Étude des mécanismes d'endommagement des formations lors de la réinjection des fluides géothermiques

Anne-Sophie Esneu

▶ **To cite this version:**

Anne-Sophie Esneu. Étude des mécanismes d'endommagement des formations lors de la réinjection des fluides géothermiques. Chimie théorique et/ou physique. Université de Bordeaux; Institut français du pétrole Énergies nouvelles (Rueil-Malmaison, Hauts-de-Seine), 2023. Français. NNT : 2023BORD0324 . tel-04541498

HAL Id: tel-04541498
https://theses.hal.science/tel-04541498

Submitted on 10 Apr 2024

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

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

Thèse présentée
pour obtenir le grade de

DOCTEURE DE L'UNIVERSITE DE BORDEAUX

École doctorale des sciences chimiques
Discipline : Chimie physique

Par : **Anne-Sophie ESNEU**

Etude des mécanismes d'endommagement des formations lors de la réinjection des fluides géothermiques

Sous la direction de : Samuel Marre et Jalila Boujlel

Soutenue le 23 Novembre 2023

Membres du jury :

Mr	COUSSOT, Philippe	Professeur des Universités	Université Gustave Eiffel	Rapporteur
Mr	BODIGUEL, Hugues	Professeur des Universités	Université de Grenoble	Rapporteur
Mr	ERRIGUIBLE, Arnaud	Professeur, Bordeaux INP	I2M, ICMCB-CNRS	Examinateur
Mme	SOUQUE, Christine	Ingénieure de recherche	IFPEN	Examinatrice
Mr	AYMONIER, Cyril	Directeur de recherche	ICMCB-CNRS	Président
Mr	UNGEMACH, Pierre	Ingénieur de recherche	Geofluid	Examinateur
Mme	BOUJLEL, Jalila	Ingénieure de recherche	IFPEN	Co-directrice de thèse
Mr	MARRE, Samuel	Directeur de recherche	ICMCB-CNRS	Directeur de thèse

Membres invités :

Mr	NABZAR, Lahcen	Directeur de recherche		Invité
Mme	MARLIERE, Claire	Ingénieure de recherche	L'Oréal	Invitée

Remerciements

Au terme de ces trois années de doctorat, je souhaite exprimer ma gratitude à tous ceux qui m'ont permis d'arriver au bout de ce travail riche et passionnant.

Je tiens à remercier en premier lieu Jalila Boujlel qui m'a proposé et permis de faire cette thèse, pour la confiance qu'elle m'a accordée tout au long de ces trois années. Merci pour nos nombreux échanges quotidiens, ton écoute, ta gentillesse et ton enthousiasme perpétuel sur le colmatage ; c'est cet environnement positif qui, pour moi, a été un élément majeur dans le très bon déroulement de cette thèse. Je te suis très reconnaissante de ton implication, de ta disponibilité et de tous tes conseils ; grâce à tout cela, je garderai un excellent souvenir de cette période, merci.

Je souhaite ensuite remercier Samuel Marre, qui a accepté qu'une géologue habituée des grandes échelles se lance dans l'aventure d'une thèse expérimentale dans le monde du tout petit et de la microfluidique. Les trois premiers mois de ma thèse au sein de l'ICMCB, à découvrir la microfabrication notamment, ont été un plaisir. Merci pour tes conseils, ton écoute et ton encadrement durant ces trois dernières années.

Je souhaite ensuite exprimer toute ma gratitude à Philippe Coussot et Hugues Bodiguel pour avoir rapporté ce manuscrit. Merci pour toutes les conversations enrichissantes que nous avons pu avoir sur le sujet du colmatage en milieu poreux. Merci également aux membres du jury, Pierre Ungemach, Christine Souque et Arnaud Erriguible qui ont accepté d'examiner mon travail. Arnaud, ce fut un plaisir de collaborer pour obtenir les champs de vitesse (et autres !) par simulation. Enfin, merci à Cyril Aymonier d'avoir présidé mon jury et pour son accueil au sein de l'ICMCB.

Je n'oublie pas Claire Marlière et Lahcen Nabzar qui ont participé à l'encadrement de ce travail de thèse. Lahcen, ce fut un plaisir d'échanger avec toi lors de nos différentes réunions et de bénéficier de ta grande expérience sur le sujet, aussi bien d'un point de vue théorique que pratique. En effet, de nombreuses questions peuvent se poser lors de la réalisation d'un travail expérimental et tes conseils et nombreuses anecdotes m'ont toujours permis d'avancer et de progresser dans mon travail. Claire, merci pour ta gentillesse et ton aide ; je n'ai finalement pas beaucoup fait de chimie, mais ton avis et tes retours ont toujours permis de faire avancer la problématique.

J'aimerais également exprimer mes remerciements à toutes les (nombreuses !) personnes qui ont contribué à l'accomplissement et à la réussite de mon travail.

Je souhaiterais commencer avec l'équipe Diagnostics Optiques du département Mobilité et Systèmes (R10) d'IFP Energies Nouvelles et plus particulièrement Jérôme Cherel, Michele Bardi, Clément Bramoullé et Vincent Ricordeau. Merci pour votre aide et votre bonne humeur constante ! J'ai découvert un nouveau pan de l'imagerie grâce à ce travail de thèse et il aurait été bien moins plaisant sans votre accompagnement. Cela a été un réel plaisir de bénéficier de vos compétences et votre aide sur le banc fluorescence. J'ai une pensée pour Guillaume Pilla et Ahmed Pervez qui m'ont épaulé au tout début de ce travail avant de partir vers d'autres horizons.

L'équipe Micromodèles tient également une place spéciale ; merci à Jalila à nouveau, Nicolas et Virginie pour ces trois années partagées ensemble, je me souviendrai longtemps du laboratoire M114 ! Mention spéciale à Nicolas Rousseau et Hervé Deschamps ; vous avez toujours répondu présent pour m'aider sur différents aspects de mon travail, qu'ils soient techniques, opérationnels, logistiques ou autre… Merci pour votre bonne humeur et votre aide au quotidien.

Plus généralement, merci à l'ensemble des collègues du département R16 que j'ai eu le plaisir de côtoyer en Myosotis : Sonia, Herman, Clé, Mélissa, Julia, Matthieu, Samir, Guillaume, Maria, Jean-Marc, Olivier, Caroline, Ameline, Elsa … Ces trois années n'auraient pas été les mêmes sans toutes les pauses café et bons moments en salle de convivialité en votre compagnie.

Je souhaite également remercier toute l'équipe des Fluides Supercritiques de l'ICMCB dans laquelle j'ai évolué pendant quelques mois au tout début de ce travail de thèse et plus particulièrement Lionel, Elen, Fatma, Rosa, Rabie, Emeline, Brian, Thomas et Valentina. Ce fut un réel plaisir d'évoluer au sein de cette équipe, j'ai partagé de beaux moments auprès de vous, j'espère qu'il y en aura d'autres à Bordeaux ou ailleurs !

Ces trois dernières années furent ainsi jalonnées de très belles rencontres. Quelle chance d'avoir pu fonder cette équipe « des thésards qui dépotent » : Emma, Valentine, Elliot, Camille, Jean-Lou, Théo, Alexis, Carlos, une sacrée belle brochette de thésards ! J'ai eu beaucoup de chance de vous rencontrer pour vivre ensemble cette expérience indescriptible que représente une thèse. Cette période représente une sacrée aventure, rendue savoureuse par tous les bons moments/weekends/pauses que nous avons passé ensemble. Depuis Sausset-les-Pins, en passant par Bordeaux, la Bourgogne, en congrès ou ailleurs, nous avons mangé, bu, rit, râlé, joué et vécu de belles choses ensemble. Notre seul véritable échec réside dans notre piètre performance à la murder party proposée par Jean-Lou… Emma, Elliot, quelle belle Team Micromodèles nous faisions ; je garderai bien en mémoire les taches d'encre violettes sur la blouse d'Emma et nos après-midis au labo en musique. A tous, merci.

Emma, merci d'avoir embelli de façon constante nos journées au bureau ! Ces trois années passées ensemble dans notre bureau de fond de couloir ont été un réel plaisir et je suis heureuse d'avoir partagé avec toi tous ces petits moments qui ont rendu le quotidien agréable et joyeux.

Enfin, sur une dernière note plus personnelle, je pense à mes proches et amis de plus longue date. Pour respecter un certain ordre chronologique, je commencerais avec toi Manon L., ma plus chère amie. Merci pour ton soutien, et surtout ton amitié depuis toutes ces années. Le temps du solfège est bien loin mais je repense toujours avec émotion à toutes nos aventures. Vivement les prochaines ! Je souhaite également remercier mes très chères amies de classe prépa, Manon, Claire, Clarisse, Lucie, Léna, Mylène et Maya ; le temps passe et bien que nos chemins professionnels aient pris différentes directions, quel plaisir de se retrouver encore et encore. Merci pour votre gentillesse, pour tous les magnifiques moments que nous avons passés ensemble et ceux à venir bien évidemment. Je n'oublie pas ma famille de l'ENSEGID et plus particulièrement Barbara, Manon, Axelle et Claire ! Merci pour votre amitié et tous vos mots d'encouragement durant ces trois dernières années ; il me tarde de créer de nouveaux souvenirs mémorables en votre compagnie.

Finalement, je souhaite exprimer ma gratitude à Nicole et Didier Lefebvre pour leur gentillesse et leur soutien durant cette aventure ; Nicole, merci pour les différentes relectures, le manuscrit n'en est que plus beau.

A ma famille, mes grands-parents, ma tante, mes cousins, mes parents, mes deux frères Thomas et Antoine, ainsi que ma sœur Victoire, merci pour votre amour et constant soutien. A mes parents, merci de m'avoir permis de réaliser ce parcours et soutenu tout au long de ce travail. Le moment semble maintenant opportun pour arrêter les études…

Mes derniers remerciements se tournent vers Arnaud ; ton immuable soutien et paisible force dans les bons et les moins bons moments des trois dernières années m'ont permis de vivre de la meilleure manière qui soit cette période importante de ma vie. Nous avons vécu des moments incroyables ensemble et c'est avec beaucoup d'amour, de bonheur et de joie que je pense à nos prochaines aventures. Merci.

Un nouveau chapitre commence maintenant, avec de nouvelles aventures à vivre et écrire. A tous, je souhaite le meilleur.

« La vie est courte. Transgressez les règles, pardonnez rapidement, embrassez lentement, aimez véritablement, riez sans contrôle et ne regrettez jamais quelque chose qui vous a fait sourire. »

Mark Twain

Etude des mécanismes d'endommagement des formations lors de la réinjection des fluides géothermiques

Résumé

Le colmatage des puits causant une perte d'injectivité lors de la réinjection des eaux de production est un problème récurrent dans plusieurs domaines des géosciences (stockage de CO2, récupération de pétrole, géothermie, …). Pour minimiser ou remédier à ce problème, il est important de comprendre son origine. Le transport et le dépôt de particules colloïdales en milieux poreux ont ainsi été largement étudiés. L'état des connaissances à ce sujet est par conséquent très riche. Cependant, en raison de l'opacité des roches, on manque d'informations sur les mécanismes qui se produisent à l'échelle du pore. Lors de ces travaux, afin de faciliter l'extrapolation des résultats à l'application géothermie, nous nous sommes placés dans le cas de la réinjection de fluides géothermiques (petites particules, fort débit, milieux poreux perméables).

La problématique de dépôt et de colmatage a ici été étudiée via une approche microfluidique combinant deux techniques de visualisation : l'imagerie optique et l'imagerie par fluorescence induite par laser. Les micromodèles (milieu poreux 2D transparents) considérés présentent des géométries inspirées d'images de réseaux poreux de roche réelle. Une suspension modèle de particules micrométriques avec des charges répulsives a été utilisée. Le couplage entre observation locale et mesures macroscopiques (pression et concentration) a permis une caractérisation fine des mécanismes impliqués à l'échelle du pore et d'apporter des informations essentielles à la compréhension des phénomènes impliquant l'hydrodynamique (vitesse, géométrie des pores) et les interactions particule-particule et particule-grain (forces DLVO).

Plus particulièrement, cette étude réalisée dans les conditions de la géothermie a permis, en croisant les données sur les champs de vitesse établis par simulation numérique et les caractéristiques de dépôts obtenues expérimentalement, d'identifier les différents sites de dépôts ainsi que de décrire les régimes de dépôts et les mécanismes de colmatage. La localisation des sites de dépôt est principalement dictée par les lignes de courant dans le milieu poreux. Ils permettent la surconcentration locale en particules, ce qui, lorsque couplé à un fort cisaillement local, induit la formation de clusters de particules irréversibles. Ce phénomène d'agrégation hydrodynamique, fortement favorisé par les conditions de la réinjection de fluides géothermiques et notamment les forts débits d'injection, présente un risque majeur qu'il faut bien anticiper et contrôler. En effet, ces agrégats irréversibles, qui peuvent se former même lorsque les fluides sont finement filtrés et très faiblement concentrés en particules, sont facilement entrainés en profondeur par l'écoulement, sans être cassés jusqu'à colmater des seuils de pores par tamisage. Contrairement à des agrégats formés par affinité chimique, ces agrégats sont très difficiles à déstabiliser, ce qui rend complexe les procédés de remédiation après colmatage.

Enfin, une étude paramétrique a montré comment chaque paramètre (concentration, débit, taille des particules, ...) influence la cinétique de l'endommagement. Les résultats obtenus à partir des travaux microfluidiques ont été également validés pour des systèmes plus réels (suspension avec particules d'argiles et massifs reconstitués de sable). Sur la base des informations recueillies, d'éventuelles solutions de remédiation ont été proposées.

Mots-clés

Milieux poreux, Colmatage, Mécanique des fluides, Physico-chimie des fluides complexes, Microfluidique

---

Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux
UMR5026 Université, 33000 Bordeaux, France

Analysis of clogging mechanisms during the reinjection of geothermal fluids in geological formation

Abstract

Well clogging causing loss of injectivity during reinjection of produced water is a recurring problem in many areas of the geosciences (CO2 storage, oil recovery, geothermal energy, etc.). To minimize or remedy this problem, it is important to understand its origin. The transport and deposition of colloidal particles in porous media have been extensively studied. The knowledge on this subject is therefore very rich. However, due to the opacity of rocks, there is a lack of information on the mechanisms occurring at the pore scale. To facilitate extrapolation of the results to the geothermal application, we placed ourselves in the case of geothermal fluid reinjection (small particles, high flow rate, permeable porous media).

The issue of deposition and clogging has been studied here using a microfluidic approach combining two visualization techniques: optical imaging and laser-induced fluorescence imaging. The considered micromodels (transparent 2D porous media) feature geometries inspired by images of real rock pore networks. A model suspension of micrometric particles with repulsive charges was used. The coupling between local observation and macroscopic measurements (pressure and concentration) has enabled fine characterization of the mechanisms involved at the pore scale and provided essential information for understanding the interactions between hydrodynamics (velocity, pore geometry) and particle-particle and particle-grain interactions (DLVO forces).

In particular, by cross-referencing numerically simulated velocity field data with experimentally obtained deposition characteristics, this study, carried out under geothermal conditions, has allowed us to identify the various deposition sites, as well as describing deposition regimes and clogging mechanisms. The location of deposition sites is mainly dictated by the streamlines in the porous medium. They enable local over-concentration of particles, which, when coupled with high local shear, induces the formation of irreversible particle clusters. This phenomenon of hydrodynamic aggregation, strongly favored by geothermal fluid reinjection conditions and in particular high injection rates, presents a major risk that must be anticipated and controlled. In fact, these irreversible aggregates, which can form even when fluids are finely filtered and very low in particle concentration, are easily carried away at depth by the flow, without being broken. They may eventually clog pore thresholds by sieving. Unlike aggregates formed by chemical affinity, these aggregates are very difficult to destabilize, making remediation after clogging a complex process.

Finally, a parametric study showed how each parameter (concentration, flow rate, particle size, etc.) influences damage kinetics. The results obtained from the microfluidic work were also validated for more real systems (suspensions with clay particles and reconstituted sand masses). Based on the information gathered, eventual remedial solutions were proposed.

Keywords

Porous media, Clogging, Fluid mechanics, Physico-chemistry of complex fluids, Microfluidic

---

Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux
UMR5026 Université, 33000 Bordeaux, France

Sommaire

Introduction 1

Chapitre 1 : Etat de l'art 1

1.1 Forces agissant sur les particules : physique des suspensions colloïdales **3**

1.1.1 Forces d'origine hydrodynamique 3

1.1.1.1 Force de gravité 3

1.1.1.2 Force de traînée 3

1.1.1.3 Force de portance 4

1.1.1.4 Forces supplémentaires 4

1.1.2 Forces d'origine physico-chimique 5

1.1.2.1 Forces de Van der Waals 5

1.1.2.2 Interaction de double couche électrique 5

1.1.2.3 Théorie de Derjaguin, Landau, Verwey, Overbeek (DLVO) 6

1.1.2.4 Limites de la théorie DLVO 8

1.2 Hydrodynamique en milieu poreux **8**

1.2.1 Généralités sur les milieux poreux 8

1.2.1.1 Porosité 8

1.2.1.2 Surface spécifique 9

1.2.1.3 Tortuosité 9

1.2.1.4 Perméabilité 9

1.2.2 Approche théorique du transport particulaire en milieu poreux 11

1.2.3 Dépôt de particules 12

1.2.3.1 Structure interne – Sites de rétention des particules 12

1.2.3.2 Mécanismes de rétention/capture 13

1.2.3.3 Régimes de dépôt 14

1.2.3.4 Théorie de la filtration et coefficient d'efficacité de collection 15

1.2.3.5 Fonction dynamique de blocage et ombrage dynamique 17

1.2.3.6 Désorption 18

1.3 Synthèse des travaux - facteurs d'influence sur le dépôt et la rétention de particules colloïdales dans les milieux poreux. **20**

1.3.1 Milieux utilisés pour l'étude expérimentale du colmatage 21

1.3.1.1 Historiquement : Travaux avec milieux poreux 3D 21

1.3.1.2 Plus récemment : Travaux avec dispositifs microfluidiques 23

1.3.2 Influence des propriétés de la phase aqueuse 31

1.3.2.1 Force ionique 31

1.3.2.2 Nature des électrolytes en solution 34

1.3.2.3 pH 35

1.3.3 Influence des propriétés des particules en suspension dans le fluide en écoulement 36

1.3.3.1 Taille 36

1.3.3.2 Forme 39

1.3.3.3 Concentration 41

1.3.4 Influence des propriétés du milieu poreux 44

1.3.4.1 Structure chimique de surface 44

1.3.4.2 Type de milieu/structure porale 45

1.3.5 Influence des conditions opératoires sur l'écoulement 47

1.3.5.1 Débit 47

1.3.5.2 Température 50

1.4 Conclusion de l'état de l'art & définition des objectifs de l'étude **53**

Chapitre 2 : Matériels et méthodes ... 57
2.1 Présentation et caractérisation des suspensions utilisées ... **61**
2.1.1 Travaux préalables : particules de silice ... 61
2.1.2 Microsphères de polystyrène ... 62
2.1.2.1 Caractéristiques principales ... 62
2.1.2.2 Mesure de taille de particules en suspension ... 63
2.1.2.3 Potentiel zêta et forces DLVO ... 64
2.1.2.4 Spectres d'absorption ... 66
2.1.2.5 Protocole de préparation des suspensions de particules ... 67
2.1.2.6 Rhéologie de la suspension ... 68
2.1.3 Particules d'argiles ... 69
2.1.4 Résumé des caractéristiques principales ... 70
2.2 Micromodèles : milieux poreux 2D complexes ... **71**
2.2.1 Présentation des géométries et analyse du milieu poreux ... 71
2.2.1.1 Géométrie G1 ... 71
2.2.1.2 Géométrie G2 ... 74
2.2.1.3 Géométrie G3 ... 76
2.2.2 Cartographie de la tortuosité ... 78
2.2.3 Simulations champ de vitesse ... 79
2.2.4 Comparaison des géométries et conclusion ... 81
2.2.5. Interface micromodèle – circuit microfluidique ... 82
2.3 Massifs granulaires : milieux poreux 3D ... **82**
2.3.1 Caractéristiques du massif granulaire ... 83
2.3.2 Cellule de mesure ... 83
2.3.3 Caractérisation du milieu poreux ... 84
2.4 Bancs expérimentaux ... **85**
2.4.1 Dispositif expérimental n°1 : imagerie LIF ... 86
2.4.1.1 Principe de la LIF pour l'étude du transport des fluides complexes en milieu poreux ... 86
2.4.1.2 Dispositif expérimental et fonctionnement ... 87
2.4.1.3 Traitement des mesures de perte de charge ... 88
2.4.1.4 Traitement des données d'imagerie ... 89
2.4.1.5 Calibration ... 92
2.4.1.6 Exemple type de données extraites d'une injection sur le banc expérimental n°1 ... 92
2.4.2 Dispositif expérimental n°2 : dispositif de suivi dans le visible ... 93
2.4.2.1 Dispositif expérimental et fonctionnement ... 94
2.4.2.2 Traitement des mesures de perte de charge ... 95
2.4.2.3 Traitement des données d'imagerie ... 95
2.4.2.4 Exemple type de données extraites d'une injection sur le banc expérimental n°2 ... 96
2.4.3 Choix des conditions expérimentales d'injection ... 97
2.4.4 Récapitulatif des expériences menées ... 99

Chapitre 3 : Résultats expérimentaux ... 103
3.1 Description multi-échelle du dépôt ... **107**
3.1.1 Description macroscopique des dépôts ... 107
3.1.2 Régimes d'écoulement – Alimentation particulaire différentielle ... 111
3.1.3 Mise en évidence des sites de dépôt ... 113
3.1.4 Mise en évidence d'une agrégation hydrodynamique ... 115
3.2 Mécanismes de colmatage ... **118**
3.2.1 Mécanisme 1 : fermeture des seuils de pore par un dépôt multicouche progressif et stable ... 118
3.2.2 Mécanisme 2 : tamisage par déplacement d'agrégats (dépôts instables) ... 123

3.2.3 Conclusion sur les mécanismes de colmatage : compétition entre construction et destruction des dépôts ... 126
3.3 Etude paramétrique des facteurs d'endommagement ... **127**
3.3.1 Analyse des courbes caractéristiques d'endommagement et corrélation avec l'imagerie ... 127
3.3.2 Effet de la concentration de la suspension injectée ... 129
3.3.3 Effet du débit d'injection ... 130
3.3.4 Effet de la taille de particules ... 132
3.3.4.1 Dépôts et mécanismes de colmatage ... 132
3.3.4.2 Endommagement du milieu poreux ... 133
3.3.5 Charges de surface différentes : particules de polystyrène amidines ... 136
3.3.5.1 Dépôt à l'échelle macroscopique ... 136
3.3.5.2 Dépôt à l'échelle du pore ... 138
3.3.5.3 Endommagement du milieu poreux ... 140
3.3.6 Conclusion étude paramétrique sur l'endommagement ... 141
3.3.7 Proposition d'un modèle empirique pour évaluer la réduction de perméabilité lors de l'injection d'une suspension de colloïdes au sein d'un milieu poreux. ... 143
3.4 Géométries différentes : conséquences sur le dépôt et l'endommagement ... **145**
3.4.1 Géométrie G3 ... 145
3.4.1.1 Description du dépôt à l'échelle du pore ... 145
3.4.1.2 Mécanismes de colmatage : dépôts stables et instables ... 146
3.4.1.3 Dépôt à l'échelle macroscopique ... 149
3.4.1.4 Effets de la concentration et du débit sur l'endommagement ... 151
3.4.2 Géométrie G2 ... 152
3.4.2.1 Dépôt à l'échelle du pore ... 152
3.4.2.2 Dépôt à l'échelle macroscopique ... 155
3.4.2.3 Effet de la concentration sur l'endommagement ... 156
3.4.3 Comparaison des résultats obtenus avec les différentes géométries ... 157
3.5 Conclusion ... **159**

Chapitre 4 : Validation sur des systèmes réalistes et apports pour la géothermie ... 163
4.1 Vers un fluide réel et un milieu poreux plus représentatif ... **167**
4.1.1 Injection d'une suspension d'illites ... 167
4.1.1.1 Observation à l'échelle du pore : pièges et agrégation hydrodynamique ... 167
4.1.1.2 Mécanismes de colmatage : pontage progressif et tamisage éventuel des seuils de pore ... 168
4.1.1.3 Endommagement du milieu poreux G3 par une suspension d'illites ... 171
4.1.2 Injection d'une suspension de tensioactif ... 172
4.1.3 Injection d'une suspension de polystyrène dans un milieu reconstitué ... 173
4.2 Réflexion sur les solutions de remédiation ... **176**
4.2.1 Etat des lieux sur les moyens de remédiation ... 176
4.2.2 Injection à fort débit continue ou alternative ... 177
4.2.4 Co-injection avec une suspension d'éléments biodégradables ... 178
4.2.5 Injection alternée de fluides filtrés et non filtrés ... 178
4.2.6 Conclusion sur les propositions de procédés de remédiation ... 179

Conclusion générale ... 183

Perspectives ... 187

Bibliographie ... 189

Annexes 199
Annexe A : Calcul des forces DLVO **199**
Annexe B : Champs de pression – collaboration A. Erriguible (I2M, Bordeaux INP) **200**
Annexe C : Présentation des capteurs FOP-MIV **201**
Annexe D : Champs de vitesse – collaboration A. Erriguible (I_2M, Bordeaux INP) **202**
Annexe E : Caractéristiques sable GA39 (société SIBELCO) **205**
Annexe F : Calibration spectrophotomètre AVANTES **206**
Table des figures 207
Table des tableaux 218

Introduction

Diverses applications en ingénierie du sous-sol sont confrontées à une problématique technique commune : la baisse d'injectivité associée à une réduction de la perméabilité des formations géologiques. Ce phénomène, observé dans plusieurs secteurs industriels tels que la production pétrolière, la production d'eau potable, la séquestration de CO_2 ou encore la géothermie, est imputé au colmatage progressif du milieu poreux dans lequel circulent les fluides. Par définition, et dans le cadre d'un système poreux tel qu'un échantillon de roche ou un système de filtration, le colmatage correspond au phénomène par lequel le système se retrouve obstrué, bouché. Ceci est dû à la présence de colloïdes en suspension dans le fluide injecté (particules minérales, micro-organismes, …) et des changements des conditions physico-chimiques (température, pression, solutés…) associés à la circulation du fluide dans le milieu poreux. L'obturation progressive du milieu est alors associée à une réduction importante des capacités d'un fluide à s'écouler à travers le système poreux considéré, autrement dit une réduction de la perméabilité de ce milieu.

