Canada.

Energy Research & Social Science, 2020, vol. 67, p. 101511.

<https://doi.org/10.1016/j.erss.2020.101511>

[11] Rivard, Christine, Lavoie, Denis, Lefebvre, René, et al. An overview of Canadian shale gas production and environmental concerns. *International Journal of Coal Geology*, 2014, vol. 126, p. 64-76. <https://doi.org/10.1016/j.coal.2013.12.004>

[12] Meroufel-Zenasni, Bahia. Adsorption des polluants organiques et inorganiques sur des substances naturelles: Kaolin, racines de *Calotropis procera* et noyaux de dattes. 2015. Thèse de doctorat. Université de Lorraine.

[13] DELLACHE, Karima, BOUDJEDJOU, Madjida, et KAZANE, Imen. Utilisation des argiles dans la l'élimination des métaux lourds (Plomb). 2019. Thèse de doctorat. Université de Jijel.

[14] Usman, Adel Rabie Ahmed. The relative adsorption selectivities of Pb, Cu, Zn, Cd and Ni by soils developed on shale in New Valley, Egypt. *Geoderma*, 2008, vol. 144, no 1-2, p. 334-343.

[15] Mimanne, G., Benhabib, K., Benghalem, A., et al. Etude de l'adsorption des métaux lourds (pb et cd) en solution aqueuse sur charbon actif et montmorillonite sodée de l'ouest algérien (Study of the adsorption of heavy metals (pb and cd) in aqueous solution on activated carbon and sodium montmorillonite from western Algeria). *J. Mater. Environ. Sci*, 2014, vol. 5, n° 4, p. 1298-1307.

[16] Didier, Christophe. Gestion des risques environnementaux liés à l'exploitation des hydrocarbures de roche-mère. In : Séminaire" Hydrocarbures non conventionnels: contexte, enjeux, technologies et risques potentiels". 2012.

[17] La norme ISO 13503-2 Partie 2: Mesurage des propriétés des matériaux de soutènement utilisés dans les opérations de fracturation hydraulique et de remplissage de gravier.

[18] Caruso, Frank. Hollow capsule processing through colloidal templating and self-assembly. *Chemistry—a European journal*, 2000, vol. 6, no 3, p. 413-419.

[19] Chang, Frank F., Berger, Paul D., Lee, Christie H., et al. In-situ formation of proppant and highly permeable blocks for hydraulic fracturing. In: SPE Hydraulic fracturing technology conference. Society of Petroleum Engineers. 2015.

<https://doi.org/10.2118/SPE-173328-MS>

[20] Jennings Jr, Alfred R et Stowe, Lawrence R. Hydraulic fracturing utilizing a refractory proppant. U.S. Patent No 4,892,147, 9 janv. 1990.

- [21] Nguyen, Philip D., Weaver, Jimmie D., Parker, Mark A., et al. Proppant flowback control additives. In: SPE Annual technical conference and exhibition. Society of petroleum engineers, 1996.
- [22] Montgomery, Carl, et al. Fracturing fluids. In: ISRM International Conference for Effective and Sustainable Hydraulic Fracturing. International society for rock mechanics and rock engineering, 2013.
- [23] Sinal, Mary Lou, Lancaster, Greg, et al. Liquid CO fracturing: advantages and limitations. *Journal of Canadian petroleum technology*, 1987, vol. 26, no 05.
- [24] Lozano, Tania M., Mccutchan, Aubrey Lynn, et Krzmarzick, Mark James. Hydraulic fracturing fluid compositions induce differential enrichment of soil bacterial communities. *Environmental Engineering Science*, 2019, vol. 36, no 4, p. 385-395.
- [25] Rahman, M. M. et Rahman, M. K. A review of hydraulic fracture models and development of an improved pseudo-3D model for stimulating tight oil/gas sand. *Energy sources, part a: recovery, utilization, and environmental effects*, 2010, vol. 32, no 15, p. 1416-1436.
- [26] Nguyen, Van-Linh. Modélisation numérique du comportement hydromécanique des milieux poreux fracturés: analyse des conditions de propagation des fractures. 2015. Thèse de doctorat. Paris Est.
- [27] Mohamed Elamin Abdalla Elamin. Numerical modeling of hydraulic fracturing in shale oil formation. IRC, September 2014. University Technology Petronas. Tronoh, Perak.
- [28] Frash, Luke P. Laboratory-scale study of hydraulic fracturing in heterogeneous media for enhanced geothermal systems and general well stimulation. 2014. Thèse de doctorat. Colorado School of Mines.
- [29] Wu, Ruiting, Germanovich, Leonid N., Van Dyke, Peter E., et al. Thermal technique for controlling hydraulic fractures. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 2007, vol. 112, no B5. <https://doi.org/10.1029/2005JB003815>.
- [30] Guruprasad, B., Ragupathy, A., Badrinarayanan, T. S., et al. Estimation of fracture length as a mechanical property in hydrofracturing technique using an experimental setup. *International Journal of Engineering and Technology*, 2012, vol. 2, no 12.
- [31] Wang, Hanyi. Numerical investigation of fracture spacing and sequencing effects on multiple hydraulic fracture interference and coalescence in brittle and ductile