Ce colmatage et les mécanismes qui lui sont associés font l'objet d'une recherche importante dans la mesure où ses impacts peuvent être dommageables pour la durabilité des infrastructures d'exploitation en relation avec les applications mentionnées précédemment. De fait, la problématique est associée à de forts enjeux techniques et économiques, la pérennité des installations étant conditionnée au fait de pouvoir garantir dans le temps la production et la réinjection de fluides.

Dans le cadre de nos travaux, nous nous penchons plus particulièrement sur la géothermie qui regroupe l'ensemble des technologies permettant d'exploiter la chaleur de la Terre. Depuis quelques années, la géothermie est devenue une source d'énergie particulièrement intéressante à mettre en œuvre pour ses caractéristiques d'implémentation locale et durable. Elle permet de réduire la dépendance aux énergies fossiles pour la consommation électrique domestique et industrielle.

Néanmoins, le colmatage de la boucle géothermale est un problème récurrent qui affecte de nombreuses installations sur l'ensemble du territoire français, remettant en cause leur viabilité technico-économique. Ainsi, plusieurs projets d'exploitation géothermique ont été arrêtés ; selon un rapport du Bureau de recherches géologiques et minières (BRGM, 2016), un nombre important de projets ont été abandonnés dans les années 1980, illustrant l'ampleur du problème associé à la ré-injectivité des fluides géothermiques. Par exemple, trois échecs de réinjection d'eau souterraine dans les formations géologiques du Trias ont été enregistrés à Cergy, Melleray et Achères (Ile-de-France) et ont conduit à l'arrêt des exploitations sans que l'origine des défauts de réinjection ne soit étudiée. Plus généralement, les acteurs du secteur indiquent qu'il est difficile d'anticiper l'apparition de ce problème dès les premiers stades de réflexion autour d'un projet d'implantation de l'activité géothermie et qu'il est difficile de traiter efficacement et de prévenir les processus de colmatage qui peuvent apparaitre rapidement dès les premières années d'exploitation, ceci engendrant des impacts économiques importants.

Différentes études (Burté, 2018 ; Song *et al.*, 2020) ont listé les phénomènes qui pourraient expliquer une telle perte d'injectivité et trois principales sources se détachent parmi lesquelles : l'invasion par des particules exogènes, la mobilisation de particules endogènes telles que les fines, et la formation in situ de nouveaux objets via des écoulements réactifs (précipités de sels, oxydes de fer, …).

Ainsi, les fluides géothermiques se retrouvent fréquemment chargés de particules minérales et organiques en suspension, de composés organiques et minéraux dissous, de divers additifs associés à l'exploitation, de micro-organismes et de métaux lourds. Ces fluides arrivent dans le sous-sol où la nature de la suspension des particules en lien avec les propriétés intrinsèques du milieu poreux sont des paramètres clés dans les événements qui se produisent à l'échelle du pore (Figure 1). Généralement, dans le cas d'un doublet géothermal, deux puits sont forés : l'un pour remonter l'eau des couches profondes (puits producteur), l'autre pour la ramener dans ses couches d'origine (puits injecteur) après en avoir extrait les calories grâce à l'échangeur de chaleur en surface (Figure 1(a)). Une filtration des fluides à la sortie du puits de production est également courante, afin de minimiser la proportion de particules en circulation et réintroduite dans le système. Malgré ces précautions, le colmatage reste présent, aussi bien pour les différents éléments de la boucle géothermale (puits, échangeur) que les formations géologiques en profondeur dans lesquelles les fluides circulent.

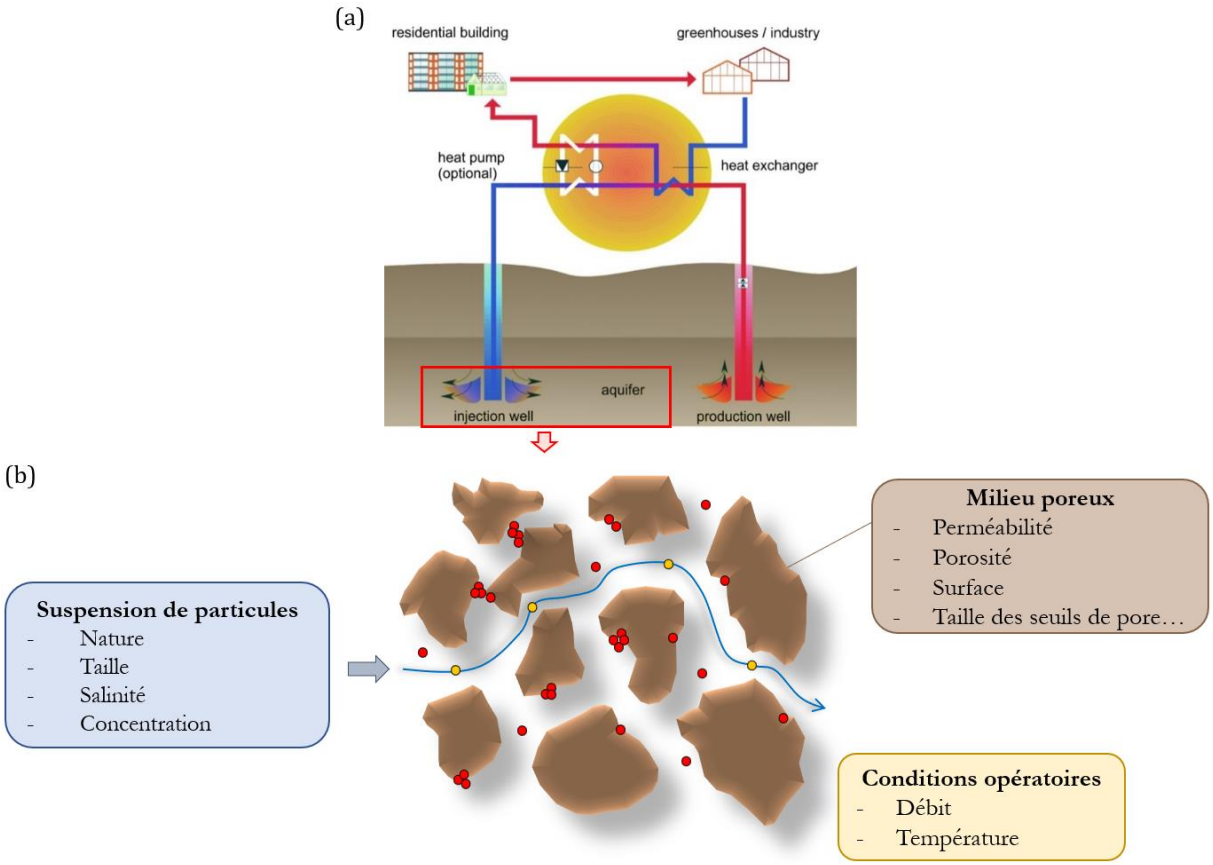


Figure 1 - (a) Schéma simplifié du fonctionnement d'un doublet géothermal (Agemar *et al.*, 2014) et (b) illustration des différents paramètres en jeu lors de la circulation des fluides au sein du milieu poreux. Les grains apparaissent en marron, les particules en rouge et jaune et le sens de l'écoulement est donné par la flèche bleue.

De part la nature variée des particules qui sont mises en écoulement dans les formations géologiques, il semble cohérent que le colmatage puisse prendre plusieurs formes. Les études menées sur le sujet tendent à montrer que le colmatage physique par des particules solides est le principal colmatage ayant lieu (Figure 2).

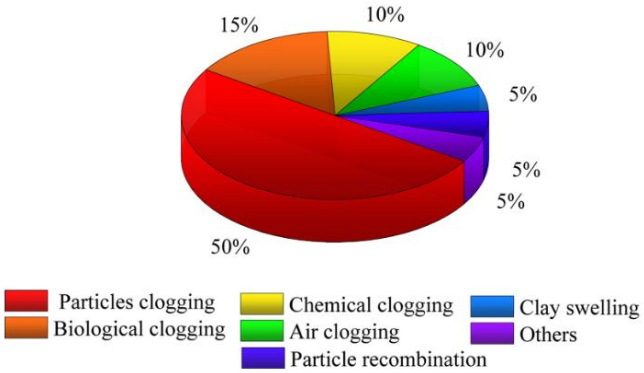


Figure 2 - Proportions des différents types de colmatage (Song *et al.*, 2020).

Afin de répondre aux enjeux technico-économiques liés à la géothermie, la compréhension des mécanismes associés au colmatage des formations géologiques par des fluides géothermiques nécessite de nouveaux moyens de caractérisation, en particulier à l'échelle du laboratoire.

L'objectif de la thèse proposée ici consiste **à étudier l'endommagement d'un milieu poreux par des particules colloïdales grâce à une approche basée sur la microfluidique**, technologie permettant d'accéder à la visualisation directe des phénomènes ayant lieu à l'échelle micrométrique. Les conditions opératoires (débit d'injection, perméabilité du milieu, taille des particules, …) ont été choisies de manière à être représentatives des conditions opératoires associées à la géothermie.

L'étude est articulée autour des axes suivants :

- La première partie correspond à une analyse de l'état de l'art sur les mécanismes d'endommagement d'un milieu poreux par des particules colloïdales et notamment les facteurs d'influence sur le dépôt. Cette analyse est constituée de deux grands ensembles : le premier est relatif aux caractéristiques des suspensions et notamment aux différentes interactions auxquelles elles sont soumises et qui influencent leur stabilité. Le deuxième est consacré aux observations qui ont pu être effectuées et aux résultats associés à l'issue des travaux menés sur le sujet, le dépôt de particules colloïdales étant un phénomène observé dans le cadre de nombreuses applications d'ingénierie et de procédés environnementaux ;

- La deuxième partie est associée aux développements expérimentaux menés autour de dispositifs microfluidiques et outils utilisés dans le cadre de l'étude. Les fluides utilisés y sont caractérisés et les milieux poreux 2D et 3D présentés. Par ailleurs, les bancs développés et utilisés avec le choix des conditions expérimentales sont décrits dans cette partie. Ils reposent sur deux techniques d'imagerie différentes et permettent ainsi la réalisation de mesures complémentaires ;

- La troisième partie correspond à la présentation et la discussion des résultats de l'étude expérimentale microfluidique. Nous présentons ainsi l'ensemble des informations obtenues grâce au couplage des données macroscopiques (mesures de la perte de charge) avec l'imagerie et la simulation du champ de vitesse. Les mécanismes de colmatage sont présentés ainsi que l'influence des différents paramètres étudiés (concentration, débit d'injection, taille des particules, groupement de surface, géométrie du milieu poreux …) sur la réduction de perméabilité. Nous proposons dans cette partie un modèle empirique pour

évaluer cet endommagement d'un milieu poreux lors de l'injection d'une suspension de colloïdes.

- La quatrième et dernière partie est associée aux résultats de l'étude expérimentale menée avec des échantillons de fluide plus réels (suspension de particules d'argiles) et des milieux poreux 3D (massifs de sable). Nous développons également la réflexion menée autour d'éventuels procédés de remédiation permettant de ralentir les effets délétères associés au colmatage.

Ce manuscrit se termine par une conclusion générale qui récapitule les enseignements de ce travail accompagnés de quelques perspectives pour les études futures.

Chapitre 1 : Etat de l'art

Sommaire

1.1 Forces agissant sur les particules : physique des suspensions colloïdales 3
1.1.1 Forces d'origine hydrodynamique 3
1.1.1.1 Force de gravité 3
1.1.1.2 Force de traînée 3
1.1.1.3 Force de portance 4
1.1.1.4 Forces supplémentaires 4
1.1.2 Forces d'origine physico-chimique 5
1.1.2.1 Forces de Van der Waals 5
1.1.2.2 Interaction de double couche électrique 5
1.1.2.3 Théorie de Derjaguin, Landau, Verwey, Overbeek (DLVO) 6
1.1.2.4 Limites de la théorie DLVO 8

1.2 Hydrodynamique en milieu poreux 8
1.2.1 Généralités sur les milieux poreux 8
1.2.1.1 Porosité 8
1.2.1.2 Surface spécifique 9
1.2.1.3 Tortuosité 9
1.2.1.4 Perméabilité 9
1.2.2 Approche théorique du transport particulaire en milieu poreux 11
1.2.3 Dépôt de particules 12
1.2.3.1 Structure interne – Sites de rétention des particules 12
1.2.3.2 Mécanismes de rétention/capture 13
1.2.3.3 Régimes de dépôt 14
1.2.3.4 Théorie de la filtration et coefficient d'efficacité de collection 15
1.2.3.5 Fonction dynamique de blocage et ombrage dynamique 17
Fonction de blocage 17
Ombrage dynamique 18
1.2.3.6 Désorption 18

1.3 Synthèse des travaux - facteurs d'influence sur le dépôt et la rétention de particules colloïdales dans les milieux poreux. 20
1.3.1 Milieux utilisés pour l'étude expérimentale du colmatage 21
1.3.1.1 Historiquement : Travaux avec milieux poreux 3D 21
Principe 21
Endommagement de la perméabilité 22
1.3.1.2 Plus récemment : Travaux avec dispositifs microfluidiques 23
Principe des outils microfluidiques et leur utilisation pour l'étude des problématiques de subsurface 23
Géométries des dispositifs microfluidiques 24
Le colmatage à l'échelle du pore 26
1.3.2 Influence des propriétés de la phase aqueuse 31
1.3.2.1 Force ionique 31
1.3.2.2 Nature des électrolytes en solution 34
1.3.2.3 pH 35
1.3.3 Influence des propriétés des particules en suspension dans le fluide en écoulement 36

1.3.3.1 Taille 36
1.3.3.2 Forme 39
1.3.3.3 Concentration 41
1.3.4 Influence des propriétés du milieu poreux 44
1.3.4.1 Structure chimique de surface 44
1.3.4.2 Type de milieu/structure porale 45
1.3.5 Influence des conditions opératoires sur l'écoulement 47
1.3.5.1 Débit 47
1.3.5.2 Température 50

1.4 Conclusion de l'état de l'art & définition des objectifs de l'étude 53

Ce chapitre vise à comprendre les interactions entre les colloïdes et le milieu dans lequel ils évoluent ainsi qu'à exposer l'état des connaissances sur le transport et le dépôt de particules en milieu poreux. L'étude des interactions entre les colloïdes et les surfaces solides constituant leur environnement permet d'appréhender le comportement de transport et de rétention des particules dans un milieu poreux naturel. Ce travail nécessite la connaissance préalable des caractéristiques des suspensions de particules ainsi que celles des milieux poreux dans lesquels elles circulent.

1.1 Forces agissant sur les particules : physique des suspensions colloïdales

Une suspension colloïdale est constituée d'une phase dispersée et d'une phase dispersante liquide. Les colloïdes sont des particules dont la taille minimale est au moins dix fois la dimension linéaire d'une molécule de solvant, soit environ 1 nm (Dhont, 1996). La taille maximale de ces particules est de l'ordre du micromètre. Ces dimensions sont associées à une propriété majeure : les effets de gravité sont considérés négligeables par rapport à ceux de l'agitation thermique (mouvement Brownien), entraînant ainsi le maintien en suspension et l'absence de sédimentation des particules colloïdales.

Lorsqu'une particule colloïdale s'approche d'une surface collectrice ou d'une autre particule, elle peut être soumise à plusieurs types d'interactions d'origines variées qui influencent la stabilité des suspensions. L'importance relative de ces forces sur l'énergie d'interaction totale est étudiée ci-dessous.

1.1.1 Forces d'origine hydrodynamique

Le mouvement d'une particule au sein d'une suspension et notamment à proximité d'une surface collectrice peut-être influencé par plusieurs forces extérieures qui sont ici décrites.

1.1.1.1 Force de gravité

La différence de densité entre la particule et le liquide porteur tend à influencer le déplacement des particules en suspension dans la direction de la gravité, conformément à la loi de Stokes. La vitesse d'une particule sphérique subissant un mouvement de Stokes est alors donnée par :

$$v_s = \frac{g \cdot (\rho_p - \rho_f) \cdot d_p^2}{18 \cdot \mu} \tag{1.1}$$

Où g correspond à l'accélération de la pesanteur égale à 9,81 $m.s^{-2}$, ϱ_p et ϱ_f correspondent respectivement aux densités de la particule et du fluide, d_p est le diamètre des particules sphériques en suspension et μ correspond à la viscosité dynamique du fluide (en Pa.s).

1.1.1.2 Force de traînée

La traînée est la force qui s'oppose au mouvement d'un corps dans un liquide et agit comme un frottement tel que :

$$F_D = C_D \cdot \left(\frac{\rho U^2}{2}\right) \cdot S_p \tag{1.2}$$

Où U correspond à la vitesse relative de la particule considérée par rapport au fluide en $m.s^{-1}$, S_p est la section géométrique qu'offre la particule à l'écoulement, ϱ la masse volumique du fluide

en kg.m^{-3} et C_D le coefficient de traînée (sans dimension), lui-même fonction du nombre de Reynolds particulaire Re_p défini par l'expression suivante :

$$Re_p = \frac{\rho_f . U . d}{\mu_f} \quad (1.3)$$

Où ρ_f et μ_f désignent la masse volumique et la viscosité dynamique du fluide, d la taille caractéristique de la particule et U la vitesse relative entre fluide et particule.

Si l'on considère un écoulement de Stokes ($10^{-4} < Re_p < 1$), ce coefficient de traînée est inversement proportionnel au nombre de Reynolds :

$$C_D = \frac{24}{Re_p} \quad (1.4)$$

Plus le nombre de Reynolds augmente, moins la viscosité de la suspension réussit à « freiner » l'écoulement général.

Finalement, l'expression de la force de traînée appliquée à une particule de diamètre d_p à proximité d'une surface plane a été définie par Goldman et O'Neill (Goldman *et al.*, 1967 ; O'Neill, 1968) telle que :

$$F_D = 3\pi\mu d_p U \quad (1.5)$$

Avec μ la viscosité dynamique (en Pa.s).

1.1.1.3 Force de portance

Pour des particules de petit diamètre tels que les colloïdes de diamètre d_p dans un écoulement cisaillé, Saffman (1965) a montré que la portance obéit à l'équation suivante :

$$F_P = \frac{1{,}615}{4} \mu U {d_p}^2 \sqrt{\frac{\left|\left(\frac{\partial U}{\partial y}\right)\right|}{\nu_f}} \cdot sgn\left(\frac{\partial U}{\partial y}\right) \quad (1.6)$$

Avec ν_f la viscosité cinématique en m^2.s^{-1} et $\partial U / \partial y$ correspond au taux de cisaillement dû au gradient de vitesse local.
Cette force de portance tient compte des effets d'inertie dans l'écoulement visqueux autour de la particule.

1.1.1.4 Forces supplémentaires

D'autres forces peuvent intervenir de façon additionnelle et, selon les conditions de l'écoulement, être considérées pour caractériser l'équilibre mécanique d'une particule au niveau d'une surface collectrice (Tableau 1.1).

Tableau 1.1 - Importance relative des forces par comparaison à la force de traînée (modifié de Kleinstreuer & Feng, 2013)

Nom de la force	Origine de la force	Importance relative par rapport à la force de traînée	Négligeable par rapport à la force de traînée ?
$\vec{F}_{Basset}$	Résultat de l'accélération du fluide autour de la particule	$R_{Basset} = \left\|\frac{\vec{F}_{Basset}}{F_D}\right\| \sim \sqrt{\frac{\rho_f}{\rho_p}\frac{\tau_s}{t}}\tau_s = \frac{\rho_p d_p^2}{18\,\mu_f}$	$\varrho_f << \varrho_p$ et τ_s est petit pour des particules submicroniques → négligeable
$\vec{F}_{pression}$	Causé par le gradient de pression	$R_{pression} = \left\|\frac{\vec{F}_{pression}}{F_D}\right\| \sim d_p^2 \nabla p$	d_p petit et gradient de pression autour de la particule très faible → négligeable
$\vec{F}_{Faxen}$	Terme de correction de la force de traînée près de la paroi (champ de cisaillement non uniforme)	$R_{Faxen} = \left\|\frac{\vec{F}_{Faxen}}{F_D}\right\| \sim \left(\frac{d_p}{L}\right)^2$	d_p petit → négligeable
$\vec{F}_{Magnus}$	Force de portance induite par la rotation de la particule	$R_{Magnus} = \left\|\frac{\vec{F}_{Magnus}}{F_D}\right\| \sim \frac{\rho_f d_p^2}{\mu_f}\|\vec{\omega}\|$	d_p petit → négligeable

1.1.2 Forces d'origine physico-chimique

1.1.2.1 Forces de Van der Waals

Les forces de Van der Waals sont dues à l'interaction d'origine électromagnétique entre dipôles permanents ou induits. Lorsque la distance entre deux particules est suffisamment faible (de l'ordre de quelques centaines d'Angströms), ces forces de courte portée sont attractives.
Dans le cas de l'interaction entre deux sphères identiques de rayon R et séparées par une distance r (distance centre à centre), l'énergie d'interaction de Van der Waals est donnée par l'équation suivante (Hamaker, 1937) :

$$E_{VdW} = -\frac{A}{6}\left(\frac{2R^2}{r^2-4R^2} + \frac{2R^2}{r^2} + \ln\left(\frac{r^2-4R^2}{r^2}\right)\right) \quad (1.7)$$

Avec A la constante de Hamaker calculée à partir des propriétés optiques du milieu. Pour deux sphères constituées d'un même matériau 1 et dispersées dans un milieu 2, la constante de Hamaker peut être exprimée comme suit :

$$A = A_{22} + A_{11} - 2A_{21} \approx \left(A_{22}^{\frac{1}{2}} - A_{11}^{\frac{1}{2}}\right)^2 \quad (1.8)$$

Généralement, A est comprise entre 10^{-19} et 10^{-21} J.

1.1.2.2 Interaction de double couche électrique

La mise en présence d'une particule ou surface chargée dans un milieu aqueux induit un arrangement spécifique des ions en solution dû aux forces électrostatiques. Cette distribution de charge et de potentiel en fonction de la distance à la surface de la particule est décrite par la théorie de la double couche électrique. Plusieurs modèles ont été développés successivement afin de décrire cet agencement, dont le modèle proposé par Gouy-Chapman (1917) puis le modèle de Stern (1924) qui a apporté une correction importante à la théorie précédente en tenant compte du volume des ions. Il admet que le voisinage immédiat de la surface chargée est constitué d'une première couche compacte immobile où des contre-ions sont solidement fixés (couche de Stern) puis d'une deuxième couche où les ions sont répartis de façon hétérogène, en fonction de l'équilibre entre les forces électrostatiques et l'agitation thermique (couche diffuse dite de Gouy-Chapman).

Lorsqu'une particule se déplace, elle déplace solidairement sa couche de Stern et une partie de sa couche diffuse. Il existe alors un plan situé entre la couche de Stern et la couche diffuse qui marque une différence en termes de vitesse du fluide ; ce plan est nommé plan de cisaillement ou plan de glissement (Figure 1.3). La différence de potentiel entre le potentiel de ce plan et la solution électriquement neutre est appelée potentiel zêta et noté ζ. Positif ou négatif, ce potentiel permet de comprendre les interactions entre particules dans une solution (répartition des charges électriques) et d'avoir ainsi une indication sur la stabilité de la suspension.

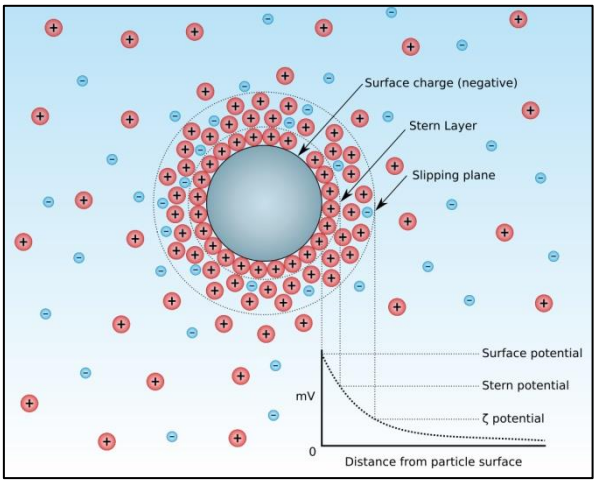


Figure 1.3 - Représentation schématique de la double-couche électrique selon le modèle de Stern pour une particule sphérique.

L'épaisseur de la double-couche électrique est appelée longueur de Debye-Huckel, obtenue selon l'équation suivante :

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\varepsilon k_B T}{2 N_A e^2 I}} \tag{1.9}$$

Où ε correspond à la permittivité diélectrique du solvant, k_B est la constante de Boltzmann environ égale à $1{,}38.10^{-23}$ $J.K^{-1}$, T est la température exprimée en kelvins, N_A est le nombre d'Avogadro égal à $6{,}022.10^{23}$ mol^{-1}, e est la charge élémentaire égale à $1{,}6.10^{-19}$ C et I la force ionique de la solution exprimée en $mol.L^{-1}$.

Dans le cas de l'interaction entre une sphère chargée et une surface plane, l'expression de l'énergie potentielle de double couche E_{DC} est finalement donnée par l'équation de Hogg (1966) :

$$E_{DC} = \pi \varepsilon_p \varepsilon_0 R \left[2\zeta_p \zeta_g \ln\left(\frac{1 + e^{-\kappa d}}{1 - e^{-\kappa d}}\right) + \left(\zeta_p^2 + \zeta_g^2\right) \ln\left(1 - e^{-2\kappa d}\right) \right] \tag{1.10}$$

Où ε_p et ε_0 correspondent respectivement aux permittivités électriques du milieu et du vide égale à $8{,}854.10^{-12}$ $F.m^{-1}$, R correspond au rayon de la sphère considérée, ζ_p et ζ_g sont respectivement les potentiels zêta de la particule et du collecteur en volts, $\varkappa^{-1}$ la longueur de Debye et d la distance entre la particule et la surface collectrice en m.

1.1.2.3 Théorie de Derjaguin, Landau, Verwey, Overbeek (DLVO)

Le comportement des colloïdes dans une suspension est décrit par la théorie DLVO (Derjaguin et Landau, 1941 ; Verwey et Overbeek, 1948) qui considère le potentiel d'interaction

total ϕ entre deux particules comme étant la superposition des interactions de Van der Waals (potentiel attractif et dispersif) et des forces électrostatiques (potentiel répulsif de la double couche électrique) tel que :

$$\phi_{tot} = E_{VdW} + E_{DC} \quad (1.11)$$

Ainsi, dans le cas de surfaces de même nature distantes de d, les deux effets s'opposent ; en fonction de leur éloignement, le comportement des particules dépend de l'énergie totale d'interaction (Figure 1.4).

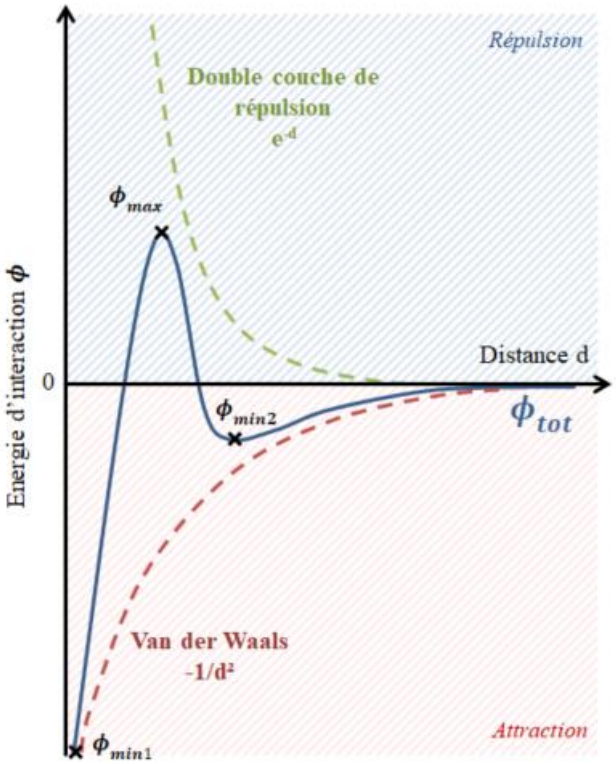


Figure 1.4 - Evolution du profil de l'énergie d'interaction totale en fonction de la distance d de séparation entre deux surfaces selon la théorie DLVO.

Lorsque deux particules sont largement séparées, les forces électrostatiques et celles de Van der Waals ne sont pas prises en compte ; l'énergie d'interaction est globalement nulle et les particules diffusent lentement. Lorsqu'elles se rapprochent, les forces d'attraction de courte portée dominent les forces de répulsion électrostatiques qui résultent du recouvrement des doubles couches (déplacement des contre-ions). La diminution de la distance entre les particules est associée à l'augmentation plus rapide du potentiel d'attraction, faisant ainsi apparaitre un puits de potentiel appelé minimum secondaire (ϕ_{min2}) dans lequel les particules peuvent s'agréger (agrégat fragile). La diminution de la force ionique et/ou l'augmentation de la charge de surface entraine la diminution de la profondeur de ce puits.

Le potentiel électrostatique devient plus important que celui de Van der Waals lorsque la distance entre particules continue à diminuer, et conduit à la formation d'une barrière énergétique associée à la stabilité de la suspension. Plus la hauteur de cette barrière (ϕ_{max}) est importante, plus la suspension est considérée stable. Lorsque l'énergie de la particule est suffisante, cette dernière peut franchir la barrière énergétique pour se retrouver à proximité de la paroi du grain collecteur (prédominance des forces de Van der Waals pour de très faibles distances de séparation). La

particule est attirée par un puits de potentiel infini appelé minimum primaire (ϕ_{min1}) et l'agrégation est alors irréversible.

1.1.2.4 Limites de la théorie DLVO

La théorie DLVO repose sur des équations dont les domaines de validité sont relativement restreints ; les hypothèses d'application sont spécifiques (charge de surface diffuse, surface des particules lisse, charges ponctuelles…) et d'autres forces peuvent intervenir dans le profil du potentiel d'interaction totale.
Parmi elles, certaines sont de courte portée telles que :

- Les forces de répulsion de Born qui résultent de la répulsion entre nuages électroniques des atomes ;
- Les forces de solvatation (hydratation si le solvant est l'eau) dues à la répulsion qui provient de la polarisation des molécules d'eau ou de solvant.

La prise en compte des forces de répulsion de Born permet de donner une profondeur finie au puits de potentiel associé au minimum primaire ϕ_{min1}.

En prenant en compte ces forces de répulsion de Born notées E_B, l'expression de l'énergie totale d'interaction ϕ_{tot} devient :

$$\phi_{tot} = E_{VdW} + E_{DC} + E_B \tag{1.12}$$

Ceci a pour effet d'augmenter les effets répulsifs, notamment pour des distances de séparation très faibles entre deux surfaces.

A longues distances, les déviations observées par rapport à la théorie DLVO peuvent être attribuées aux forces hydrophobes et aux interactions stériques. Dans le premier cas, lorsqu'une surface ne possède ni groupes polaires ni sites de liaison hydrogène, la surface est dite hydrophobe ; le contact entre la surface et l'eau est minimisé, ce qui peut provoquer une agrégation. Pour les interactions stériques, l'ajout de chaines polymères à la surface d'une particule permet d'augmenter l'épaisseur de la couche adsorbée ; les autres particules ne peuvent pas s'approcher suffisamment pour être soumises à l'attraction de Van der Waals.

1.2 Hydrodynamique en milieu poreux

1.2.1 Généralités sur les milieux poreux

Un milieu poreux est constitué d'une matrice solide et de pores qui correspondent à des vides permettant la circulation éventuelle d'un fluide. Les pores peuvent être isolés ou interconnectés.

1.2.1.1 Porosité

La porosité est l'une des propriétés principales d'un milieu poreux. Notée ω, elle représente la fraction de vide qu'il contient et se définie selon l'équation suivante :

$$\omega = \frac{V_p}{V_t} \tag{1.13}$$

Où V_p représente le volume des pores connectés et V_t le volume total du milieu poreux (matrice solide et pores). La porosité est exprimée sans unité ou en pourcentage.

Les milieux poreux naturels ont une porosité intrinsèque difficilement modifiable.

Le tableau suivant (Tableau 1.2) donne les ordres de grandeur des porosités de certains matériaux.

Tableau 1.2 - Ordre de grandeur de porosité pour quelques milieux poreux

Matériaux	Porosité (%)
Sables et graviers	25-40
Sables fins	30-35
Argile	40-50
Craie	10-40
Calcaires fissurés	1-10

1.2.1.2 Surface spécifique

La surface spécifique constitue un paramètre important notamment dans le cadre des interactions fluides-structure avec l'adsorption de particules sur les grains du milieu poreux. Notée a_s, elle est définie tel que :

$$S_s = \frac{a_i}{V_t} \tag{1.14}$$

Où a_i correspond à l'aire couverte par l'interface solide-pores à l'extérieur des particules solides et V_t le volume total poreux. La surface spécifique est exprimée en $m^2.m^{-3}$.

De façon générale, plus les grains qui constituent le milieu poreux sont fins, plus la surface spécifique est importante.

1.2.1.3 Tortuosité

La tortuosité d'un milieu notée τ est une caractéristique utilisée pour décrire la géométrie complexe du chemin de passage continu à travers le réseau poral du milieu considéré. Cette propriété adimensionnelle peut être définie telle que :

$$\tau = \frac{L_e}{L} \tag{1.15}$$

Où L_e correspond à la longueur de la ligne de courant entre deux points du milieu poreux et L la longueur de la ligne droite séparant ces deux points.

1.2.1.4 Perméabilité

La perméabilité, notée k, représente la capacité d'un milieu poreux à laisser s'écouler un fluide sous l'effet d'un gradient de pression. Les variations de la perméabilité peuvent être importantes selon le matériau/milieu poreux considéré (Figure 1.5) ; la perméabilité dépend en effet du nombre, de la géométrie, de la taille et essentiellement de l'interconnectivité des pores.

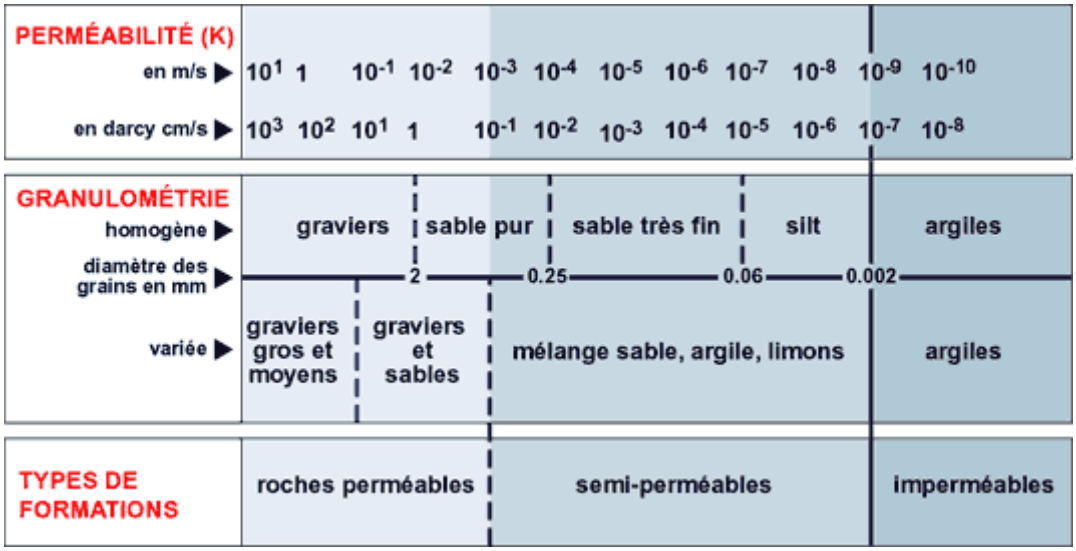


Figure 1.5 - Ordre de grandeur de quelques milieux poreux (Université de Lausanne)

La loi de Darcy (Darcy, 1856) permet d'exprimer le débit du fluide traversant le milieu sous l'action d'un gradient de pression par l'intermédiaire de la perméabilité telle que :

$$Q = -kA \cdot \frac{\Delta P}{\eta L} \tag{1.16}$$

Où Q représente le débit volumique en $m^3.s^{-1}$, k la perméabilité du milieu poreux en m^2 ou Darcy (1 Darcy = $0{,}97.10^{-12}$ m^2), A l'aire de la section transversale en m^2, ΔP la perte de charge aux bornes du milieu poreux en Pa, L la longueur du milieu en m et η la viscosité du fluide en Pa.s.

L'application de la loi de Darcy repose sur les conditions suivantes : l'écoulement doit être laminaire (par opposition à un régime turbulent) et le milieu est considéré homogène, isotrope et continu. Le fluide n'interagit pas avec le milieu.

La littérature fait ainsi état de différents modèles permettant de calculer la perméabilité à partir des caractéristiques intrinsèques au milieu poreux parmi lesquels :

- Le modèle de Hazen-Taylor développé par Hazen (1911) avec une équation empirique permettant de prédire la perméabilité d'un sable ou d'un gravier propre saturé tel que :

$$K_{Hazen}(20°C, e_{max}) = 1{,}5 \cdot d_p^2 \tag{1.17}$$

  Où le diamètre du grain d_p est en mm (Hazen, 1911 ; Taylor, 1948) et e_{max} correspond à l'indice maximal des vides. Ce modèle est également soumis à des conditions d'application ;
- Le modèle de Kozeny-Carman ; proposée par Kozeny (Kozeny, 1927) puis modifiée par Carman (Carman, 1937), l'équation de Kozeny-Carman permet d'obtenir la perméabilité k tel que :

$$k = \frac{\omega^3}{c \cdot (1-\omega)^2 \cdot S_s^2} \tag{1.18}$$

Où k est exprimé en m^2, S_s est la surface spécifique en m^{-1}, c correspond à la constante de Kozeny-Carman (équivalent à 5 dans le cas de sphères uniformes, sans unité) et ω la porosité ;

- Le modèle de Chapuis (Chapuis, 2004) est basé sur les prédictions du modèle de Kozeny-Carman selon l'équation suivante :

$$k = 2{,}4622 \cdot \left[\frac{d_p^2 \cdot e^3}{1+e}\right]^{0{,}7825} \quad (1.19)$$

Où k est exprimé en $cm.s^{-1}$, d_p le diamètre des grains en mm et e l'indice des vides entre 0,3 et 1. L'indice des vides correspond au rapport exprimé en pourcentage entre le volume des vides et le volume solide.

1.2.2 Approche théorique du transport particulaire en milieu poreux

L'étude de l'écoulement d'un fluide au sein d'un milieu poreux est relativement complexe et s'appuie principalement sur deux approches théoriques (Figure 1.6) :

- La première s'intéresse à l'écoulement du fluide sans les particules, alors décrit par les équations usuelles de la mécanique des fluides. Il s'agit de résoudre les équations de continuité (advection-diffusion) et de Navier-Stokes, équations aux dérivées partielles conduisant aux champs de vitesse et de pression et permettant d'obtenir les valeurs de la pression et des composantes de la vitesse en tout point et tout instant. Cette description correspond à l'approche eulérienne pour le fluide ;
- La deuxième approche se concentre sur l'application du principe fondamental de la dynamique (2ème loi de Newton) à la particule soumise à des forces extérieures dont celles dues au fluide (mouvement brownien...). Il s'agit de décrire la trajectoire de la particule à l'approche de la surface collectrice en résolvant l'équation différentielle ordinaire donnant le vecteur vitesse. Cette description correspond à l'approche lagrangienne pour la particule.

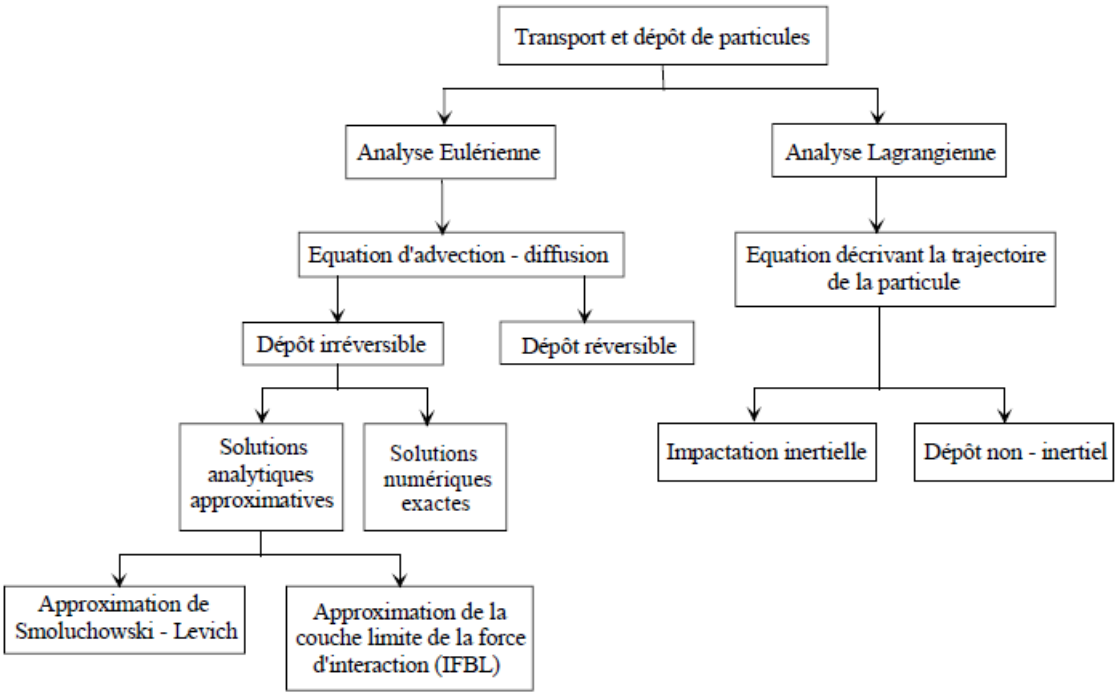


Figure 1.6 - Principales approches et méthodes pour calculer le taux de dépôt des particules (Canseco Ruiz, 2009).

L'approche eulérienne est développée pour établir l'équation de transport particulaire au sein d'un milieu poreux.

L'équation d'advection-diffusion est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} + \nabla \vec{J} = Q_S \tag{1.20}$$

Où $\frac{\partial C}{\partial t}$ décrit la variation temporelle de la concentration en point de coordonnée x, $\vec{J}$ est le vecteur associé au flux de particules et Q_s est un terme source.

Le flux de particules est défini tel que :

$$\vec{J} = -D_T \cdot \nabla C + \overrightarrow{v_p} C + \frac{D_T \vec{F}}{k_B T} C \tag{1.21}$$

Avec D_T le tenseur de diffusion des particules, $\overrightarrow{v_p}$ le vecteur vitesse des particules et $\vec{F}$ le vecteur des forces externes parmi lesquelles figurent les forces colloïdales définies précédemment dans le cadre de la théorie DLVO (et non-DLVO).

En se plaçant dans le cadre d'un transport unidimensionnel de particules colloïdales, d'un régime non stationnaire, et en ne prenant pas en compte l'effet des forces externes, l'équation d'advection-diffusion devient :

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_h \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} - v_p \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} - K_d C(x,t) \tag{1.22}$$

Où le dernier terme correspond au terme source qui prend en compte le dépôt des particules sur les grains du milieu poreux. K_d est le coefficient cinétique de dépôt des particules, C(x,t) la concentration des particules dans la suspension mobile, v_p la vitesse interstitielle moyenne et D_h correspond au coefficient de dispersion hydrodynamique longitudinal des particules.

1.2.3 Dépôt de particules

1.2.3.1 Structure interne – Sites de rétention des particules

La structure des pores joue un rôle clé dans l'adsorption des particules colloïdales ; les particules qui circulent peuvent en effet subir certains blocages dans différents sites de rétention distingués par Delanchambre (1966) (Figure 1.7) :

- Sites de surface : la particule est retenue à la surface du milieu poreux ;
- Sites de crevasse : la particule est piégée de façon mécanique lorsqu'elle se trouve au voisinage de la ligne de contact entre deux surfaces convexes ;
- Sites de caverne : ces sites ont des formes concaves, généralement dans les coudes des pores, qui entrainent alors un écoulement nul (le fluide qui s'y trouve est immobile) ;
- Sites d'étranglement ou de restreint : la particule est piégée par exclusion de taille, en amont d'un rétrécissement de pores dont les dimensions sont inférieures à celles de la particule en suspension.

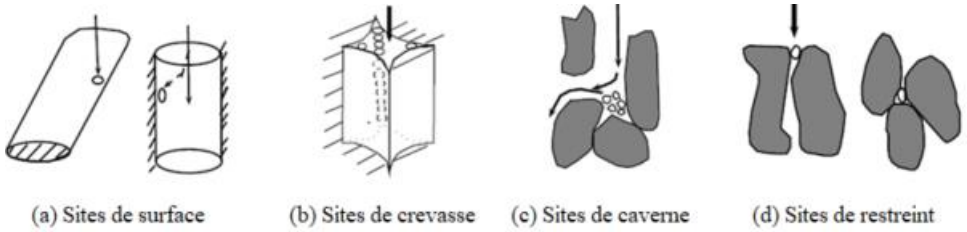


Figure 1.7 - Sites de rétention (Delanchambre, 1966).

1.2.3.2 Mécanismes de rétention/capture

Les particules en suspension peuvent subir un entrainement vers l'un des sites de rétention précédemment décrits. Lors de leur transport, les collisions entre une particule et un grain du milieu poreux appelé « collecteur » peuvent entrainer la capture de la particule selon différents mécanismes dont les trois principaux sont présentés ci-dessous (Figure 1.8).

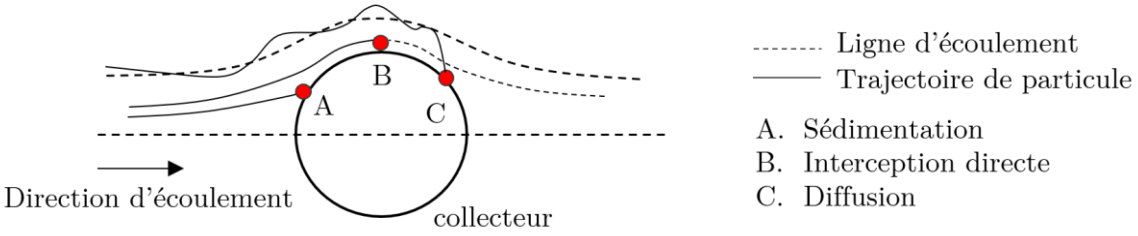


Figure 1.8 - Mécanismes dominants de capture d'une particule autour d'un collecteur sphérique (Tien et Payatakes, 1979).

- La sédimentation (cas A) correspond à la collision des particules avec un collecteur, sous l'action de la force de pesanteur ou en raison de leur inertie lors des changements de direction d'écoulement. Ce mécanisme est lié à la différence de densité entre la particule et la phase continue ainsi qu'à la taille des particules qui vont alors dévier des lignes de courant. La vitesse de sédimentation est donnée par la loi de Stokes (1.1) et celle-ci est négligeable lorsque les particules ont une masse volumique sensiblement égale à celle du fluide ou une taille très petite ;
- L'interception directe (cas B) a lieu lorsqu'une particule suivant une ligne de courant proche du grain collecteur (distance inférieure à la taille de la particule) rentre en collision avec ce dernier et est ainsi arrêtée ;
- La diffusion (cas C) est un mécanisme de capture résultant du mouvement brownien aléatoire des particules dans le fluide, entrainant ainsi leur déviation des lignes de courant au voisinage des collecteurs et leur potentielle rétention. Le coefficient de diffusion est donné par l'équation suivante :

$$D = \frac{k_b \cdot T}{3 \cdot \pi \cdot \mu \cdot d_p} \tag{1.23}$$

Où k_b est la constante de Boltzmann et T la température absolue.

D'autres mécanismes sont évoqués dans la littérature avec notamment la rétention due aux effets hydrodynamiques précédemment évoqués (effet non uniforme de cisaillement qui entraine la migration latérale des particules), le blocage d'une particule dans un volume mort (peu probable pour les petites particules, capables de dévier des lignes de courant) ou encore le dépôt dû aux forces électrostatiques.