reservoir rocks. *Engineering Fracture Mechanics*, 2016, vol. 157, p. 107-124.

<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2016.02.025>.

[32] Vahab, M. et Khalili, N. Numerical investigation of the flow regimes through hydraulic fractures using the X-FEM technique. *Engineering Fracture Mechanics*, 2017, vol. 169, p. 146-162. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2016.11.017>.

[33] Yao, Yao, Wang, Wenhua, et Keer, Leon M. An energy based analytical method to predict the influence of natural fractures on hydraulic fracture propagation. *Engineering Fracture Mechanics*, 2018, vol. 189, p. 232-245. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2017.11.020>.

[34] Dontsov, E. V. An approximate solution for a plane strain hydraulic fracture that accounts for fracture toughness, fluid viscosity, and leak-off. *International Journal of Fracture*, 2017, vol. 205, no 2, p. 221-237. <https://doi.org/10.1007/s10704-017-0192-4>.

[35] Guo, Jianchun, Luo, Bo, Lu, Cong, et al. Numerical investigation of hydraulic fracture propagation in a layered reservoir using the cohesive zone method. *Engineering Fracture Mechanics*, 2017, vol. 186, p. 195-207. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2017.10.013>.

[36] Jiang, Guosheng et Cheng, Wan. Hydraulic fracture deflection at bedding plane due to the non-orthogonal propagation and the dissimilar material properties. *Arabian Journal for Science and Engineering*, 2018, vol. 43, no 11, p. 6535-6540. <https://doi.org/10.1007/s13369-018-3291-2>.

[37] Dong, Zhuo, Tang, Shibin, Ranjith, Pathegama Gamage, et al. A theoretical model for hydraulic fracturing through a single radial perforation emanating from a borehole. *Engineering Fracture Mechanics*, 2018, vol. 196, p. 28-42. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2018.04.029>.

[38] Guo, Yintong, YANG, Chunhe, Wang, Lei, et al. Study on the Influence of Bedding Density on Hydraulic Fracturing in Shale. *Arabian Journal for Science and Engineering*, 2018, vol. 43, no 11, p. 6493-6508. <https://doi.org/10.1007/s13369-018-3263-6>.

[39] Xing, Pengju. Hydraulic fracture containment in layered reservoirs. 2018. Thèse de doctorat. University of Pittsburgh.

[40] Wanniarachchi, W. A. M., Ranjith, P. G., Perera, M. S. A., et al. Investigation of effects of fracturing fluid on hydraulic fracturing and fracture permeability of reservoir rocks: An experimental study using water and foam fracturing. *Engineering Fracture*

Mechanics, 2018, vol. 194, p. 117-135.

<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2018.03.009>.

[41] Fu, Wei, Savitski, Alexei A., et Bungler, Andrew P. Analytical criterion predicting the impact of natural fracture strength, height and cemented portion on hydraulic fracture growth. *Engineering Fracture Mechanics*, 2018, vol. 204, p. 497-516.

<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2018.10.002>.

[42] Heider, Yousef, Reiche, Sönke, Siebert, Philipp, et al. Modeling of hydraulic fracturing using a porous-media phase-field approach with reference to experimental data. *Engineering Fracture Mechanics*, 2018, vol. 202, p. 116-134.

[43] Liu, Zhiyuan, Lu, Qianli, Sun, Yuan, et al. Investigation of the influence of natural cavities on hydraulic fracturing using phase field method. *Arabian Journal for Science and Engineering*, 2019, vol. 44, no 12, p. 10481-10501.

[44] Yang, Steven, Bahk, Davin, Kim, Jiho, et al. Hydraulic fracture geometry in ultrasoft polymer networks. *International Journal of Fracture*, 2019, vol. 219, no 1, p. 89-99. <https://doi.org/10.1007/s10704-019-00380-y>.