1.2.3.3 Régimes de dépôt

Le transport de particules au sein d'un milieu poreux est induit par l'action de plusieurs phénomènes tel que la convection, la diffusion moléculaire, la dispersion cinématique ou la dispersion hydrodynamique. Ces mécanismes de transport, associés aux interactions de surface physico-chimiques répulsives ou attractives, gouvernent le dépôt des particules au voisinage des grains.

Le nombre de Péclet est un nombre adimensionnel représentant le rapport du transfert par convection forcée et du transport par diffusion (Chauveteau *et al.*, 1998) ; il est défini par l'équation suivante :

$$Pe_g = \frac{U \cdot a_g}{D} \tag{1.24}$$

Où U est la vitesse du fluide en $m.s^{-1}$, a_g le rayon du grain collecteur et D le coefficient de diffusion brownien.

Le nombre de Péclet est particulièrement adéquat pour étudier le dépôt des particules ; selon sa valeur, quatre régimes successifs sont distingués :

- Pour $Pe_g << 1$, la diffusion est le mécanisme prédominant et la convection est négligeable. Ce régime concerne généralement les écoulements très lents ou le transport de colloïdes très petits.

- Lorsque $Pe_g >> 1$, le régime convectif-diffusif contrôle le dépôt ; à l'approche du collecteur, une couche de diffusion d'épaisseur δ_d peut être définie selon l'équation suivante (Figure 1.9) :

$$\delta_d \propto a_g \cdot Pe_g^{-1/3} \tag{1.25}$$

Cette épaisseur δ_{d0} est minimale au point de stagnation en amont du collecteur (Levich, 1962).

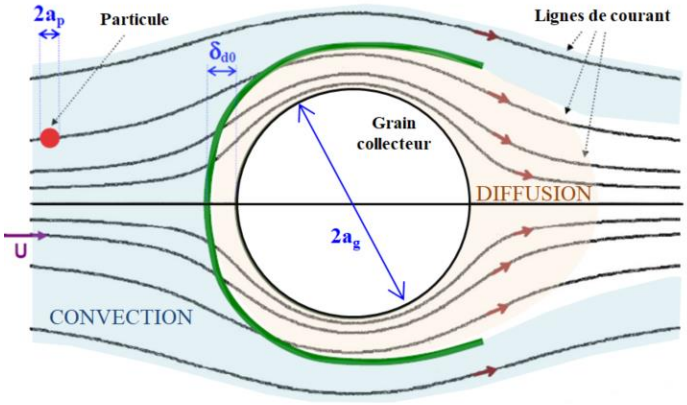


Figure 1.9 - Représentation d'un grain collecteur et d'une particule en approche avec les lignes de courant et la forme (en vert) de la couche de diffusion (modifié de Rousseau *et al.*, 2007).

La diminution de cette couche δ_d associée à une augmentation du nombre de Péclet signifie que les effets de diffusion ont une contribution décroissante au dépôt de particules.

- Le troisième régime est qualifié d'hydrodynamique, à haut nombre de Péclet. Ce régime devient prépondérant lorsque δ_d devient inférieure à la somme de la taille de la particule de rayon a_p et la couche d'interaction δ_i (Nabzar *et al.*, 1997 ; Russel *et al.*, 1996) tel que :

$$\delta_d < 2a_p + \delta_i \tag{1.26}$$

La limite supérieure du régime de convection-diffusion est donc associée à une valeur critique du nombre de Péclet, Pe_C, exprimé selon l'équation suivante (Rousseau *et al.*, 2007) :

$$Pe_c = Pe_c^{geom} \cdot \left(\frac{2a_p/\delta_i}{1 + 2a_p/\delta_i} \right)^3 \tag{1.27}$$

Où le nombre de Péclet critique géométrique Pe_c^{geom} peut être défini tel que $Pe_c^{geom} \propto (\frac{a_g}{a_p})^3$.

Finalement, à partir de la valeur δ_{d0} au point de stagnation en amont, une valeur conventionnelle de Pe_c^{geom} peut être calculée :

$$Pe_c^{geom} = 0{,}178 \cdot \left(\frac{a_g}{a_p} \right)^3 \tag{1.28}$$

Lors de ce régime, les forces hydrodynamiques favorisent le dépôt des particules en les « poussant » vers le minimum primaire ϕ_{min1}.

- Enfin, pour des valeurs très importantes du nombre de Péclet, les forces répulsives de surface du grain collecteur sont contrebalancées par des forces hydrodynamiques suffisantes ; la probabilité de dépôt d'une particule au voisinage du collecteur est alors égale à 1 (Rousseau *et al.*, 2007).

1.2.3.4 Théorie de la filtration et coefficient d'efficacité de collection

La caractérisation et la quantification du dépôt de particules colloïdales dans un milieu poreux sont réalisées à travers l'étude de certains paramètres tel que le coefficient cinétique de dépôt K_d précédemment introduit (1.22). Certains travaux ont montré dans un premier temps que ce coefficient obéit à une loi de type Arrhenius, avec une décroissance exponentielle lorsque la barrière énergétique ϕ_{max} augmente (Ruckenstein et Prieve, 1976) :

$$K_d \propto \exp\left(\frac{-|\phi_{max}|}{k_B T} \right) \tag{1.29}$$

D'autres expressions permettant de calculer ce coefficient ont été développées, notamment dans le cadre de la théorie de la filtration (« clean-bed filtration theory » - CFT) initialement développée par Iwasaki qui décrit le dépôt comme étant le résultat d'un processus en deux étapes, le transport puis l'attachement à la surface du collecteur. L'approche est probabiliste en termes de collisions entre les particules incidentes et les grains collecteurs, et ce pour les premiers temps de l'injection ; cette période initiale est caractérisée par la grande disponibilité en termes de surface pour l'adsorption.

Le dépôt est alors caractérisé par une cinétique de premier ordre tel que (Iwasaki, 1937) :

$$\frac{\partial C}{\partial x} = -\lambda C \tag{1.30}$$

Où C correspond à la concentration de la suspension à une profondeur x, et λ le coefficient de filtration lié au coefficient cinétique de dépôt K_d par la relation $K_d = \lambda u$ (où u correspond à la vitesse apparente du fluide).

Dans le cadre de cette théorie, un coefficient traduisant l'efficacité de collection initiale des grains noté η a été introduit. Il se définit comme le ratio entre le flux de particules déposées et le flux de particules incidentes et traduit ainsi la fréquence de collisions des particules avec la surface d'un grain. Finalement, l'efficacité de collection est donnée par l'équation suivante (Yao *et al.*, 1971) :

$$\frac{dC}{dL} = -\frac{3}{2}\frac{(1-\phi)}{d_p}\alpha\eta C \tag{1.31}$$

Avec ϕ la porosité, L la longueur du lit poreux, d_p le diamètre de la particule, η l'efficacité de collection, C la concentration en particules de la suspension et α un coefficient de collision efficace (efficacité de collision dynamique) qui dépend de la chimie du système considéré. Généralement, ce coefficient oscille entre deux valeurs :

- Lorsque α = 1 (système stable, absence de barrière de potentiel), $\eta = h_0$;
- Lorsque le dépôt est réversible et il existe une barrière de potentiel, α est inférieur à 1 et $\eta = \alpha h_0$.

L'intégration de (1.31) permet d'obtenir :

$$ln\frac{C}{C_0} = -\frac{3L}{2}\frac{(1-\phi)}{d_p}\alpha\eta \tag{1.32}$$

Soit finalement :

$$\eta = -\frac{2}{3L}\frac{d_p ln\left(\frac{C}{C_0}\right)}{(1-\phi)} \tag{1.33}$$

Pour les mécanismes principaux de capture des particules colloïdales, des expressions des efficacités de collection ont été proposées en fonction du nombre de Péclet (Tableau 1.3).

Tableau 1.3 - Expressions des coefficients d'efficacité de collection proposées pour les principaux mécanismes de rétention ; U correspond à la vitesse interstitielle, d_p et d_g le diamètre de la particule et du grain collecteur respectivement, ϱ_p et ϱ_f les masses volumiques de la particule et du fluide respectivement et Pe le nombre de Péclet.

Mécanisme de rétention	Expression du coefficient d'efficacité de collection
Sédimentation	$\eta_s = \frac{(\rho_p - \rho_f)}{18\mu U} g d_p^2$
Interception	$\eta_I = \frac{3}{2}\left(\frac{d_p}{d_g}\right)^2$
Diffusion	$\eta_D = 4{,}04 Pe^{-2/3}$

1.2.3.5 Fonction dynamique de blocage et ombrage dynamique

Fonction de blocage

La théorie de la filtration précédemment introduite n'est valable que pour la première période après injection, lors de la phase initiale d'adsorption ; pour prendre en compte le fait que la surface disponible diminue et que les particules absorbées influent sur le processus d'adsorption, la fonction dynamique de blocage B(θ) a été introduite (Adamczyk *et al.*, a) 1992 b) 1994) avec θ le recouvrement de surface (Johnson et Elimelech, 1995) tel que l'équation d'advection-dispersion (1.22) peut s'écrire :

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_h \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} - v_p \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} - \frac{S_s}{\pi R^2} \frac{\partial \theta}{\partial t} \tag{1.34}$$

Avec R le rayon des particules et S_s la surface spécifique définie comme étant l'aire du grain collecteur par unité de longueur tel que :

$$S_s = \frac{3(1-\phi)}{\phi R} \tag{1.35}$$

La dérivée du recouvrement de surface par rapport au temps est :

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \pi R^2 C B(\theta) \tag{1.36}$$

Où C correspond à la concentration en particules de la suspension.

Deux modèles très communs sont utilisés pour décrire la fonction dynamique de blocage B(θ) : le modèle de Langmuir et le modèle d'adsorption séquentielle aléatoire (« Random Sequential Adsorption » ou RSA) qui correspond à une approche statistique développée par Schaaf et Talbot (Schaaf et Talbot, 1989) pour des particules qui n'interagissent pas entre elles.

Langmuir (Langmuir, 1918) a ainsi proposé un modèle linéaire tel que :

$$B(\theta) = \frac{\theta_{max} - \theta}{\theta_{max}} = 1 - \beta\theta \tag{1.37}$$

Avec β le paramètre représentant la fraction de surface exclue (couverte) suite au dépôt d'une particule soit l'inverse du recouvrement de surface maximum.

La précédente relation développée par Langmuir dans le cadre du modèle d'adsorption moléculaire n'est valable qu'au premier ordre ; pour tenir compte de la non-linéarité de blocage, d'autres relations plus élaborées ont été proposées telles que dans le cadre du modèle d'adsorption séquentielle aléatoire. Ce modèle considère que chaque site a la même probabilité d'adsorption, qui est supposée irréversible. La formation de multi couches est également mise de côté et la fonction de blocage est finalement exprimée selon la relation suivante :

$$B(\theta) = 1 - \sum Coeff_n \theta^n \tag{1.38}$$

Schaaf et Talbot ont déterminé les coefficients (Coeff) pour différentes géométries de particules inertes. Cependant les particules sont généralement chargées dans les systèmes colloïdaux à l'étude ; Johnson et Elimelech (Johnson & Elimelech, 1995) ont donc modifié ce modèle RSA

dans le but de pouvoir l'appliquer à un système particule-collecteur (forme sphérique pour les deux) ayant des charges opposées tel que :

$$B(\theta) = 1 - 4\theta_\infty\beta\theta + \frac{6\sqrt{3}}{\pi}(\theta_\infty\beta\theta)^2 + \left(\frac{40}{\sqrt{3}\pi} - \frac{176}{3\pi^2}\right)(\theta_\infty\beta\theta)^3 + \cdots \quad (1.39)$$

Avec $\theta_\infty\beta$ correspondant à un facteur correctif où θ_∞ est le recouvrement de surface maximum pour des sphères inertes.

D'autres expressions ont été proposées afin d'inclure dans le modèle RSA les effets des interactions de double couche et les effets hydrodynamiques (Ko *et al.*, 2000).

Ombrage dynamique

L'ombrage dynamique est un phénomène contribuant au blocage et caractérisé par l'existence d'une zone d'exclusion sur la surface collectrice à proximité immédiate d'une particule déposée (Ko et Elimelech, 2000) (Figure 1.10) ; la probabilité qu'une particule adjacente vienne s'adsorber à ce niveau est plus faible.

L'étendue de la zone d'ombrage également appelée zone d'écrantage est définie par le couplage entre les interactions électrostatiques de la double couche et les interactions hydrodynamiques liées à l'intensité de l'écoulement et à la taille des particules.

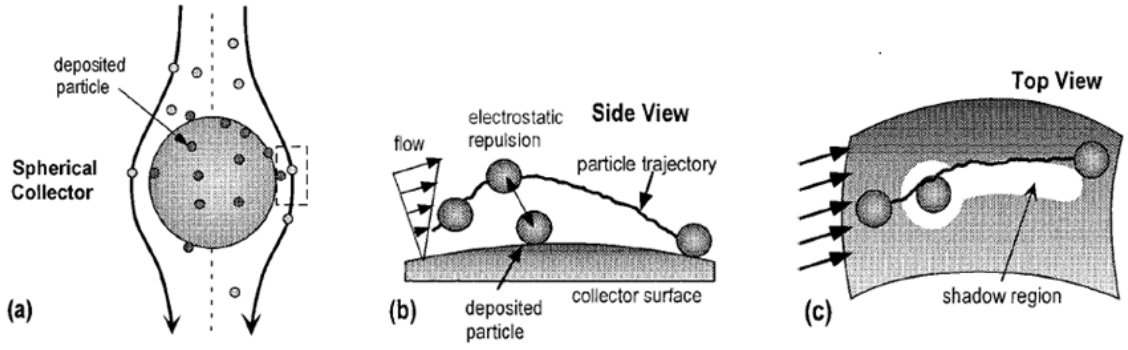


Figure 1.10 - Description schématique de l'ombrage dynamique avec (a) la vue de l'écoulement autour d'un collecteur sphérique, (b) la vue latérale de la région délimitée en pointillés, où l'écoulement tangent et l'effet d'ombrage sont maximal à un angle de 90 degrés par rapport au point de stagnation en amont et (c) la région d'ombrage dynamique en aval d'une particule déposée (issu de Ko et Elimelech, 2000).

Le temps caractéristique de diffusion d'une particule de faible dimension est très faible devant la vitesse d'écoulement ; l'ombrage dynamique est ainsi réduit. À conditions hydrodynamiques égales, pour des colloïdes de taille plus importante, la zone d'ombrage augmente, réduisant ainsi l'espace disponible pour le dépôt de nouvelles particules incidentes.

1.2.3.6 Désorption

La désorption est un phénomène moins étudié que l'adsorption de particules sur une surface mais il est néanmoins nécessaire de le considérer dans les processus qui agissent sur l'écoulement d'une suspension au sein d'un milieu poreux. Tel que pour le dépôt, le détachement est quantifié par un coefficient cinétique dit de désorption ou relargage, noté K_r.

Si l'on considère le profil non-DLVO, deux cas de figure sont possibles, selon si la particule adsorbée se trouve dans le minimum primaire ou dans le minimum secondaire (Figure 1.11).

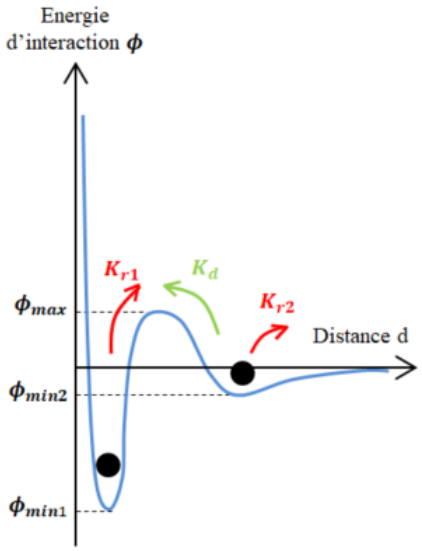


Figure 1.11 - Profil non-DLVO avec les coefficients cinétiques d'adsorption Kd et de désorption Kr1 et Kr2.

Le coefficient cinétique de désorption est donc en réalité la somme de deux coefficients caractérisés par une barrière spécifique tel que :

$$K_{r1} \propto \exp\left(-\frac{|\phi_{max}-\phi_{min1}|}{k_B T}\right) \text{ et } K_{r2} \propto \exp\left(-\frac{|\phi_{min2}|}{k_B T}\right) \quad (1.40)$$

L'équation d'advection-diffusion (1.22) peut alors être modifiée de façon à prendre en compte la désorption dans les processus régissant le dépôt des particules :

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_h \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} - v_p \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} - K_d \psi C(x,t) + \frac{\rho_m}{\phi_0} K_r S(x,t) \quad (1.41)$$

Où ϱ_m correspond à la masse volumique apparente du milieu poreux, ϕ_0 sa porosité initiale, K_r le coefficient cinétique de désorption et S(x,t) la concentration de particules déposées par unité de masse et qui peuvent ainsi se désorber.

Finalement, l'équilibre mécanique d'une particule sur une surface plane se traduit par l'égalité des forces et couples que les particules adsorbées subissent (Figure 1.12), et qui favorisent ainsi l'adsorption ou la désorption.

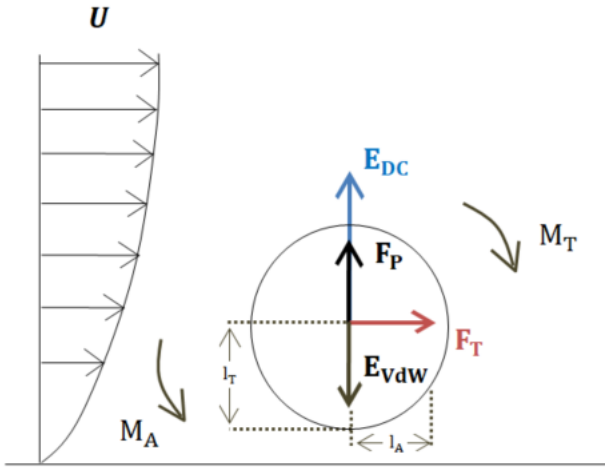


Figure 1.12 - Forces agissant sur une particule à proximité d'une surface sous l'effet d'un flux ; U correspond à la vitesse de l'écoulement, M_A et M_T aux moments d'adhésion et traînée, F_T et F_P correspondent aux forces de traînée et de portance respectivement, E_{DC} à l'énergie potentielle de double-couche et E_{VdW} à l'énergie d'interaction de Van der Waals.

Ces forces agissent à une certaine distance par rapport au centre de gravité de la particule ; cette distance est nommée bras de levier. L'action de ces forces se traduit ainsi par l'apparition d'un moment de traînée M_T et d'un moment d'adhésion M_A tel que :

$$M_T = F_T l_T \text{ et } M_A = F_{DLVO} l_A \quad (1.42)$$

Avec l_T et l_A les bras de levier associés aux forces électrostatiques (forces de Van der Waals et de double-couche réunies sous la dénomination de forces DLVO) et de portance.

Ces forces déterminent le mécanisme de désorption tel que la particule peut rouler sur la surface puis s'en détacher ($M_T > M_A$), glisser ou bien être projetée dans la direction perpendiculaire.

1.3 Synthèse des travaux - facteurs d'influence sur le dépôt et la rétention de particules colloïdales dans les milieux poreux.

Le dépôt de particules colloïdales est un phénomène observé dans le cadre de nombreuses applications d'ingénierie et procédés environnementaux. Une compréhension précise du transport et des interactions des particules colloïdales en suspension est alors nécessaire pour évaluer par exemple le devenir des contaminants (nettoyage des eaux usées et production d'eau potable), l'endommagement des formations géologiques (réduction de la perméabilité) ou encore la perte de tensioactifs dans la récupération assistée du pétrole. Une analyse quantitative et qualitative des phénomènes de dépôt et d'adsorption est également importante dans le cadre de la biologie et de la biophysique, notamment dans le cadre des études portant sur la formation de thrombose, le dépôt de bactéries ou l'immobilisation de protéines et enzymes.

A cet effet, de nombreuses études et expériences ont été réalisées en laboratoire afin de comprendre les mécanismes mis en jeu. La littérature est riche sur les essais d'injectivité qui permettent d'étudier par mesures directes ou indirectes les phénomènes physiques et chimiques qui régissent les écoulements.

1.3.1 Milieux utilisés pour l'étude expérimentale du colmatage

1.3.1.1 Historiquement : Travaux avec milieux poreux 3D

Principe

Traditionnellement, un échantillon de carotte d'un géomatériau est prélevé puis est soumis à une série d'expériences d'écoulement dans les conditions dites de réservoir en utilisant des fluides prélevés sur site ou analogues (fluides synthétiques reconstitués). Les mesures des débits en entrée et en sortie du milieu et de la perte de charge (Figure 1.13) permettent de remonter à certains paramètres d'écoulement dynamique tel que la perméabilité relative du géomatériau testé. La perte de charge est établie en mesurant la différence en pression entre l'amont et l'aval de la carotte.

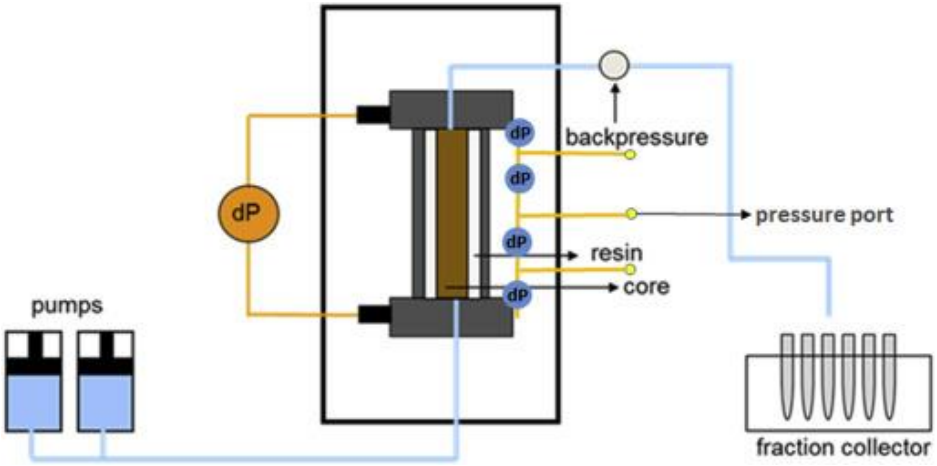


Figure 1.13 - Configuration de coreflood utilisée pour les injections de polymères à phase unique. Le régulateur de pression (« backpressure ») permet de se placer dans les conditions réservoir (issu de Unsal *et al.*, 2018).

L'analyse des résultats se fait ainsi à travers l'exploitation des données issues des courbes de percée qui donnent l'évolution du paramètre étudié, par exemple la concentration, en sortie du milieu poreux dans lequel le fluide a circulé.

Ces expériences sont particulièrement intéressantes puisqu'elles permettent de travailler sur un matériau réel issu de la subsurface et ainsi de travailler aux conditions similaires de porosité et perméabilité. Cependant, les observations issues de ces expériences d'injectivité résultent de mesures indirectes et généralement moyennées.

Certaines études expérimentales sont réalisées sur des milieux non consolidés ; du sable ou des billes de verre sont tassés dans des colonnes (opaques ou en verre) et permettent de reconstituer un milieu poreux 3D dans lequel les suspensions colloïdales sont injectées. Ces procédés permettent d'obtenir des résultats importants pour la compréhension des mécanismes mis en jeu mais la reproductibilité des expériences peut être mauvaise (tassage des lits de grains qui ne peut être identique) et selon le dispositif, la visualisation directe des mécanismes n'est pas toujours possible. Le tableau suivant récapitule les principales caractéristiques des études menées sur colonne (Tableau 1.4).

Tableau 1.4 - Tableau des principales caractéristiques associées aux expériences d'injectivité sur colonne.

Source	Objective	Porous Medium	Carrying fluid	Particle	Visualisation
Elimelech & O'Mella, 1990	Effects of chemical-colloidal interactions on the attachment efficiency	spherical glass beads	deionized water, salts and NaHC03	Polystyrene latex	Spectrophotometer
Nabzar & Chauveteau, 1997	Effect of electrostatic interactions on surface deposition and correlative permeability reduction	sharp-edged silicon carbide (SiC) grains	1-octanol	Polystyrene latex	UV spectrometer
Ahfir, Benamar et al., 2009	Influence of internal structure of porous media	glass beads columns crushed silica gravel flint packed in column	water, fluorescein (uranine)	Silts	- (Turbidimeter and fluorometer)
Ogolo et al, 2012	Nanoparticles as EOR agents	Sand packs	distilled water, brine, ethanol or diesel	Nanoparticles	-
Gerber et al, 2018	Clogging dynamics	monodisperse spherical glass grains	glycerol-water mixture	Polystyrene	NMR spectrometer + X-ray µtomography
Gerber et al, 2019	Adsorption of colloidal particles with variations of interparticle electrostatic interactions	monodisperse borosilicate beads	deionized water-DMSO	Latex	Confocal microscopy
Bizmark et al, 2020	Dynamics of colloidal deposition	hydrophilic glass beads	glycerol-water-DMSO	Polystyrene	Confocal microscopy
Gerbert et al, 2020	Breaktrough curve	monodisperse spherical borosilicate beads with strongly negative surface charge (SiO- groups)	glycerol-water	Nanoparticles	Confocal microscopy

L'ensemble de ces études expérimentales a permis de mieux comprendre les mécanismes impliqués dans la problématique de colmatage des milieux poreux par des particules et notamment l'impact des différents facteurs pouvant influer sur le transport et le dépôt des colloïdes.

Endommagement de la perméabilité

La réduction de la perméabilité d'un milieu par dépôt en profondeur de particules est généralement considéré comme le résultat de plusieurs phases successives (Chauveteau *et al.*, 1998, Civan, 2017, Tale *et al.*, 2020) (Figure 1.15(a)) :

- Dans un premier temps, les particules sont déposées à la surface des grains avec une cinétique anisotropique, le dépôt étant plus important en amont de l'écoulement. Le dépôt est le résultat de l'action conjointe des forces impliquées dans la dynamique des suspensions colloidales et selon les cinétiques préalablement évoquées ;
- La deuxième phase correspond au colmatage des pores par pontage (« pore bridging »), soit par interception directe des particules ou par exclusion de taille. Lorsque la taille de la particule incidente est supérieure à celle de la restriction de pores, un pontage mono-particulaire a lieu ; celui-ci est dit multiparticulaire lorsque les gorges de pores sont bouchées par la rétention simultanée de plusieurs particules incidentes (Figure 1.14).

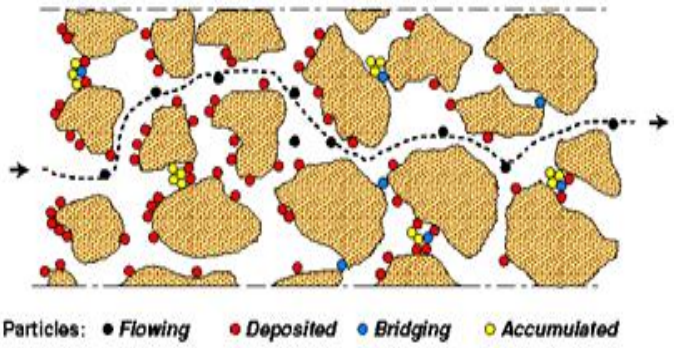


Figure 1.14 - Représentation du transport de particules dans un milieu poreux et des mécanismes d'endommagement associés ; les mécanismes de pontage mono-particulaire et multiparticulaire sont ici visibles (issu de Chauveteau *et al.*, 1998).

Lorsqu'un pont est mis en place et consolidé, les particules arrivant au niveau du site s'accumulent en amont, entrainant ainsi une réduction du débit d'écoulement à travers ces pores ;

- Le remplissage progressif des pores après leur bouchage conduit à la formation d'un gâteau interne à une vitesse proportionnelle au flux volumétrique de particules, et au volume des pores disponibles (Civan et Nguyen, 2005) ;
- Enfin, la formation d'un gâteau interne (« deep bed filtration ») est dans la plupart des cas suivi de la formation d'un gâteau externe (« mud cake filtration ») dû à l'accumulation des particules en amont du milieu poreux.

La période entre la fin de la formation du gâteau interne et le début du gâteau externe est appelée temps de transition (Wennberg et Sharma, 1997) ; pendant ce temps de transition, plus aucune particule n'envahit le milieu mais fournit au contraire des éléments pour construire le gâteau externe au niveau de la surface d'injection (Figure 1.15(b)).

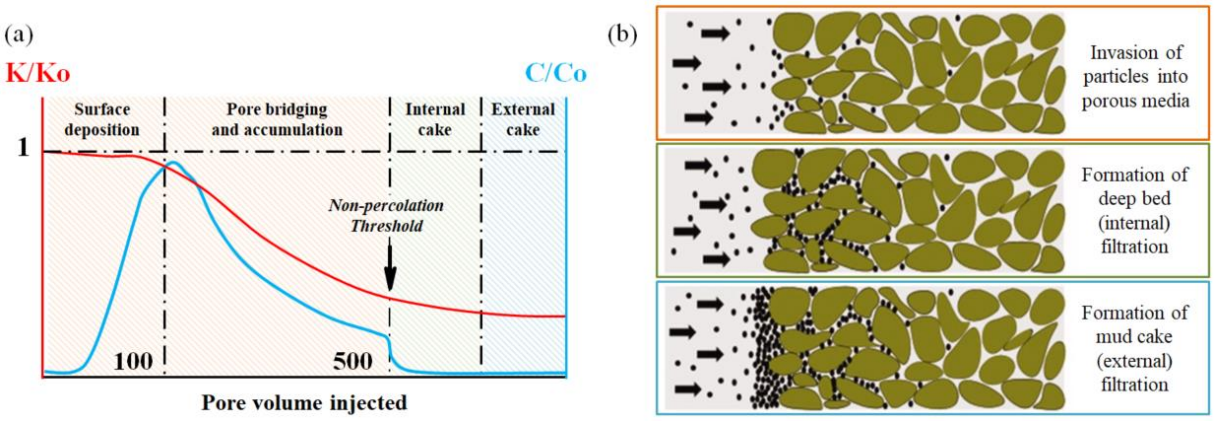


Figure 1.15 - (a) Evolution de la perméabilité et de la concentration en particules des suspensions collectées en sortie du milieu poreux, en relation avec les quatre phases d'endommagement progressif (modifié de Chauveteau *et al.*, 1998) ; (b) Illustrations correspondantes des mécanismes de réduction de la perméabilité avec la formation d'un premier gâteau interne puis externe (modifié de Tale *et al.*, 2020).

L'apport de ces essais expérimentaux menés avec des milieux poreux 3D est très important pour la compréhension des mécanismes mais certaines informations restent manquantes, notamment des mesures à l'échelle locale. Plus récemment, de nouvelles techniques ont permis d'acquérir de nouvelles connaissances sur les mécanismes impliqués à l'échelle du pore.

1.3.1.2 Plus récemment : Travaux avec dispositifs microfluidiques

Principe des outils microfluidiques et leur utilisation pour l'étude des problématiques de subsurface

L'écoulement de fluides complexes dans des milieux poreux est omniprésent dans de nombreux processus naturels et industriels. La visualisation directe du flux et de la dynamique de l'écoulement est donc essentielle pour comprendre et caractériser les processus. Cependant, bien que permettant d'obtenir de précieux éléments de compréhension sur les phénomènes à l'œuvre comme nous avons pu le voir précédemment, l'opacité des milieux poreux réalistes rend cette visualisation très difficile ou impossible.

Les milieux poreux modèles microfluidiques, ou micromodèles, sont des dispositifs développés pour relever le défi associé à la visualisation optique des processus d'écoulements complexes. Ils correspondent à des réseaux poreux interconnectés transparents, généralement conçus à l'aide d'un logiciel de dessin assisté par ordinateur et fabriqués à l'aide de matériaux optiquement transparents tels que le verre, le silicone ou des élastomères (polydiméthylsiloxane (PDMS), polymethyl methacrylate (PMMA)) dont les propriétés mécaniques, thermiques et chimiques sont différentes. Il existe ainsi différentes méthodes de fabrication associées aux

propriétés des matériaux utilisés. Un autre avantage des micromodèles réside dans leurs dimensions réduites, qui impliquent généralement une très faible consommation de matériaux et de fluides ainsi que des procédures expérimentales faciles et rapides.

Ainsi, la visualisation des écoulements grâce à des dispositifs microfluidiques a permis des avancées significatives dans le monitoring des écoulements de fluides complexes, les observations directes permettant de donner des interprétations qualitatives sur des phénomènes et mécanismes jusqu'ici parfois non compris. De nombreuses revues (Jahanbakhsh *et al.*, 2020 ; Massimiani *et al.*, 2023 (2)) décrivent les matériaux et les procédés de fabrication des dispositifs microfluidiques ainsi que les outils de visualisation qui leur sont associés. Les applications dans le domaine des géosciences sont nombreuses et pertinentes et ont donc fait l'objet de nombreuses études (Tableau 1.5).

Tableau 1.5 - Tableau des principales caractéristiques associées aux expériences d'injectivité dans des micromodèles.

Source	Objective	Porous Medium	Carrying fluid	Particle	Visualisation
Wan & Wilson, 1994	Effects of surface chemistry Attachment at the air-water interface	silicon-glass micromodel (network : quadrilateral, hexagonal or heterogeneous)	Solution chemistry designed conservatively	Carboxylate latex Sulfate latex Amidine latex Clay Bacteria Bacteria	Dark-field ; epifluorescence
Wan et al, 1996	Study of flow and transport processes in fractured porous media	etched glass micromodel (fractures and matrix blocks pattern)	water	Polystyrene	Epifluorescence
Lanning & Ford, 2002	Transport and dispersion of E. coli	glass-glass micromodel (hexagonal pattern)	Motility buffer	E. coli NR50	Stereo-microscope
Sirivithayapakorn & Keller, 2003	Size exclusion and colloid acceleration	Silicium pyrex micromodel (simulation of a natural pore system)	water	Latex	Reflection microscopy
Auset & Keller, 2004	Transport of nonsorbing colloids	PDMS micromodel (rounded square pillars)	buffered solution (water)	Latex polystyrene	Epifluorescence
Baumann & Werth, 2004	Filtration theory predictions and comparison to Lattice Boltzman model	Silicium-glass micromodel	deionized distilled water	Polystyrol microspheres	Epifluorescence
Auset et al, 2005	Efficiency of intermittent filtration	PDMS micromodel (simulation of a natural pore system)	artificial wastewater (KH2PO4, K2PO4, Na2HPO4, CaCl2, MgSO4, NaCl and Na-humic acid)	E. coli ATTC 25922 and Latex	Epifluorescence
Chen & Flury, 2005	Retention of colloids in insaturated porous media	Etched glass micromodel (cylindrical pillars)	water-air	Native colloids (Hanford sediments) Modified colloids Kaolinite Na-montmorillonite	Bright light
Baumann & Niessner, 2006	Colloid/1-octanol interface attachment	Silicium-pyrex micromodel	water/air/1-octanol	Polystyrene latex	Epifluorescence
Bradford et al., 2006	Transport of E. coli	Micromodel packed with Ottawa quartz sand	NaBr solution (deionized water buffered)	E. coli O157:H7	Epifluorescence
May & Li, 2013	Effecys of particle size	Microfluidic flow cell packed with glass beads	0,1% Tween20 in deionized water and NaN3	Polystyrene latex	Laser scanning cytometry
Zhang et al., 2013	Adsorption of colloidal particles under transient two-phase flow	PDMS micromodel (pore network using Delaunay triangulation)	deionized water and fluorinert FC-43	Polystyrene	Confocal microscopy
Zhang et al., 2015	Effect of flow rate variations on colloid attachment	PDMS micromodel	deionized water	Polystyrene latex	Confocal microscopy
Gaol et al., 2020	Bacteria attachment and straining effects on bioclogging in porous media	glass-silicon-glass micromodel (artificial and real-structure patterns)	brine from a high-salinity oil field + nutrient concentrate + MES	Bacteria	Epifluorescence
Winter et al., 2020	Study of fluid flow in porous media	PDMS micromodel (pillars pattern)	deionized water	Polystyrene latex	Confocal microscopy & Micro-PIV
Yan et al., 2020	Effect of temperature gradient on the particle deposition of a pressure-driven suspension flow in a microchannel	PDMS micromodel (microchannel)	deionized water and Na-Cl	Polystyrene	Epifluorescence

Géométries des dispositifs microfluidiques

Dans le cadre des études impliquant la subsurface, la question de la géométrie du milieu utilisé est un élément clé. Naturellement, il semblerait adéquat d'utiliser une géométrie représentative d'une roche afin de comprendre les phénomènes qui ont lieu lorsqu'un fluide

complexe s'y écoule. Néanmoins, en raison de la complexité et la multiplicité des réseaux poreux existant dans les formations géologiques et la volonté de se focaliser sur les phénomènes, les études en milieu poreux à l'échelle du pore utilisent généralement des géométries simplifiées en lieu et place des géométries plus réalistes.

Selon leur modèle et leur topologie, ces géométries sont classées en trois catégories principales : les modèles parfaitement réguliers, les modèles partiellement réguliers, et les modèles irréguliers (Figure 1.16).

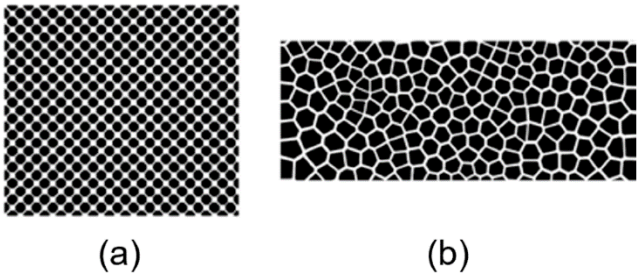


Figure 1.16 - Exemples de motifs : (a) régulier ; (b) irrégulier, basé sur les diagrammes de Voronoi (issu de Massimiani *et al.*, 2023)

La littérature est abondante sur les études expérimentales et numériques utilisant des micromodèles réguliers ou partiellement réguliers. L'ensemble du réseau est composé de pores ayant la même géométrie ou agencés selon un motif régulier, la taille des pores étant alors choisie à partir d'une distribution statistique. Bien que non représentatifs de l'espace poreux réel et ne reproduisant pas la géométrie complexe en 3D des milieux poreux réels, ces modèles sont utiles pour isoler l'influence de propriétés géométriques spécifiques sur des phénomènes locaux, tel que le rapport pore-seuil de pore.

Les modèles irréguliers sont associés à l'absence de corrélation spatiale dans la géométrie ; la taille des pores est choisie à partir d'une distribution statistique et ont un emplacement aléatoire. Par exemple, la tessellation de Voronoï ou la triangulation de Delaunay sont des motifs irréguliers utilisés pour les géométries de micromodèles. Le diagramme de Voronoï est un algorithme de géométrie informatique qui divise un domaine 2D ou 3D en plusieurs polygones ou polyèdres qui ne se chevauchent pas, à partir d'un ensemble de points distribués de manière aléatoire. La triangulation de Delaunay d'un ensemble de points distribués aléatoirement correspond au graphe dual d'un diagramme de Voronoï pour le même ensemble de points.

Plus récemment, des géométries plus réalistes et plus représentatives de milieux poreux sont réalisées grâce à des approches en plusieurs étapes qui s'appuient sur les informations de microstructure et statistiques des roches en 3D (Lei *et al.*, 2020 ; Gaol *et al.*, 2020, Gunda *et al.*, 2011 ; Park *et al.*, 2012). L'objectif est de construire/obtenir un modèle 3D de la roche considérée puis après analyse, de transférer ces propriétés morphologiques (porosité, perméabilité, distributions des tailles de pore et tailles de grain) pour la microfabrication d'un milieu poreux 2D (Figure 1.17).

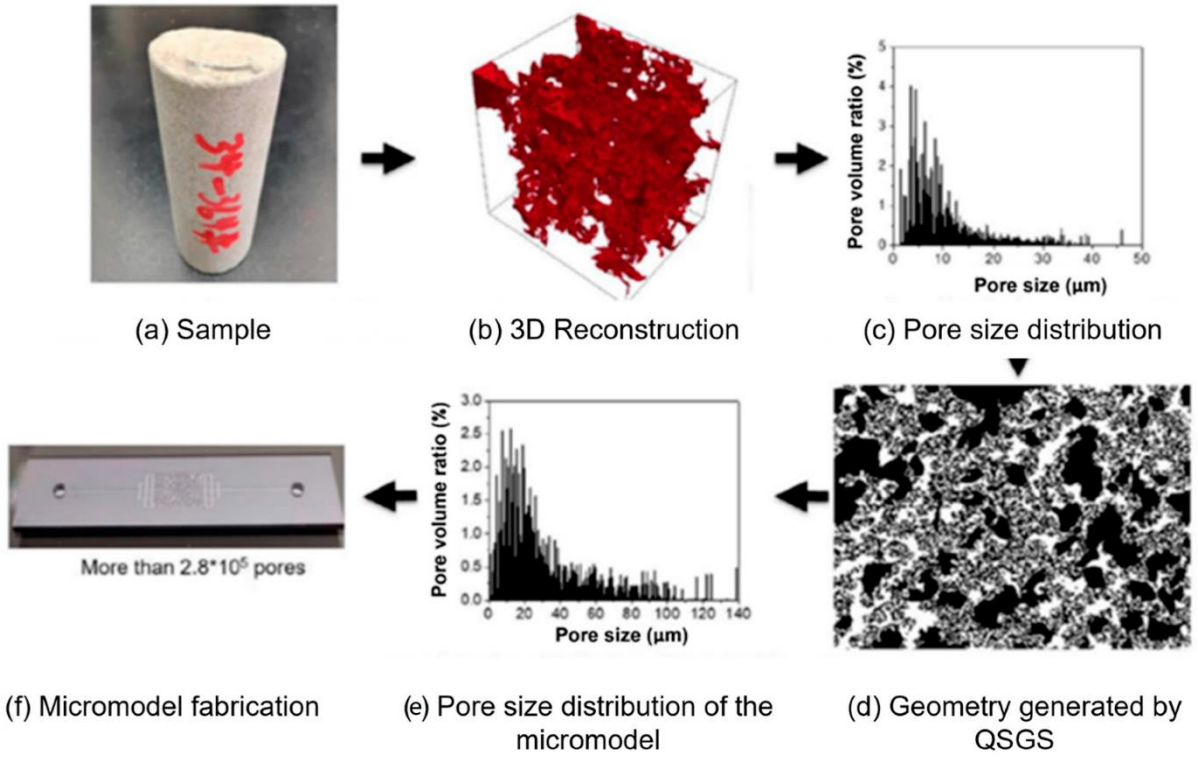


Figure 1.17 - Exemple d'une approche multi-étapes pour le design d'un micromodèle à géométrie réaliste (issu de Lei *et al.*, 2020).

Depuis très récemment, de nombreuses techniques sont disponibles pour réaliser des micromodèles dont les milieux poreux ont des géométries les plus réalistes possibles. Néanmoins, tel que décrit précédemment, les modèles réguliers sont les géométries les plus couramment utilisés pour étudier l'écoulement de fluides complexes dans un milieu poreux et les problématiques qui y sont associées, le colmatage étant l'une d'entre elles.

Le colmatage à l'échelle du pore

Les premiers travaux réalisés par Wyss *et al.* (2006) puis par d'autres ont montré que la microfluidique était un outil particulièrement intéressant pour étudier l'écoulement et le transport de fluides chargés de particules à l'échelle des pores. En effet, à l'échelle du micromètre, les écoulements sont généralement caractérisés par de faibles nombres de Reynolds (équation 1.3) et la dynamique peut ainsi être décrite par l'approximation de Stokes. Il est également plus aisé d'analyser l'ampleur relative des forces présentées dans la section 1.1 qui agissent sur les particules.

Ainsi, grâce à des expériences microfluidiques avec des milieux poreux modèles transparents, associées à diverses techniques d'imagerie, des observations importantes sur la dynamique de colmatage ont pu être réalisées.

Les résultats de ces études identifient le colmatage comme la résultante de trois mécanismes principaux : le tamisage, le pontage et l'agrégation (Figure 1.18).

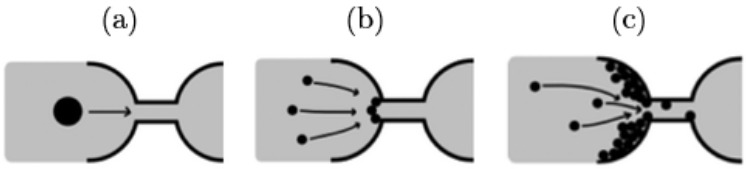


Figure 1.18 - Mécanismes principaux du colmatage à l'échelle microscopique : (a) le tamisage, (b) le pontage et (c) l'agrégation (issu de Dressaire & Sauret, 2017).

Ces trois mécanismes sont corrélés à la taille de la particule versus la taille de la constriction (seuil de pore), la concentration de la suspension et les interactions particule/paroi (grain) et particule-particule.

- Le tamisage

Le tamisage consiste à bloquer les particules sur la base de l'exclusion de la taille et contribue ainsi à séparer la matière solide de la phase fluide par filtration (Sanderson *et al.*, 2001 ; Bruggen *et al.*, 2003).

Lorsque les particules sont rigides, le tamisage se produit lorsque la largeur du canal ou seuil de pore notée W est égale ou inférieure au diamètre des particules D, soit $W \leq D$. Ce mécanisme de tamisage est largement utilisé en microfluidique pour filtrer des contaminants ou séparer des particules de différentes tailles (Wei *et al.*, 2011 ; Kim *et al.*, 2014). Le tamisage permet alors de procéder à un piégeage sélectif des plus grosses particules, celles dont le diamètre satisfait $D \geq W$. Des études ont ainsi montré que la concentration des particules les plus grosses et le débit dans le canal d'écoulement sont les paramètres contrôlant la dynamique de colmatage (Sauret *et al.*, 2014). Cependant, la forme et l'orientation des particules, le confinement et la géométrie du canal sont également des paramètres qui vont influencer la probabilité de formation d'un bouchon (colmatage) et sa position au sein du dispositif (Berthet *et al.*, 2013).

La probabilité de formation d'un bouchon est exprimée à partir d'une mesure du temps moyen de colmatage qui correspond à l'intervalle de temps entre le début de l'écoulement et le colmatage tel que :

$$p(t_{clog}) = \frac{1}{\langle t_{clog} \rangle} \exp\left(-\frac{t_{clog}}{\langle t_{clog} \rangle}\right) \qquad avec\ \langle t_{clog} \rangle = \frac{1}{cQ} \tag{1.43}$$

Avec c la concentration des plus grosses particules ($D \geq W$) et Q le débit dans le canal.

Lorsque les particules en suspension sont non rigides, leur comportement mécanique (volume, forme) peut varier selon les composantes de l'écoulement et notamment les contraintes mécaniques locales (Dressaire et Sauret, 2017). Le tamisage ne se résume alors pas à un seul problème géométrique. Ainsi, une particule peut entrer dans un microcanal dont la taille est inférieure à celle du diamètre de la particule considérée tel que $W < D$.

Dans le cas où l'écoulement est contrôlé par une différence de pression et que celle-ci augmente, plusieurs scénarios s'offrent à la particule : elle peut rester piégée dans la zone la plus étroite et confinée du chemin d'écoulement ou bien s'écouler si la pression dépasse la pression de translocation (Li *et al.*, 2015). Si cette pression critique n'est pas dépassée, la position des particules dans le canal résulte de l'équilibre induit entre la compétition des forces mécaniques externes et les tenseurs élastiques internes (Figure 1.19). Ainsi, un capillaire conique ou bien un microcanal asymétrique avec un angle d'ouverture α sont couramment utilisés pour étudier les propriétés mécaniques des particules non rigides, notamment via l'écoulement et le colmatage éventuel (Wyss *et al.*, 2010 ; Guo & Wyss, 2011).

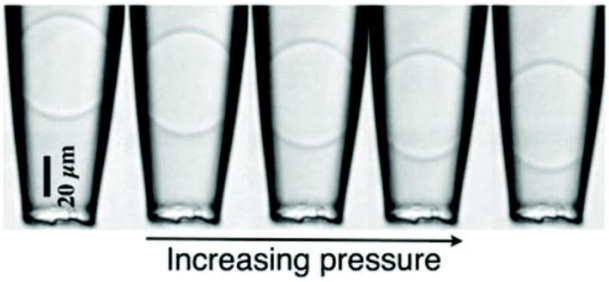


Figure 1.19 - Séries d'images d'une particule en microgel déformée selon l'augmentation de la pression p appliquée. De la gauche vers la droite : p= 100, 150, 200, 250, 300 Pa. L'écoulement pousse la particule dans la zone la plus étroite du capillaire conique (issu de Wyss *et al.*, 2010).

- Le pontage

La création d'une arche de particules sur la largeur d'un canal ou au niveau d'un seuil de pores est appelée pontage et correspond à l'un des mécanismes de colmatage. Il résulte de la combinaison de différents paramètres tels qu'un confinement important et une forte concentration en particules (Hecke, 2009 ; Cates *et al.*, 1998).

De nombreuses études ont montré que le pontage a lieu préférentiellement lorsque le ratio entre la grandeur caractéristique et le diamètre de particules noté W/D était compris entre 2 et 4 (Sharp & Adrian, 2001, 2005). Cependant, contrairement au colmatage par tamisage, le pontage peut être intermittent ; les arches peuvent se casser sous l'effet de contraintes de cisaillement plus importantes (variations de débit par exemple).

Le pontage est généralement un mécanisme qui induit le colmatage de constrictions lorsque les concentrations en particules sont importantes mais il peut également avoir lieu dans le cas d'une suspension diluée si plusieurs particules arrivent simultanément au seuil de pore/constriction.

Lorsque la fraction volumique des particules ϕ augmente, la rhéologie de la suspension devient plus complexe et sa viscosité peut évoluer. Lorsque la fraction atteint une valeur critique ϕ_m, le colmatage a lieu. De nombreuses études montrent ainsi que pour des suspensions denses tel que $0,2 < \phi < 0,6$ (Campbell & Haw, 2010 ; Genovese & Sprakel, 2011 ; Ward & Whitmore, 1950 ; Haw, 2004), le confinement progressif dû à l'écoulement entraine la fraction volumique locale à atteindre son seuil critique ϕ_m au-delà duquel le colmatage par pontage a lieu (Figure 1.20).