[45] Xie, Jun, Tang, Jizhou, Yong, Rui, et al. A 3-D Hydraulic Fracture Propagation Model Applied for Shale Gas Reservoirs with Multiple Bedding Planes. *Engineering Fracture Mechanics*, 2020, vol. 228, p. 106872.

<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2020.106872>.

[46] Gan, Q., Elsworth, D., Alpern, J. S., et al. Breakdown pressures due to infiltration and exclusion in finite length boreholes. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2015, vol. 127, p. 329-337.

[47] Rigal, Claire. Comportement de fluides complexes sous écoulement: Approche expérimentale par résonance magnétique nucléaire et techniques optiques et simulations numériques. 2012. Thèse de doctorat. Université de Lorraine.

[48] ASTM E399, Standard Test Methods for Plane-Strain Fracture Toughness of Metallic Materials, Annual Book of ASTM Standards, Vol. 03.01.

[49] Rice, James R., et al. Mathematical analysis in the mechanics of fracture. *Fracture: an advanced treatise*, 1968, vol. 2, p. 191-311.

[50] ANSYS software.

[51] Girard, Pierre-Luc. Étude par éléments finis du comportement thermo-chimio-mécanique de la pâte monolithique. 2014. Thèse de doctorat. Université du Québec à Chicoutimi.

- [52] Lary, L., Fabriol, H., Azaroual, M., et al. Management of impacts and risks related to the exploitation of source rock hydrocarbons: stakes, locks, and research opportunities. Final report. September 2011.
- [53] Lloyd-Smith, Mariann, and Rye Senjen. Hydraulic fracturing in coal seam gas mining: the risks to our health, communities, environment and climate. Vol. 37. Bangalow, NSW: National Toxics Network, 2011.
- [54] Li, Hang et Wang, John Yilin. Optimization of breaker schedules for stimulation of tight gas reservoirs. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2014, vol. 16, p. 31-43.
- [55] Kalaydjian, François et Goffé, Bruno. Programme de recherche sur l'exploitation des hydrocarbures de roches meres. Rapport Université Joseph Fourier Grenoble I. Juillet 2012.
- [56] Luo, Xiangrong, Wang, Shuzhong, Wang, Zhiguo, et al. Experimental investigation on rheological properties and friction performance of thickened CO<sub>2</sub> fracturing fluid. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2015, vol. 133, p. 410-420.
- [57] Raysoni, Neelam, Sarda, Anjali, et al. Evaluating flowback proppants for proppant diagenesis in shale. In: *SPE European Formation Damage Conference & Exhibition*. Society of Petroleum Engineers, 2013.
- [58] Vially, R. Les techniques de production des pétroles et gaz de schiste <http://www.ifpenergiesnouvelles.fr/espace-decouverte/les-cles-pour-comprendre/les-sources-d-energie/les-hydrocarbures-non-conventionnels/les-techniques-de-production-des-petroles-et-gaz-de-schiste> (accessed Aug 20, 2016).
- [59] Gandossi, Luca Et Von Estorff, Ulrik ; An overview of hydraulic fracturing and other formation stimulation technologies for shale gas production –Update 2015; EUR 26347; doi: 10.2790/379646.
- [60] Lucas, Jacques. La transformation des minéraux argileux dans la sédimentation. *Etudes sur les argiles du Trias*. Persée-Portail des revues scientifiques en SHS, 1962.
- [61] Saoiabi, Ahmed, Doukkali, Anass, Hamad, Mohamed, et al. Schistes bitumineux de Timahdit (Maroc): composition et propriétés physicochimiques. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences-Series IIC-Chemistry*, 2001, vol. 4, no 5, p. 351-360.
- [62] Fauck, Roger. Les sols rouges sur sables et sur grès d'Afrique occidentale. IRD Editions, 1972.