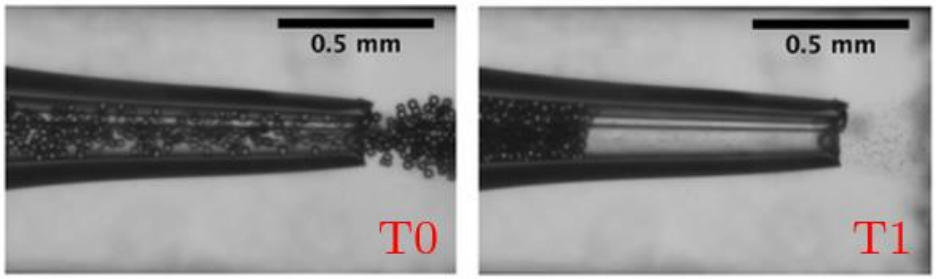


Figure 1.20 - Ecoulement et colmatage par pontage d'une suspension de particules de PMMA dans un capillaire de verre conique axisymétrique (modifié de Dressaire & Sauret, 2017).

Le colmatage par pontage a également été reporté dans le cas de suspensions diluées tel que $\phi \leq \phi_m/10$ (Sharp & Adrian, 2005) ; il résulte de l'arrivée simultanée de particules au niveau d'une constriction et la probabilité de pontage augmente avec la concentration en particules, le débit et le ratio entre la taille de particules et la taille du canal D/W (Agbangla *et al.*, 2012 ; Ramachandran &

Fogler, 1999). En considérant une constriction circulaire de surface A, plus petite que la section transversale de la zone en amont, et en supposant que les particules sont transportées à la vitesse du fluide, le pontage a été défini empiriquement lorsque le nombre de particules arrivant à l'ouverture est supérieur à un nombre critique n_{max} tel que :

$$n_{max} \propto \frac{AD}{2V_p} \tag{1.44}$$

Où V_p est le volume d'une particule.

Le temps de colmatage défini par l'intervalle de temps entre la formation de deux arches est compris entre deux bornes tel que :

$$\frac{\left(\frac{n_{max}}{2}+1\right)!}{(n_{max}\phi)^{\frac{n_{max}}{2}+1}}\frac{AD}{2Q} \leq t_{clog} \leq \frac{(n_{max}+1)!}{(n_{max}\phi)^{n_{max}+1}}\frac{AD}{2Q} \tag{1.45}$$

Avec Q le débit à travers une constriction non colmatée.

Le modèle est basé sur l'hypothèse selon laquelle les particules sont uniformément distribuées dans la suspension et arrivent simultanément au niveau de l'entrée du seuil tel que leur nombre est supérieur au nombre critique n_{max} ; les résultats expérimentaux sont en bon accord avec le modèle (Goldsztein & Santamarina, 2004).

- L'agrégation

Le dernier mécanisme en jeu reporté dans la littérature pour le colmatage à l'échelle du pore est l'agrégation. Il correspond au dépôt successif de particules qui adhèrent à la paroi puis s'accumulent pour former un agrégat. Ce mécanisme repose ainsi sur les interactions particules/paroi ou particules/particules. Ce phénomène dû aux forces positives de courte portée de Van der Waals n'est rendu possible que dans le cas où la distance entre les particules est relativement faible. Selon le nombre de Péclet défini dans la section 1.2.3.3, une particule peut être amenée à proximité d'une autre particule ou de la surface du canal d'écoulement par advection ou bien par diffusion. L'agrégation va ainsi être le résultat de la compétition entre les forces propres aux particules et les forces hydrodynamiques.

La première étape correspond au dépôt d'une particule, généralement à l'entrée de la constriction (Dersoir *et al.*, 2015, Robert de Saint Vincent *et al.*, 2016) puis deux cas de figure se présentent.

Lorsque les interactions entre les particules précédemment déposées et celles en suspension dans l'écoulement sont attractives, plusieurs couches sont déposées successivement, formant ainsi un agrégat qui peut éventuellement colmater le seuil de pore (Figure 1.21).

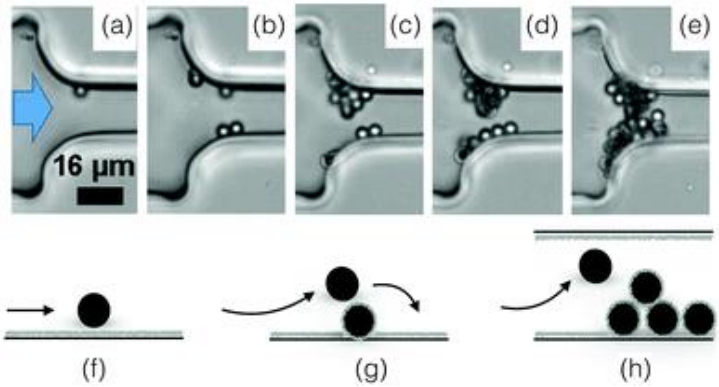


Figure 1.21 - (a-e) Illustration du mécanisme de colmatage par agrégation. Les images sont prises à 3, 5, 10 et 36 minutes avec un flux de 2,8x10⁴ particules/min à l'entrée du dispositif (issu de Dersoir et al., 2015) ; (f-h) Schéma illustrant le mécanisme d'agrégation, depuis le dépôt de la première particule à la formation d'un dépôt multicouche (issu de Dressaire & Sauret, 2017).

Lorsque les interactions ne sont pas favorables (profil d'énergie avec barrière électrostatique répulsive), la probabilité de dépôt est plus faible. Si les vitesses locales sont peu élevées, les particules peuvent adhérer à la paroi dans les zones d'ombrage dynamique des particules précédemment déposées (Figure 1.22). Les forces répulsives empêchent la construction d'un agrégat, les particules déposées forment une monocouche qui n'entraine pas la fermeture complète du seuil de pore.

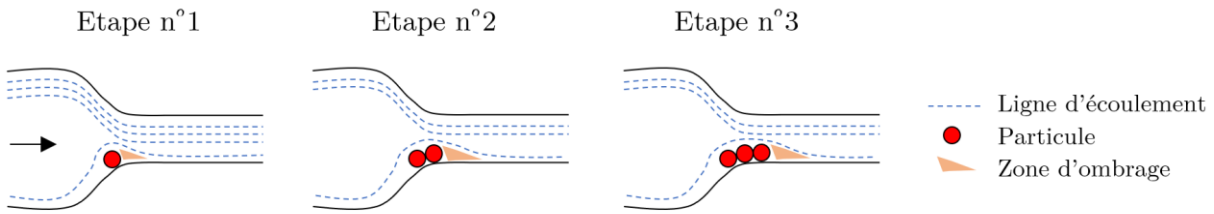


Figure 1.22 - Croissance d'un dépôt monocouche à la paroi ; les forces répulsives empêchent l'adhésion particule/particule et donc la croissance d'un agrégat. Le dépôt se fait dans les zones d'ombrages dynamiques définies par les lignes d'écoulement et les particules précédemment déposées.

Il reste cependant difficile de décrire ce mécanisme puisque la présence de particules déposées modifie la géométrie locale de la constriction, le champ de vitesse associé et la nature des interactions.

Lorsque la croissance d'un agrégat est possible, la dynamique de colmatage est décrite expérimentalement par le biais du temps de colmatage. Ce dernier est obtenu en mesurant le nombre de restrictions colmatés pendant l'expérience et au regard du nombre total de restrictions considéré. Le temps de colmatage moyen $\langle t_{clog} \rangle$ diminue linéairement avec la perte de charge dans le dispositif et la fraction volumique en particules dans la suspension (Wyss *et al.*, 2006 ; He *et al.*, 1999, Sauret *et al.*, 2014) tel que :

$$\langle t_{clog} \rangle \propto \frac{1}{\phi \Delta p} \tag{2.46}$$

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

Les résultats expérimentaux indiquent que le temps de colmatage correspond à l'écoulement d'un nombre critique de particules N* au niveau de la restriction tel que :

$$N^* \propto \frac{W^3 H}{6D^4} \tag{2.47}$$

Avec W la largeur du canal, H sa profondeur et D le diamètre des particules.

Ce nombre critique de particules N* dépend ainsi de la géométrie du microcanal (Dersoir *et al.*, 2015 ; Wyss *et al.*, 2006).

- Conclusion sur les mécanismes

Le tableau suivant (Tableau 1.6) récapitule les caractéristiques principales associées à chaque mécanisme observé à l'échelle du pore.

Tableau 1.6 - Tableau récapitulatif des principales caractéristiques associés au colmatage dans un dispositif microfluidique (mécanismes, propriétés de la suspension, géométrie) (issu de Dressaire & Sauret, 2017).

	Tamisage	**Pontage**	**Agrégation**
Comparaison des tailles de diamètre D et largeur de canal W	$D \geq W$	$D \leq W$	$D \leq W$
Fraction volumique des particules ϕ	Faible ϕ	Fort ϕ	Fort ϕ
Interactions nécessaires	Stérique	Stérique	Forces attractives particules/particules et particules/paroi
Colmatage	Blocage géométrique	Formation d'une arche de particules	Dépôt successif de particules

Dans la suite du chapitre, les résultats issus des études préalablement menées sur la problématique du colmatage sont exposés. Les sections rassemblent les travaux menés sur carotte de roche, massif reconstitué ou bien micromodèle et visent à comprendre l'influence de chaque paramètre sur les mécanismes et l'endommagement du milieu.

1.3.2 Influence des propriétés de la phase aqueuse

L'influence et notamment les variations des conditions chimiques du milieu sur le dépôt des particules a été l'objet de nombreuses études qui se sont ainsi intéressées aux effets des variations de la force ionique des suspensions injectées, du pH et de la concentration en électrolytes spécifiques.

1.3.2.1 Force ionique

De nombreux travaux menés sur des milieux saturés pour étudier l'effet des variations de la force ionique sur les interactions particule-collecteur dans le cadre de l'adsorption tendent vers le même résultat : l'ajout de sels qui tend à augmenter la force ionique de la solution permet de favoriser le dépôt de particules.

En effet, les expériences menées sur colonne (Sang *et al.*, 2013 ; Pelley et Tufenkji, 2008) où des suspensions de microsphères sont injectées dans des milieux poreux constitués de grains de quartz ont permis de montrer que les résultats expérimentaux étaient en accord avec les prédictions issues de la théorie DLVO. Celle-ci prévoit que l'augmentation de la concentration en sels permet de diminuer le potentiel zêta absolu et ainsi d'augmenter le degré d'attachement (Derjaguin et Landau, 1941 ; Verwey et Overbeek, 1948).

L'augmentation de la force ionique permet de réduire l'amplitude de la barrière énergétique à franchir (due aux forces électrostatiques) pour tomber dans un minimum primaire d'énergie, conduisant ainsi à la mise en place de conditions plus favorables à la rétention de colloïdes.

Les expériences ont confirmé que la rétention nette des colloïdes augmente avec la force ionique et ce de façon indépendante du degré de saturation du milieu poreux (Figure 1.23(1)) ou de la taille des particules en suspension (Figure 1.23(2)).

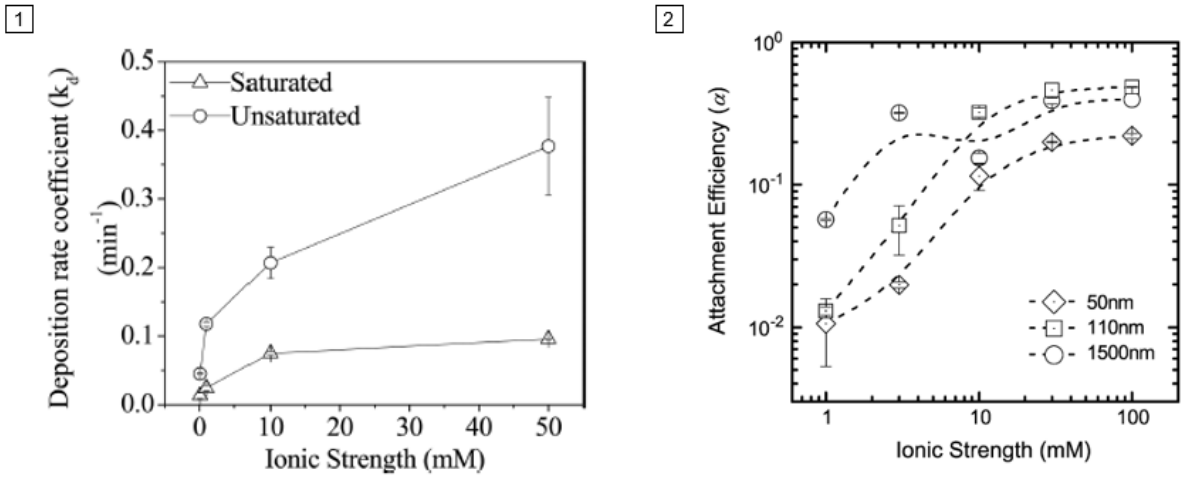


Figure 1.23 - 1) Coefficients de dépôt des colloïdes en milieu poreux saturé ou insaturé (issu de Sang et al., 2013) et 2) Efficacités d'attachement (α) calculées pour différentes tailles de colloïdes en suspension dans du KCl, et pour une large gamme de forces ioniques de la solution (pH = 5,7 ± 0,2) (Pelley et Tufenkji, 2008).

Des études complémentaires ont permis de préciser le rôle du puits d'énergie minimum secondaire dans l'adsorption de particules à la surface des grains, notamment les résultats de l'étude menée par Kuznar et Elimelech (2006). A de faibles forces ioniques I (jusqu'à 3mM KCl), aucun dépôt n'est observé sur les grains. Pour une I plus modérée (10-30 mM), les particules s'accumulent sur la surface à l'arrière des collecteurs sphériques (Figure 1.24) ; lorsque I est importante (100 mM), le minimum d'énergie secondaire n'existe plus et la barrière d'énergie électrostatique est absente, expliquant ainsi le dépôt des particules sur l'ensemble des grains collecteurs.

Lors de ces études, les mesures réalisées sur le potentiel zêta viennent corroborer les observations dans la mesure où celui-ci devient moins négatif lorsque la concentration en sels augmente. De fait, ce comportement est à nouveau en accord avec la théorie DLVO.

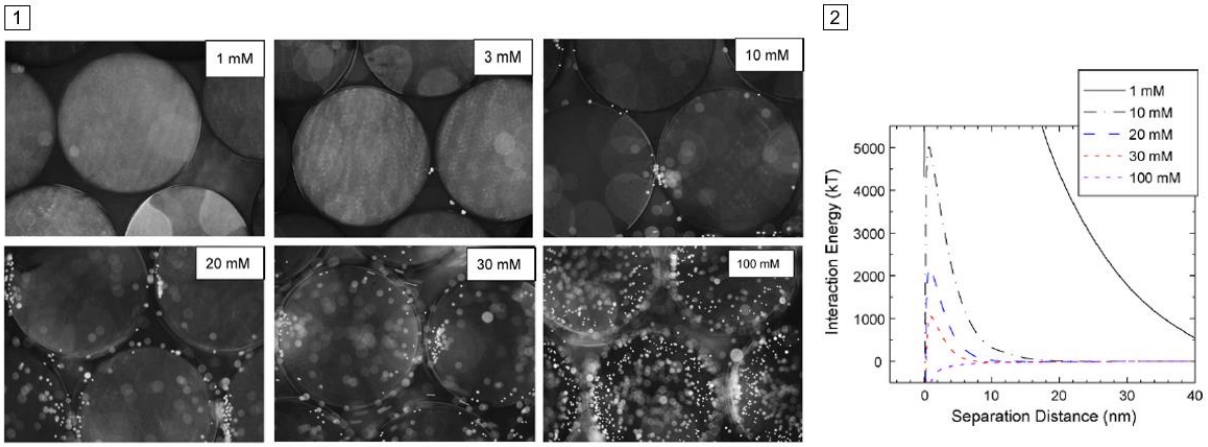


Figure 1.24 - 1) Images de dépôt des particules en latex de 4.1 µm sur des billes de verre dans du KCl à différentes concentrations (indiquées dans les coins supérieurs droits ; les autres conditions expérimentales employées sont un pH de 11 et une température de 25 °C (±1 °C). L'écoulement se fait de la droite vers la gauche. 2) Profils d'énergie d'interaction DLVO entre les particules de latex et les billes de verre (constante de Hamaker du système latex-eau-verre de 10^{-20} J, température de 25°C). Figures issues de Kuznar et Elimelech, 2006.

Pelley et Tufenkji ont noté qu'à la plus forte valeur de force ionique testée *i.e.* 100 mM KCl, l'efficacité d'attachement des particules à la surface des grains collecteurs n'atteignait cependant pas la valeur maximale théorique de 1 (due au fait que la barrière énergétique est inexistante, selon les calculs de la théorie DLVO).

Plus récemment, Gerber *et al.* (2019) ont confirmé les résultats précédents en montrant que l'augmentation de la force ionique est associée à une rétention plus importante des colloïdes (Figure 1.25(1)). De plus, ils ont montré que lorsque les liaisons interparticulaires étaient négligeables (fortes interactions électrostatiques répulsives) c'est-à-dire pour I = 10^{-6} M, les billes constituant le milieu poreux étaient tout de même progressivement recouvertes par des particules adsorbées à leur surface (Figure 1.25(2)).

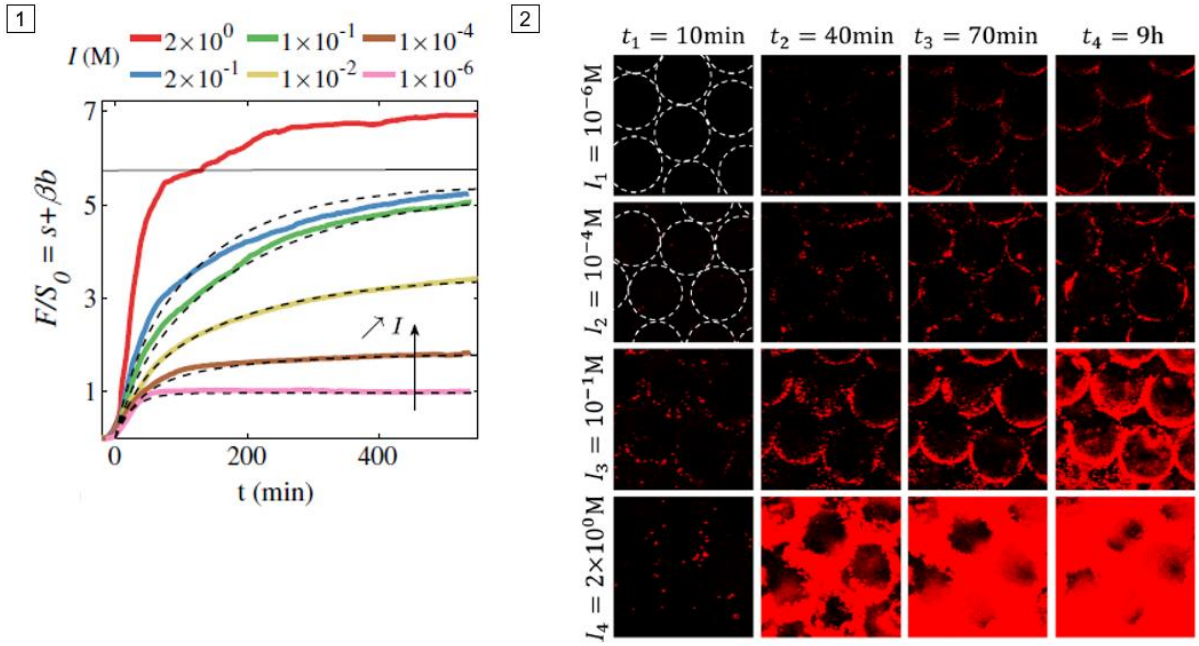


Figure 1.25 - 1) Dépôt global F au cours du temps redimensionné par la saturation de surface S_0, pour des forces ioniques croissantes. Les lignes pleines correspondent aux données, les lignes pointillés correspondent au modèle ajusté ; les valeurs au-dessus de la ligne horizontale ne sont pas quantitatives en raison des limites de résolution. 2) Images de microscopie confocale des particules déposées (en rouge) dans l'espace poreux entre les billes de verre (en noir) dans une fenêtre de 150x150 µm², à l'entrée du milieu. La suspension s'écoule vers le haut (figures issues de Gerber *et al.*, 2019).

Cependant, contrairement aux observations réalisées par Kuznar et Elimelech, Gerber et *al.* ont observé que la couverture des grains par les particules se faisait préférentiellement sur le côté amont des billes plutôt qu'en aval, à l'arrière des collecteurs sphériques. Par ailleurs, la Figure 1.25 montre que le dépôt semble ralentir progressivement et tendre vers un maximum (plateau vers les temps longs), bien avant que le système soit entièrement colmaté sous l'effet d'une adsorption continue. Ce résultat est important dans la mesure où, bien que la force ionique soit telle qu'aucune barrière énergétique théorique n'existe et favorise ainsi le dépôt, l'évolution de l'écoulement montre que l'adsorption totale n'est pas possible. Lorsque l'épaisseur du dépôt augmente, la force de traînée sur les particules augmente et diminue ainsi la probabilité d'attachement (Gerber *et al.*, 2019). Ce résultat pourrait expliquer les observations de Pelley et Tufenkji mentionnées antérieurement sur l'efficacité d'attachement.

1.3.2.2 Nature des électrolytes en solution

Parmi les propriétés de la phase aqueuse dans laquelle les particules se trouvent en suspension, la nature des électrolytes est une condition chimique qui peut influencer la dynamique de l'écoulement et du dépôt, notamment pour les milieux naturels, en induisant d'autres phénomènes tels que la précipitation ou la dissolution de minéraux.

Elimelech et O'Melia (1990) ont réalisé des expériences sur colonnes (billes de verres) avec deux électrolytes différents. Des microsphères de polystyrène latex (diamètre de 0,046, 0,378 et 0,753 µm) avec des groupes fonctionnels de sulfate ont été utilisés en tant que colloïdes modèles et la chimie de la solution a été modifiée pour étudier son influence avec KCl et $CaCl_2$ en tant qu'électrolytes déstabilisants. Plusieurs concentrations en sels ont été utilisées (0,001-0,3 M) pour pouvoir observer l'influence du dépôt en conditions favorables et défavorables, avec un pH ajusté à 6,7.

Les résultats montrent que plus la concentration en KCl augmente, plus le dépôt de particules est important. En effet, les valeurs de C/C_0 diminuent (Figure 1.26(1)). Tel que pour le KCl, l'augmentation de la concentration en $CaCl_2$ est associée à des effluents moins importants en particules (les valeurs de C/C_0 diminuent) et donc des dépôts dans le milieu poreux plus importants (Figure 1.26(2)).

Néanmoins, la comparaison des deux électrolytes montre que la cinétique de rétention est différente lorsque la concentration de celui-ci dans la solution est élevée mais similaire lorsque la concentration est faible ; une augmentation notable de la désorption des particules au cours du temps est observée pour de très fortes concentrations en $CaCl_2$ ($10^{-1,5}$ et 10^{-1} M). Cet effet est connu sous le nom de « filter ripening » (maturation de filtre en français) et indique que les interactions interparticulaires sont plus fortes que celles entre une particule et un collecteur qui constitue le milieu poreux. Ceci peut être dû aux potentiels zêtas absolus différents de ces deux électrolytes (plus petits pour les solutions de $CaCl_2$ que de KCl).

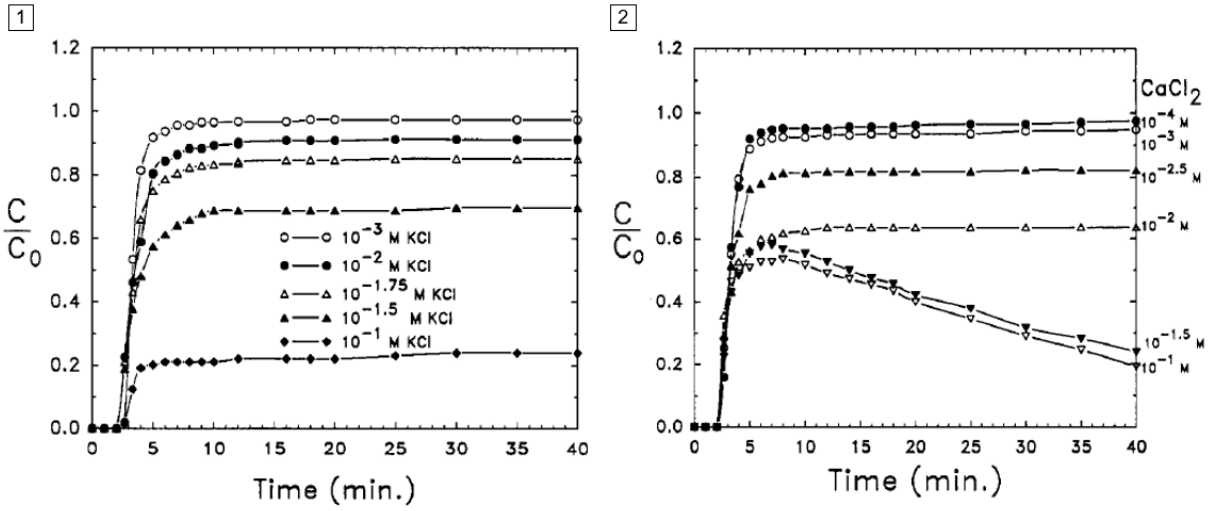


Figure 1.26 - Courbes de percée des particules de latex de 0,753 µm en fonction du temps selon différentes concentrations en 1) KCl et 2) CaCl2. Les conditions expérimentales sont les suivantes : vitesse interstitielle de 0,14 cm/s, lit de 20 cm et taille du collecteur égale à 0,4 mm (Elimelech et O'Melia, 1990).

Les électrolytes en solution sont donc particulièrement intéressants à considérer dans la mesure où, associés à d'autres paramètres tel que la température, ils peuvent induire la précipitation de minéraux dans le milieu poreux ; à terme, cette précipitation peut entrainer le colmatage des pores et ainsi la réduction de la perméabilité. Naseri *et al.* (2015) ont investigué la perte de perméabilité engendrée par la précipitation du composé $BaSO_4$-$CaSO_4$ avec notamment l'influence

de la température et de la concentration en ion calcium dans la suspension de particules. Les expériences menées sur coreflood ont permis de montrer que plus la concentration en ion calcium augmente (de 0 à 0,672 g/L), plus la perméabilité diminue (Figure 1.27).

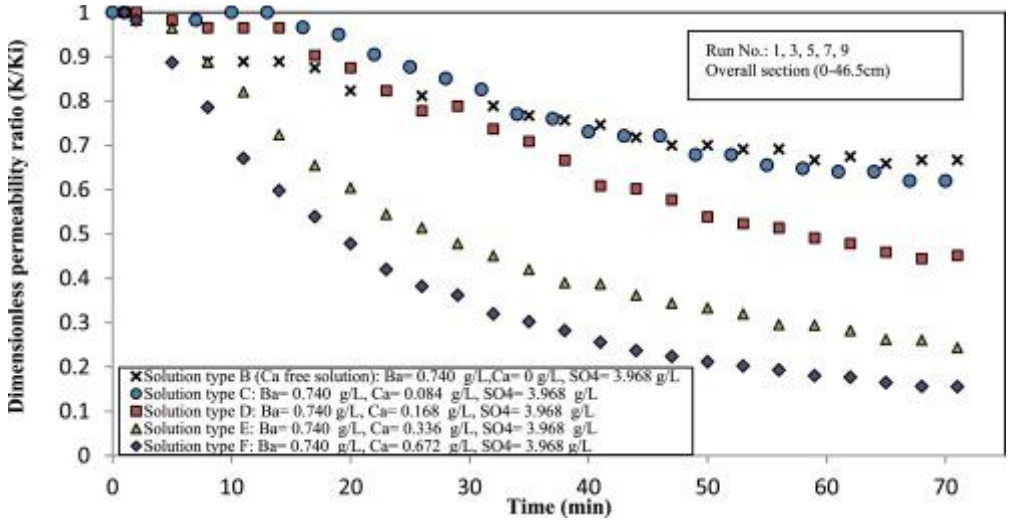


Figure 1.27 - Variation du ratio de perméabilité en fonction du temps selon la concentration en ion calcium avec une concentration fixe en ion barium à 0,740 g/L et une température de 50°C (Naseri *et al.*, 2015).

L'injection de solutions anioniques ou cationiques est associée à une augmentation de la précipitation ; le colmatage des pores arrive alors plus rapidement.

1.3.2.3 pH

Finalement, l'un des derniers paramètres relatifs aux conditions chimiques de la suspension pouvant influencer l'adsorption des particules à la surface des grains collecteurs est le pH. Son impact a été relativement peu étudié, avec cependant quelques travaux menés sur une carotte de roche réelle par Kia *et al.* (1987) ; les auteurs ont montré que les dommages dus à la libération et à la circulation de fines dans le grès de Berea (argiles présentes naturellement à hauteur de 8% en poids total du grès) étaient accentués dès lors qu'une solution aqueuse avec un pH supérieur à 6 était injectée. La perméabilité mesurée aux bornes du milieu chute drastiquement. A faibles valeurs de pH, les échanges ioniques ont lieu avant que la libération de fines ne puisse avoir lieu ; les argiles sont couvertes par les ions multivalents et ne peuvent donc pas être mobiles, expliquant le faible taux de relargage.

Yuan *et al.* (2020) ont récemment investigué l'effet d'un pH élevé sur le transport de colloïdes dans des billes de verre traitées et non traitées à l'acide. Leurs résultats (Figure 1.28) ont montré que l'augmentation du pH est associée à une capacité de rétention plus faible des colloïdes par les surfaces collectrices (C/C_0 proche de 1 lorsque le pH augmente). Ces résultats viennent confirmer les observations réalisées précédemment par Kia *et al.*

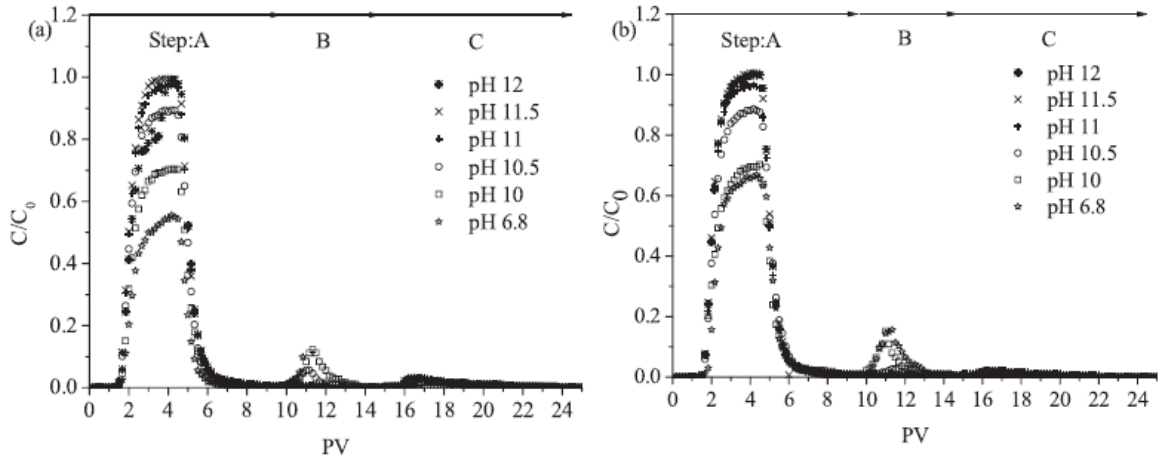


Figure 1.28 - Courbes de percée des expériences d'adsorption sur colonnes pour des colloïdes préalablement lavés dans (a) de l'eau déionisée ou (b) de l'acide (issu de Yuan *et al.*, 2020).

En effet, lorsque celui-ci atteint 11, presqu'aucune rétention ne se produit puisque la concentration en particules dans les effluents est similaire à celle initialement injectée, et ce selon qu'il y ait des impuretés chimiques présentes (pré-lavage différent). Théoriquement, les impuretés sont éliminées par le traitement à l'acide qui fournit ainsi moins de sites d'adsorption et diminue donc la capacité de rétention des collecteurs. Cependant, les expériences montrent que les effets des impuretés de surface sont éliminés par l'ajustement du pH à une valeur plus élevée que celle généralement trouvée dans les environnements naturels, *i.e.* supérieur à 6,8.

Walshe *et al.* (2010) ont étudié les effets du pH en tant que facteur environnemental pouvant influencer le transport de virus associés aux colloïdes dans les aquifères. Les expériences sur colonnes constituées de graviers (gravier de Burnham, Nouvelle-Zélande, composé de sédiments fluvioglaciaires bien triés et peu altérés avec des proportions variables d'argiles, limons et sables) ont montré que la réduction du pH était associée à une réduction des concentrations en particules en sortie (co-transport de kaolinite et MS2, des bactériophages utilisés communément dans les études environnementales). La réduction de pH entraine ainsi une rétention plus importante des « bio-colloïdes » dans le milieu poreux.

D'autres études orientées autour du transport de colloïdes et bioéléments ont abouti à des conclusions similaires (Bales et Li, 1993 ; Guan *et al.*, 2003).

1.3.3 Influence des propriétés des particules en suspension dans le fluide en écoulement

Parmi les paramètres clés régissant les interactions d'une suspension en écoulement au sein d'un milieu poreux, les propriétés de la suspension et notamment celles des particules sont un élément important à évaluer afin de pouvoir appréhender le transport et le dépôt des colloïdes.

1.3.3.1 Taille

L'impact de la taille des particules en suspension et circulant au sein d'un milieu poreux a été l'objet de plusieurs études notamment dans le cadre de la théorie de la filtration préalablement introduite.

Litton et Olson (1995) ont travaillé avec différentes tailles de particules de latex modifiées (ajout de groupe carboxyle ou sulfate qui ont une influence sur la stabilité des suspensions) ; leur étude d'injection sur colonne (lit de grains de quartz) a montré que pour différentes valeurs de

force ionique, l'efficacité d'attachement et donc de collection était systématiquement plus importante pour les particules dont les diamètres étaient les plus grands (Figure 1.29).

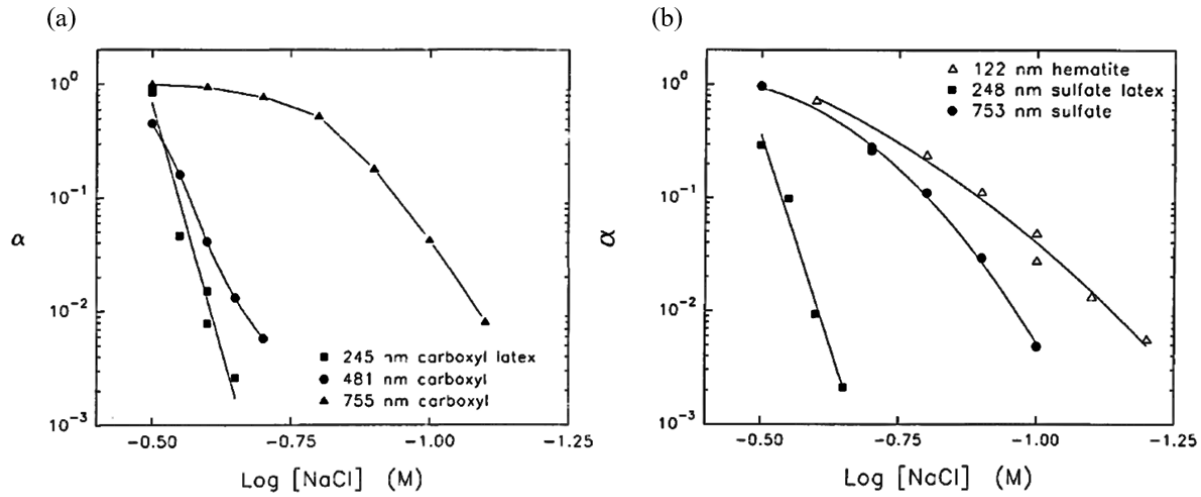


Figure 1.29 - Influence de la taille des particules sur l'efficacité d'attachement α pour différentes valeurs de force ionique (pH = 9,8 et [SDS] = 10^{-3} M) pour a) des colloïdes en latex carboxylé et b) des colloïdes en latex sulfaté et de l'hématite (Litton et Olson, 1995).

Le résultat de ces travaux a été confirmé par Auset et Keller (2006) qui, à partir du calcul de la probabilité de collision d'une particule incidente à l'approche d'un collecteur sphérique, ont montré dans un premier temps que les mécanismes de déplacement étaient fortement influencés par le diamètre des colloïdes (Figure 1.30). Plus le diamètre de la particule est important, plus l'efficacité de collecteur correspondante est importante également.

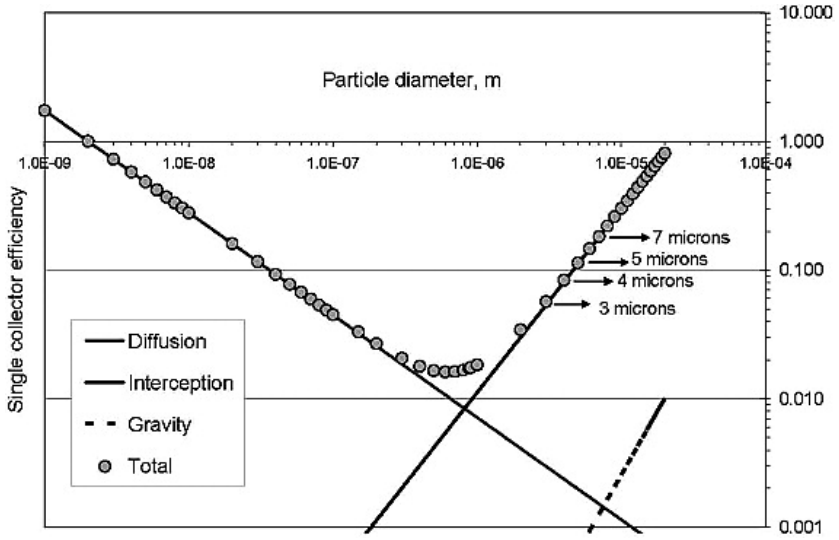


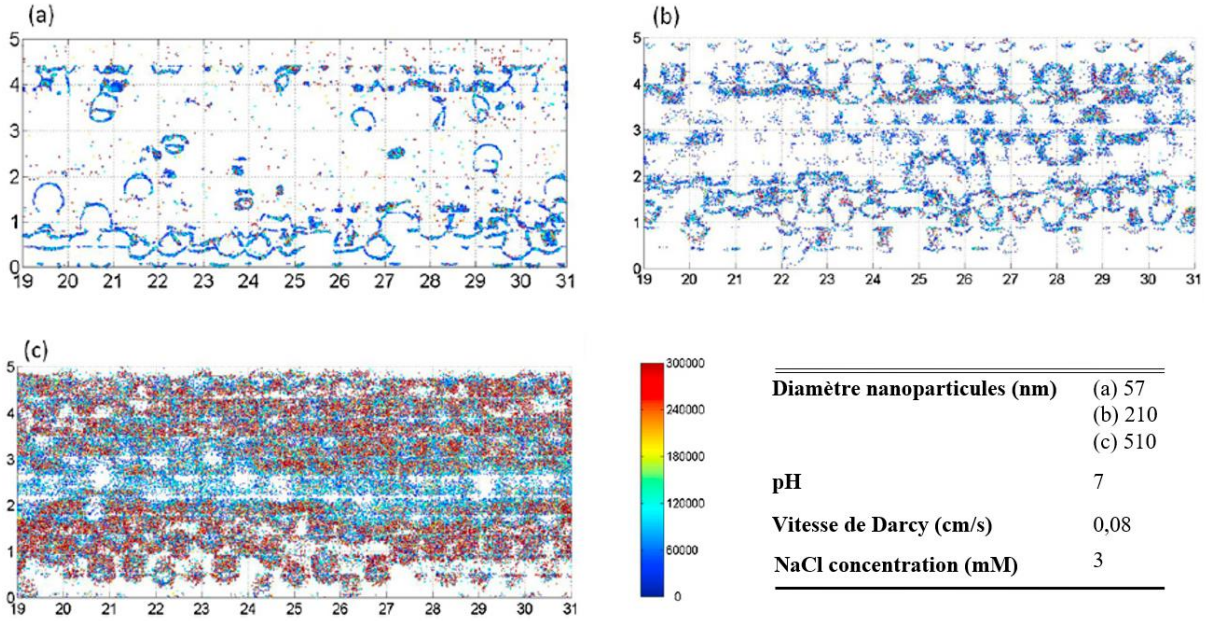
Figure 1.30 - Efficacité d'un collecteur unique en fonction de la taille des colloïdes, calculée à partir d'une équation développée par Tufenkji et Elimelech (2004) pour estimer la probabilité de collision (Auset et Keller, 2006).

Pour confirmer ces observations préliminaires, des tests d'injectivité sur micromodèles ont été réalisés ; des suspensions monodisperses de particules sphériques en polystyrène latex (diamètre moyen entre 3 et 7 mm) sont introduites en écoulement dans des micromodèles aux configurations différentes :

- Le micromodèle A présente des seuils de pore de l'ordre de 7-9 mm avec des grains de 35 mm de diamètre ;
- Les seuils de pore du micromodèle B ont une dimension comprise entre 15 et 20 mm pour la zone en entrée et entre 6 et 8 mm pour la zone en sortie. Cette configuration permet d'appréhender les effets d'une réduction du seuil de pore sur le flux particulaire.

Les résultats ont montré que les mécanismes de déplacement étaient en accord avec les calculs préalablement effectués avec un paramètre clé, le ratio entre le diamètre de la gorge du pore et celui du colloïde incident (« Throat to Colloid ratio T/C »). L'importance de ce ratio a été mise en évidence dans des études antérieures (Sirivithayakaporn et Keller, 2003 ; Keller *et al.*, 2004).

Par ailleurs, les conclusions sont identiques y compris pour des conditions de dépôt défavorables (faible force ionique de la suspension utilisée). May et Li (2013) ont ainsi étudié l'effet de la variation de la taille de particules fluorescentes injectées au sein d'un milieu poreux constitué de billes de verre de 600 à 710 µm de diamètre (Figure 1.31). Le ratio T/C est tel que tout effet de rétention par blocage mécanique est exclu (T/C très grand) et la force ionique de la suspension est établie à 3 mM NaCl (pH = 7).



Diamètre nanoparticules (nm)	(a) 57 (b) 210 (c) 510
pH	7
Vitesse de Darcy (cm/s)	0,08
NaCl concentration (mM)	3

Figure 1.31 - Distributions de la fluorescence détectée des nanoparticules de (a) 57, (b) 210 et (c) 510 nm dans une section de 12 mm de long au milieu du canal d'écoulement, après une injection de 40 PV de la solution de nanosphères suivie par une injection de 10 PV de la solution de fond (3mM NaCl, pH = 7). Chaque point correspond à la localisation d'un évènement enregistré par le scan LSC lorsque la fluorescence est détectée. La taille du point n'est pas liée à la taille de la particule détectée et la barre colorée représente l'intensité de fluorescence détectée (modifié de May et Li, 2013).

Au vu des conditions physico-chimiques imposées, la théorie DLVO prévoit une barrière énergétique plus importante pour les particules de diamètre 510 nm (environ 10 fois supérieure à celle calculée pour les particules de 57 nm). Néanmoins, les observations réalisées par cytométrie à balayage laser (LSC) montrent un attachement nettement plus important des particules de 510 nm qui ont dans un premier temps saturé tous les sites de dépôt puis qui dans un second temps sont devenues elles-mêmes de nouveaux sites d'adsorption. La LSC permet de détecter par faisceau laser le marqueur de fluorescence sur les particules. Selon les auteurs, les hétérogénéités des charges de surface pourraient être à l'origine de la fixation importante des particules malgré une énergie d'interaction DLVO a priori défavorable au dépôt.

Les études réalisées sur l'impact de la taille des colloïdes injectés dans le milieu poreux (billes en verre ou sables d'Ottawa) à l'aide de courbes de percée ont montré que les effluents collectés en sortie étaient moins concentrés lorsque la taille des particules augmentait (Bradford *et al.*, 2002), signe d'une plus grande absorption des particules, menant *in fine* à un déclin plus important de la perméabilité dans la section testée (Moghadasi *et al.*, 2004).

1.3.3.2 Forme

Les particules en suspension dans les fluides circulant dans le sous-sol ne présentent généralement pas les caractéristiques de morphologie dites modèles qui sont utilisées pour les expériences d'injectivité. Or cet aspect de forme est particulièrement important à considérer notamment pour comprendre les taux de filtration des bactéries qui sont en bâtonnet. Ainsi, un certain nombre d'études se sont intéressées à l'influence de la forme des colloïdes injectés dans les milieux poreux par rapport à des particules dites modèles (forme sphérique).

Afin de mesurer directement l'impact de la forme des colloïdes sur leur rétention par le milieu poreux, Salerno *et al.* (2006) ont obtenu des particules avec différents facteurs de forme (2 :1 et 3 :1) à partir d'une même particule sphérique initiale, après chauffage, étirement et refroidissement. La charge de surface et le volume de ces particules ont été maintenus constants. Les expériences ont été menées sur des colonnes (triplicata pour chaque expérience) avec un milieu poreux constitué par un lit de billes de verre sphériques. Pour deux forces ioniques différentes, les essais ont montré que les rétentions et les efficacités de collision des trois différents types de particules augmentaient considérablement en fonction de leur rapport d'aspect (1:1, 2:1 et 3:1) (Figure 1.32). Ces résultats indiquent que, y compris pour des conditions de dépôt défavorables (force ionique de 1mM KCl), les particules en bâtonnet sont préférentiellement adsorbées dans le milieu poreux, par comparaison à des particules sphériques.

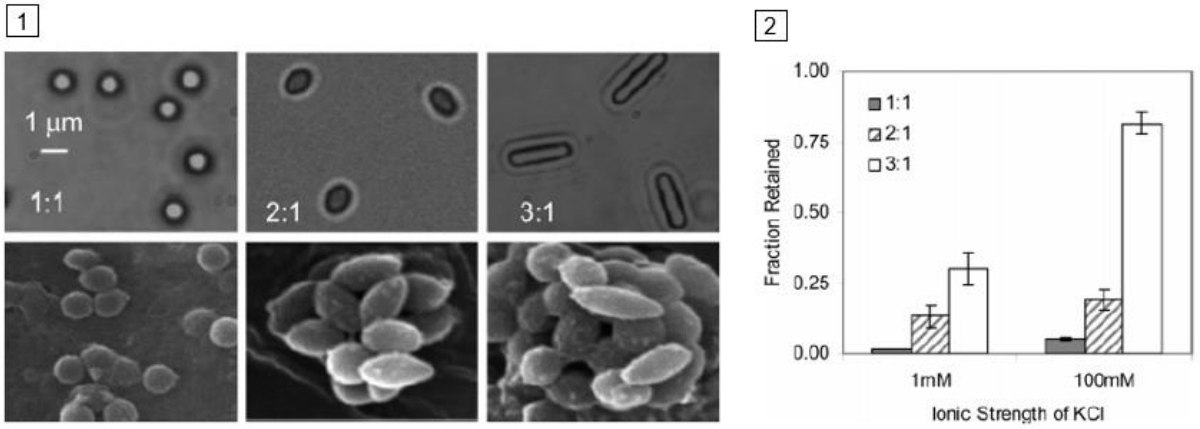


Figure 1.32 - 1) Images optiques (en haut) et au microscope électronique à balayage (SEM, en bas) de particules ayant des rapports de taille de 1:1 (contrôle), 2:1, et 3:1. 2) Fraction des particules retenues dans les colonnes garnies en fonction du rapport de taille et de la force ionique (les barres d'erreur représentent les intervalles de confiance à 95% avec n ≥ 3) (Salerno *et al.*, 2006).

De la même façon, Seymour *et al.* (2013) ont étiré des particules de latex (groupement carboxyle) en forme de bâtonnets avec des rapports d'aspect allant de 2:1 à 4:1 pour étudier l'impact de la forme sur la dynamique de l'écoulement et de rétention dans des conditions défavorables (3mM NaCl). Les calculs initiés par la théorie DLVO indiquent que la hauteur de la barrière énergétique entre les particules incidentes et les billes de verre du milieu poreux dépend de l'orientation des particules par rapport à la surface collectrice. Cette barrière énergétique est bien plus élevée lorsque les particules se déposent en position latérale (« side-on », axe majeur parallèle

à la surface plane du grain collecteur) qu'en position perpendiculaire (« end-on », axe majeur perpendiculaire à la surface du grain). Par ailleurs, pour une même orientation, la barrière énergétique est inversement proportionnelle au facteur de forme.

L'analyse par cytométrie à balayage laser (LSC) réalisée lors de cette étude a permis de constater une rétention bien plus importante des particules en bâtonnets (Figure 1.33) qui s'orientent préférentiellement afin d'augmenter la surface d'interaction avec les grains collecteurs ; elles se « couchent » sur le côté. L'augmentation du taux d'attachement au cours du temps est également dû au fait que les particules incidentes, une fois adsorbées, deviennent à leur tour des surfaces collectrices.