- [63] Teghidet, Hassiba. Etude de la cristallisation contrôlée de la calcite par voie électrochimique. Effet des ions étrangers au système calcocarbonique sur la nucléation-croissance de la calcite. 2012. Thèse de doctorat. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.
- [64] Hernot, François. L'argile, son utilisation à l'officine. Thèse de doctorat. Université d'Angers, 2016.
- [65] Chouchane T., Chouchane S., and Boukari A. (2013) « Elimination du manganèse en solution par le kaolin » Revue des Energies Renouvelables Vol. 16 N°2, 313 – 335.
- [66] Maubec N. Approche multi-échelle du traitement des sols à la chaux. Etudes des interactions avec les argiles. 2010. Thèse de Doctorat, Université de Nantes.
- [67] Khodja, Mohamed. Les fluides de forage: Etude des performances et considérations environnementales. 2008. Thèse de doctorat.
- [68] John, A. O., O. F. Joel, and F. O. Chukwuma. "Comparative Study of Gravel Suspension Properties of Hydroxyethyl Cellulose and Xanthan Gravel Pack Fluids." International Journal of Engineering and Management Research (IJEMR) 6.5 (2016): 427-434.
- [69] Chapdelaine, D. Les enjeux liés à l'exploration et l'exploitation du gaz de schiste dans le shale d'Utica des basses terres du Saint-Laurent. 29 mai 2014. Mémoire présenté au BAPE, Gouvernement du Québec.
- [70] Bouziani, Tayeb. Caractérisation physico-mécanique des ciments allégés à base de matériaux locaux, en vue de leur utilisation dans la cimentation des puits de pétrole dans les zones salifères. 2002. Thèse de doctorat.
- [71] Weaver, Jim Dean, Rickman, Richard Dale, Luo, Hongyu, et al. A study of proppant formation reactions. In : SPE International Symposium on Oilfield Chemistry. Society of Petroleum Engineers, 2009.
- [72] Xu, Chunhua, Shi, Junjun, Zhou, Weizhi, et al. Bromate removal from aqueous solutions by nano crystalline akaganeite ( $\beta$ -FeOOH)-coated quartz sand (CACQS). Chemical engineering journal, 2012, vol. 187, p. 63-68.
- [73] Dubey, Renu, BAJPAI, Jaya, et Bajpai, A. K. Green synthesis of graphene sand composite (GSC) as novel adsorbent for efficient removal of Cr (VI) ions from aqueous solution. Journal of Water Process Engineering, 2015, vol. 5, p. 83-94.

- [74] Han, R., Zou, W., Zhang, Z., Shi, J., Yang, J. 2006. Removal of copper(II) and lead(II) from aqueous solution by manganese oxide coated sand: I. Characterization and kinetic study. *Journal of Hazardous Materials*, 2006, vol. 137, no 1, p. 384-395.
- [75] Kan, Chi-Chuan, Aganon, Mannie C., Futralan, Cybelle Morales, et al. Adsorption of  $Mn^{2+}$  from aqueous solution using Fe and Mn oxide-coated sand. *Journal of Environmental Sciences*, 2013, vol. 25, no 7, p. 1483-1491.
- [76] Gusain, D., Srivastava, V., Sillanpää, M., & Sharma, Y. C. (2016). Kinetics and isotherm study on adsorption of chromium on nano crystalline iron oxide/hydroxide: linear and nonlinear analysis of isotherm and kinetic parameters. *Research on Chemical Intermediates*, 2016, vol. 42, no 9, p. 7133-7151.
- [77] Haus, Frédérique, Boissel, Olivier, et Junter, Guy-Alain. Multiple regression modelling of mineral base oil biodegradability based on their physical properties and overall chemical composition. *Chemosphere*, 2003, vol. 50, no 7, p. 939-948.
- [78] Haus, F., Boissel, O., et Junter, G.-A. Primary and ultimate biodegradabilities of mineral base oils and their relationships with oil viscosity. *International biodeterioration & biodegradation*, 2004, vol. 54, no 2-3, p. 189-192.
- [79] Jiang, Zhanpeng, YANG, Hongwei, Sun, Lixin, et al. Integrated assessment for aerobic biodegradability of organic substances. *Chemosphere*, 2002, vol. 48, no 1, p. 133-138.
- [80] Luo, Xiangrong, Wang, Shuzhong, Wang, Zhiguo, et al. Experimental investigation on rheological properties and friction performance of thickened CO<sub>2</sub> fracturing fluid. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2015, vol. 133, p. 410-420.
- [81] Zhao, Guang, Yan, Zhihu, Qian, Feng, et al. Molecular simulation study on the rheological properties of a pH-responsive clean fracturing fluid system. *Fuel*, 2019, vol. 253, p. 677-684.
- [82] Lester, Yaal, Ferrer, Imma, Thurman, E. Michael, et al. Characterization of hydraulic fracturing flowback water in Colorado: implications for water treatment. *Science of the Total Environment*, 2015, vol. 512, p. 637-644.
- [83] Chevalier, Thibaud. *Écoulements de fluides à seuil en milieux confinés*. 2013. Thèse de doctorat. Paris Est
- [84] Savard, Mathieu. *Plastification de composites à base de polyacrylates pour le développement d'une matrice polymère alternative au PVC*. 2013. Mémoire présenté

au Département de chimie en vue de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.) de l' Université de Sherbrooke.

[85] Fantou, Céline. Synthèse et caractérisation de dérivés amphiphiles du xanthane: application à la stabilisation d'émulsions. 2018. Thèse de doctorat. Normandie.

[86] Bier, Frédéric. Conception et synthèse d'une matrice polymère thermoplastique pour l'obtention de matériaux composites recyclables, résistants au feu et utilisables dans l'industrie. 2018. Thèse de doctorat. Université de Lorraine.

[87] Goral, Jan, Panja, Palash, Deo, Milind, et al. Confinement effect on porosity and permeability of shales. *Scientific Reports*, 2020, vol. 10, no 1, p. 1-11

[88] Su, Wei-Fang et al. *Principles of polymer design and synthesis*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2013.

[89] Emsley, James William, Feeney, James, et Sutcliffe, Leslie Howard. *High Resolution Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy: Volume 2*. Elsevier, 2013.

[90] White, A. J., & Filisko, F. E. (1982). Tacticity determination of poly (methyl methacrylate)(PMMA) by high- resolution NMR. *Journal of Polymer Science: Polymer Letters Edition*, 1982, vol. 20, no 10, p. 525-529.

[91] Kitayama, T.; Hatada, K. *NMR Spectroscopy of Polymers*; Springer: New York, 2004

[92] Zaikov, Gennadiï Efremovich et Kozłowski, Ryszard. *Chemical and Physical Properties of Polymers*. Nova Publishers, 2005

[93] Chang, Soo-Ho, Lee, Chung-In, et Jeon, Seokwon. Measurement of rock fracture toughness under modes I and II and mixed-mode conditions by using disc-type specimens. *Engineering geology*, 2002, vol. 66, no 1-2, p. 79-97.  
[https://doi.org/10.1016/S0013-7952\(02\)00033-9](https://doi.org/10.1016/S0013-7952(02)00033-9).

[94] Krishnan, Arun et Xu, L. Roy. A short-beam shear fracture approach to measure the mode II fracture toughness of materials with preferred interfaces. *International journal of fracture*, 2011, vol. 169, no 1, p. 15-25. <https://doi.org/10.1007/s10704-010-9579-1>.

[95] Taghichian, Ali, Hashemalhosseini, Hamid, Zaman, Musharraf, et al. Geomechanical optimization of hydraulic fracturing in unconventional reservoirs: a semi-analytical approach. *International Journal of Fracture*, 2018, vol. 213, no 2, p. 107-138. <https://doi.org/10.1007/s10704-018-0309-4>.

[96] Ayatollahi, M. R., Moghaddam, M. Rashidi, Razavi, S. M. J., et al. Geometry effects on fracture trajectory of PMMA samples under pure mode-I loading.

Engineering Fracture Mechanics, 2016, vol. 163, p. 449-461.

<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2016.05.014>.

[97] Ayatollahi, M. R. et Torabi, A. R. Brittle fracture in rounded-tip V-shaped notches. *Materials & Design*, 2010, vol. 31, n° 1, p. 60-67.

<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2009.07.017>.

[98] Ma, Shixiang. Propagation de fissure en mode mixte dans un milieu élasto-plastique avec prise en compte des contraintes résiduelles. 2005. Thèse de doctorat. Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II.

[99] KIKUCHI, M. et SASAKI, J. On the Damage Mechanics Analysis of the Dimple Fracture under Different Constraint Conditions. In: *Computational Mechanics—New Frontiers for the New Millennium*. Elsevier, 2001. p. 637-642.

[100] Shimizu, Hiroyuki, Murata, Sumihiko, et Ishida, Tsuyoshi. The distinct element analysis for hydraulic fracturing in hard rock considering fluid viscosity and particle size distribution. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 2011, vol. 48, n° 5, p. 712-727.

[101] Takada, Akira. Experimental study on propagation of liquid filled crack in gelatin: Shape and velocity in hydrostatic stress condition. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 1990, vol. 95, no B6, p. 8471-8481.

<https://doi.org/10.1029/JB095iB06p08471>.