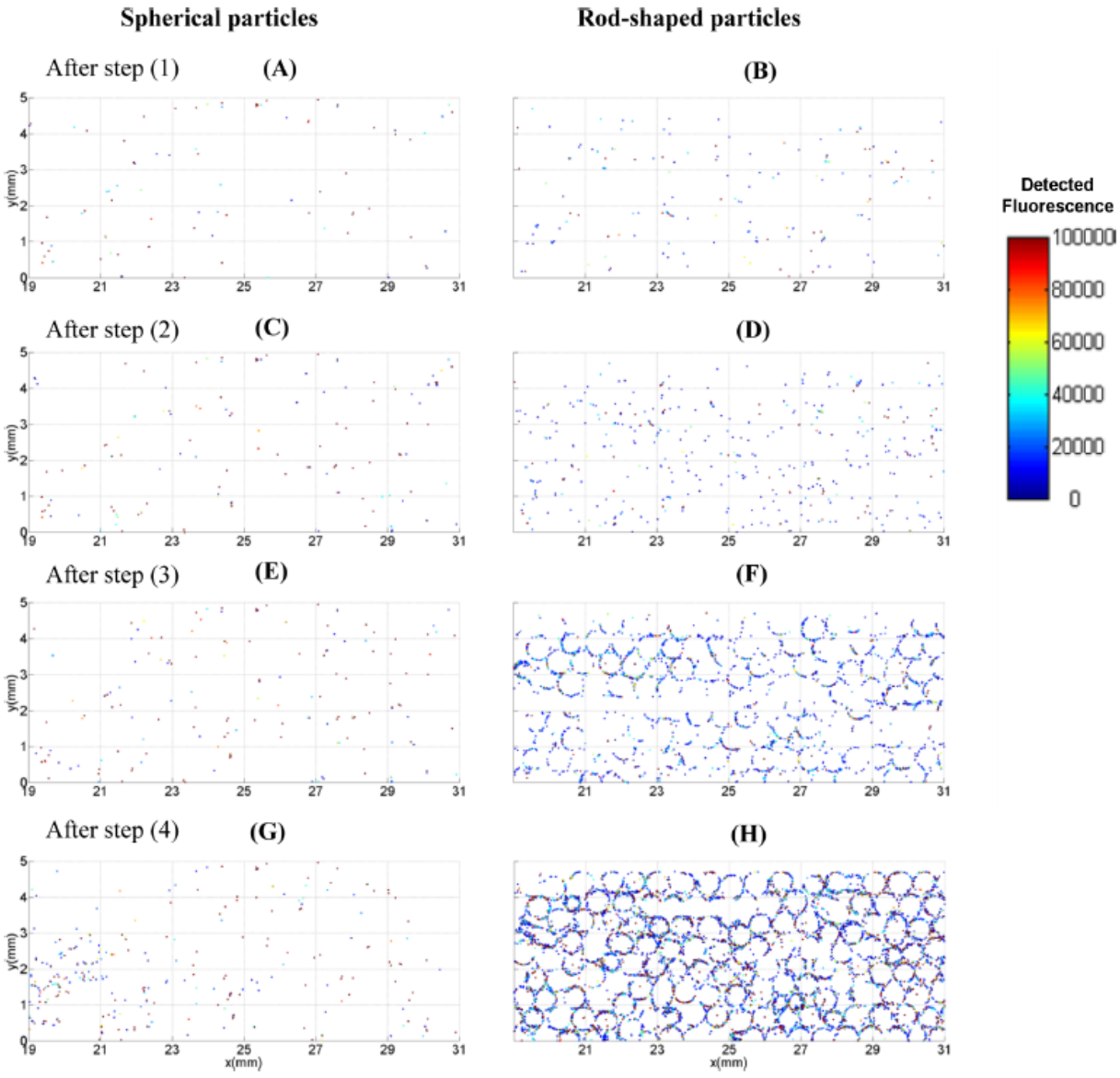


Figure 1.33 - Distribution des nanoparticules sphériques (gauche) et en forme de bâtonnet (2:1) attachées (droite) après quatre étapes des expériences menées à 3 mM NaCl, pH 7.0, 0.00025% (w/v) de solides et une vitesse de Darcy de 0.04 cm/s. 10 PV, 10 PV, 20 PV et 40 PV de suspension de particules ont été injectés pour les étapes 1 à 4, respectivement, suivis par 10 PV de solution de fond et un balayage LSC au même endroit après chaque étape (issu de Seymour *et al.*, 2013).

D'autres formes de particules ont été investiguées ; Xu *et al.* (2008) ont procédé à des tests de filtration sur colonnes pour évaluer la rétention de particules en forme de cacahuète (Figure 1.34).

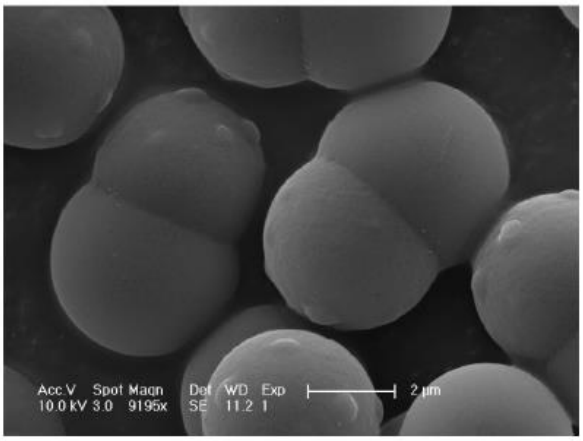


Figure 1.34 - Images de microscopie électronique à balayage (MEB) des particules en forme de cacahuète (Xu *et al.*, 2007).

Les observations expérimentales et de simulation ont permis de démontrer que le transport de ces colloïdes en forme de cacahuète est semblable à celui de particules sphériques, dont le diamètre est égal à la longueur de l'axe mineur des particules en cacahuète. Les taux de rétention pour les colloïdes sphériques varient linéairement avec le rapport entre le diamètre du colloïde (d_p) et celui du grain de sable (d_g) constituant le milieu poreux pour $0{,}0083 < d_p / d_g < 0{,}06$. De fait, cette évolution linéaire permet de quantifier également les taux de rétention des particules en forme de cacahuète, mais ceci uniquement si la longueur de l'axe mineur de la particule est prise comme diamètre. Ces particules adoptent une orientation préférentielle à l'approche de la constriction (gorge des pores) et adopte ainsi une orientation telle que l'axe majeur de la particule tend à s'aligner avec la direction de l'écoulement.

Ce résultat vient confirmer les observations réalisées par Seymour *et al.* (2013) ; les particules non-sphériques tendent à adopter une orientation préférentielle à l'approche des surfaces collectrices qui favorise leur rétention au sein du milieu poreux.

Bien que la plupart des travaux de la littérature semblent indiquer l'importance du facteur de forme sur la dynamique de rétention et ainsi de colmatage d'un milieu poreux par une suspension colloïdale, Liu *et al.* (2010) ont montré que la forme des particules (rapport d'aspect atteignant 7:1 par rapport aux particules sphériques) affectait le comportement du transport de la suspension mais pas le taux de rétention ; celui-ci n'a pas augmenté avec l'augmentation du rapport d'aspect. Ce résultat peut être dû au rapport de taille très important entre les colloïdes (500 nm de diamètre pour les particules sphériques) et le milieu poreux (colonnes de billes de verre avec une taille moyenne de 0,22 mm de diamètre) qui n'a pas été considéré dans le cadre de cette étude.

1.3.3.3 Concentration

La concentration est l'une des caractéristiques de la suspension injectée pouvant exercer une influence sur le dépôt des colloïdes au sein du milieu poreux ; la variation de concentration en particules a ainsi été l'objet d'études dont les résultats montrent une certaine complexité.

L'analyse des courbes de concentration des effluents issues des tests d'injectivité sur colonne menés par Bradford et Bettahar (2005) a permis de montrer que plus la suspension injectée

initialement était concentrée, plus le taux de récupération de particules en sortie était important. Les auteurs ont ainsi observé l'influence de la concentration des colloïdes avec une gamme égale à 2, 1, 0,5 et 0,25 fois la concentration de référence égale 3,86 x 10^{10} particules par litre. Le milieu poreux utilisé est constitué de sables d'Ottawa dont la granulométrie était également variée (sables constitués de grains de quartz de diamètre 150, 240 et 360 μm). Une masse similaire (approximativement 3,28 mg) de colloïdes monodisperses (microsphères fluorescentes en latex, diamètre de 1 ou 3,2 μm employés) est injectée dans chaque colonne, permettant ainsi de comparer directement les courbes de concentration d'effluents (masse récupérée en sortie). En parallèle, des calculs de simulation ont été effectués pour comparer les résultats théoriques à ceux expérimentaux.

Les résultats (Figure 1.35) montrent que pour une taille de colloïde et un sable donné, les valeurs du taux de déposition semblent augmenter lorsque la concentration initiale est plus faible. Par ailleurs, pour les sables les plus grossiers, le taux de récupération des particules dans les effluents est particulièrement élevé pour les suspensions dont les concentrations sont multipliées par 2 par rapport à celle de référence.

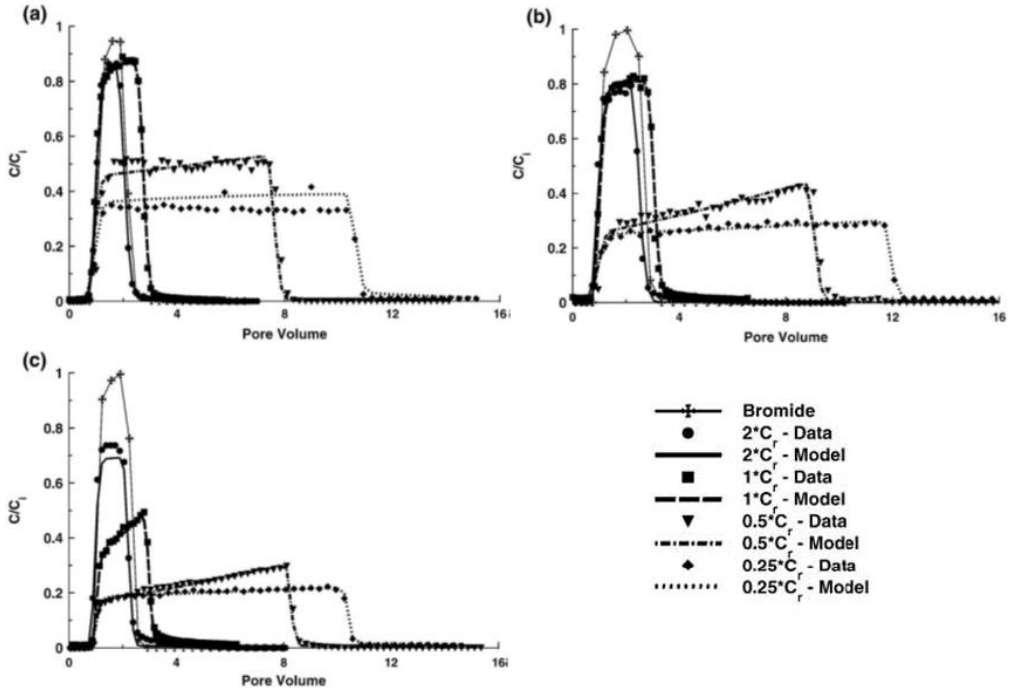


Figure 1.35 - Courbes de percée des effluents observés et simulés pour diverses concentrations en entrée (2*Cr, Cr, 0,5*Cr et 0,25*Cr) de colloïdes de 1 μm dans du sable (a) 3550 (diamètre moyen de 360 μm), (b) MIX (240 μm) et (c) 70110 (150μm). Une courbe de percée du traceur bromure est également illustrée en tant que référence (modifié de Bradford et Bettahar, 2005).

Les concentrations élevées de particules sont associées à un nombre accru de collisions, produisant ainsi un transfert de masse relatif moindre vers les sites d'adsorption ; le dépôt est alors moins important. Bradford *et al.* (2009) ont ensuite précisé, à l'aide de tests sur colonnes, que les observations précédentes (*i.e.* le taux de dépôt baisse lorsque la concentration augmente) étaient valables pour des valeurs de force ionique faible (6mM) ou très forte (106mM). Pour des valeurs de force ionique intermédiaires (31 ou 56 mM), le pourcentage de colloïdes adsorbés dans le milieu poreux diminue avec la concentration, ce qui tend à compliquer les interprétations quant aux liens entre concentration et force ionique dans la dynamique de dépôt.

A contrario, les travaux menés par Moghadasi *et al.* (2004) pour investiguer les causes de perte de perméabilité sur un champ Iranien ont montré que l'augmentation de la concentration en particules de 500 à 2000 ppm menait à une réduction directe de la perméabilité (Figure 1.36).

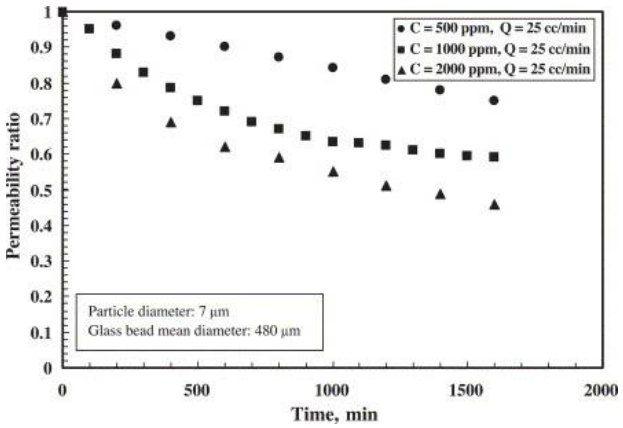


Figure 1.36 - Variations du ratio de la perméabilité en fonction du temps selon la concentration des suspensions injectées dans la colonne (Moghadasi *et al.*, 2004).

Les tests sur colonnes (lits de billes en verre, particules d'oxyde d'aluminium) indiquent en effet que pour un même débit, en augmentant la concentration des particules solides dans le fluide injecté, la sédimentation et le colmatage des pores arrivent plus rapidement. L'accumulation de la résistance à l'écoulement a été attribuée à la formation d'un cake à proximité du point d'injection (Moghadasi *et al.*, 2004).

Zhang *et al.* (2010) ont confirmé ces observations sur les effets de la variation de concentration ; des tests d'injectivité sur colonnes ont ainsi montré que lorsque les concentrations initiales augmentaient, la masse de récupération des effluents en sortie diminuaient, indiquant que le dépôt dans le milieu poreux et l'adsorption des particules étaient plus importants. Les auteurs ont montré que pour des expériences menées à des forces ioniques non nulles, le taux de dépôt est une fonction en puissance de la concentration initiale injectée.

Les études menées dans des conditions de saturation complète du milieu ont ainsi montré que l'augmentation de la concentration en particules peut soit augmenter, soit diminuer le pourcentage de colloïdes retenus. Les résultats de travaux réalisés avec des nanoparticules montrent également cette même complexité ; Wang *et al.* (2012) ont ainsi montré qu'une concentration plus élevée de nanoparticules a entraîné une rétention relative plus faible et une plus grande couverture de surface des grains collecteurs.

Il est par ailleurs intéressant de noter que les expériences d'injectivité sont menées avec une gamme de concentration en particules relativement importante (Tableau 1.7), et ce notamment pour adapter l'injection du fluide aux caractéristiques géométriques du milieu poreux utilisé.

Tableau 1.7 - Récapitulatif de quelques valeurs de concentration en particules utilisées pour des expériences d'injectivité.

Reference	Particle concentration (ppm)
Canseco Ruiz, 2009	200
Yao et al., 1971	10-200
Todd et al., 1984	5
Todd et al., 1990	1, 5, 10 and 15
Roque et al., 1995	2-20
Abduwani et al., 2003	20, 40 and 80

Baghdikian et al., 1989	1000 and 2000
Moghadasi et al., 2004	15-2000

1.3.4 Influence des propriétés du milieu poreux

1.3.4.1 Structure chimique de surface

Les travaux menés en laboratoire montrent des résultats qui semblent parfois surprenants ; les observations réalisées par Chen *et al.* (2001) à partir d'expériences sur des colonnes (écoulement de particules en latex carboxylées dans des lits de grès hétérogènes) suggèrent que le taux de dépôt et le transport des particules sont indépendants de la distribution spatiale de l'hétérogénéité chimique du milieu poreux. A partir des courbes de percée, les auteurs ont établi que la valeur moyenne de l'hétérogénéité chimique de la colonne régit le comportement du transport des colloïdes, plutôt que sa distribution.

La mobilité de particules dans un milieu poreux hétérogène chimiquement a également été investiguée par Johnson *et al.* (1996). Une suspension colloïdale de microsphères de silice (diamètre moyen de 0,3 μm) est injectée dans un milieu poreux constitué de grains de quartz (diamètre nominal de 0,32 mm) ; afin de produire des conditions de milieu poreux géochimiquement hétérogène, une portion des grains est recouverte d'oxyhydroxyde de fer. Les expériences d'injection sur colonne sont ainsi menées avec différents ratios de grains de quartz « propres » ou recouverts d'une couche d'oxyhydroxyde de fer. Les résultats montrent un clair impact de ce ratio et donc de l'hétérogénéité de la structure chimique de la surface sur la mobilité des colloïdes en milieu poreux (Figure 1.37).

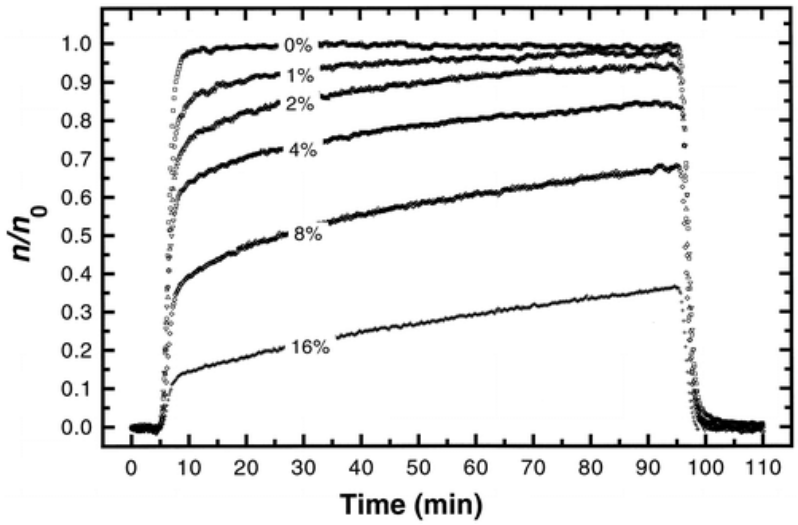


Figure 1.37 - Courbes de percée correspondant aux expériences sur colonnes selon les différentes fractions de grains recouverts d'oxyhydroxyde de fer – les ratios sont indiqués sur les courbes (Johnson *et al.*, 1996).

Lorsqu'aucune hétérogénéité de charge de surface n'est présente (0% de grains recouverts d'une couche d'oxyhydroxyde de fer), $n/n_0 \sim 1$; aucun dépôt des microsphères de silice n'est constaté, dû au fait qu'aucune surface n'est favorable à l'adsorption des particules. L'introduction des grains de quartz modifiés est cependant associée à un changement important dans cette dynamique, y compris pour de faibles pourcentages de grains d'oxyhydroxyde de fer dans la colonne : pour 16%, presque 75% des colloïdes de la suspension sont retenus par le milieu.

Plus récemment, Guo *et al.* (2020) ont investigué le transport de particules (microsphères de polystyrène carboxylé) à travers différents analogues de milieux poreux construits avec des microsphères de polystyrène de charges opposées selon différents rapports de mélange. Pour leurs

expériences, six différents ratios de billes « + » et « - » ont été mis en place (Figure 1.38) ; pour un milieu homogène comprenant uniquement des billes « - », un pourcentage très faible de particules a été déposé (C_{out}/C sensiblement égal à 1). Les répulsions électrostatiques entrainent en effet ce dépôt négligeable. L'addition d'une faible fraction de billes chargées « + » est associée à un changement clair des courbes de percée ; le « plateau » est retardé et bien plus de la moitié des particules incidentes dans la suspension sont retenues par le milieu poreux. Le caractère légèrement ascendant des courbes de percée est dû au phénomène de blocage. Finalement, dès 24 % de billes « + », presqu'aucune particule ne parvient à atteindre l'aval du milieu poreux (C_{out}/C sensiblement égal à 0), ce qui vient confirmer les résultats préalablement établis par Johnson et al. (1996).

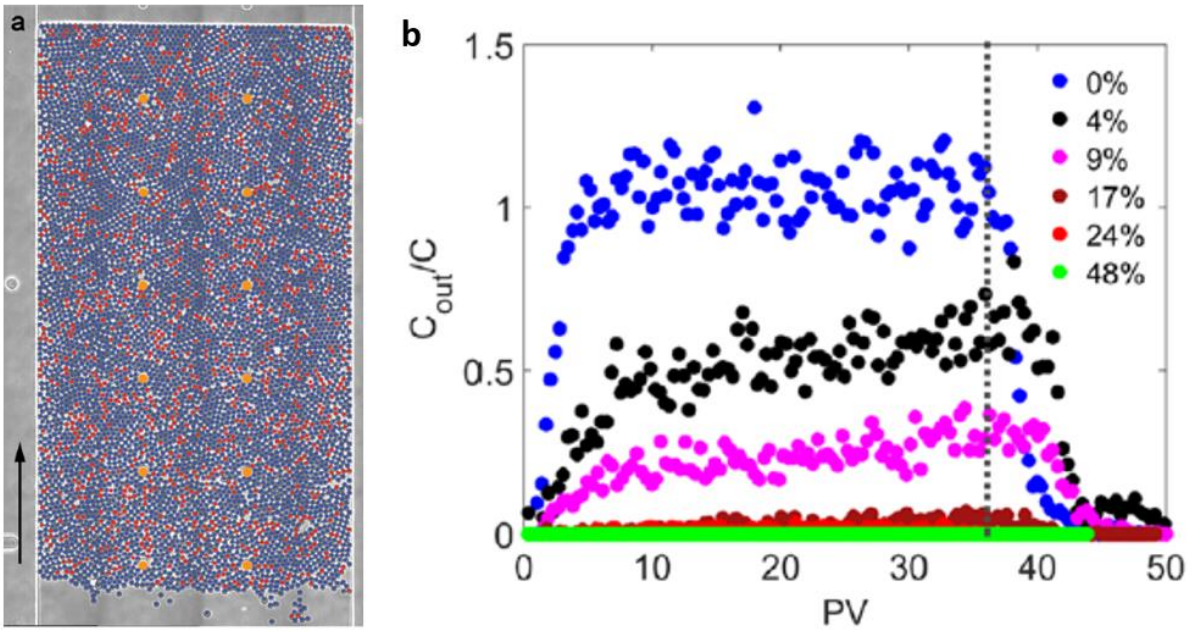


Figure 1.38 - a) Milieu poreux avec 17% de billes fonctionnalisées avec des amines "+" (rouge) et 83% de billes fonctionnalisées avec des carboxyles "-" (bleu) - determination par fluorescence. La flèche indique le sens de l'écoulement et les ronds circulaires oranges correspondent aux piliers supportant l'enceinte du milieu poreux. b) Courbes de percée des expériences d'injection de particules colloidales carboxylées (0,5µm de diamètre) dans des milieux poreux à différents ratios de billes fonctionnalisées avec des amines ou des carboxyles. Le pourcentage indique la part de billes « + » et la ligne pointillée indique le début du rinçage à l'eau distillée (figures issues de Guo *et al.*, 2020).

L'ensemble de ces résultats suggère que le degré de variabilité géochimique et donc la disponibilité de surfaces favorables au dépôt joue un rôle majeur dans le transport et le dépôt des colloïdes dans les environnements de subsurface.

1.3.4.2 Type de milieu/structure porale

L'impact de la structure porale du milieu utilisé dans les expériences d'injectivité a été étudié afin de comprendre son influence sur le dépôt des colloïdes en suspension et en circulation. La rugosité de surface peut ainsi être définie comme la déviation de la topographie réelle de la surface considérée par rapport à une surface lisse idéale (Kreder *et al.*, 2016). Cet aspect est particulièrement intéressant à étudier dans la mesure où la théorie DLVO considère des surfaces d'interaction comme parfaitement lisses or les surfaces naturelles des roches en subsurface présentent des aspérités pouvant favoriser la rétention des particules en écoulement.

Des études menées par Shen *et al.* (2012) ont montré que des colloïdes entrant en contact avec un élément de rugosité pouvaient être soumis à des forces répulsives à une distance de séparation nulle et ainsi, à de faibles forces ioniques, éliminer complètement le minimum primaire

d'énergie des courbes d'interaction DLVO. Les colloïdes initialement déposés par association de minima primaires peuvent donc être libérés à la suite d'une réduction significative de la force ionique de la solution. Ces résultats théoriques ont été confirmés par des expériences sur colonnes.

D'autres résultats d'expériences menées sur colonnes montrent que la rugosité de surface entraine une rétention significative des colloïdes (Bradford et Torkzaban, 2013), et ce pour un milieu poreux saturé ou non-saturé (Morales *et al.*, 2009).

En effet, la figure suivante (Figure 1.39) permet d'observer que pour des conditions initiales similaires de saturation, les courbes de percée associées aux milieux poreux « lisses » sont plus hautes, *i.e.* C/C_0 tend vers 0,8 tandis que C/C_0 oscille autour de 0,6 pour les milieux plus rugueux. Ces courbes indiquent ainsi que la rétention est plus importante pour des milieux poreux dont la texture de surface n'est pas lisse et homogène.

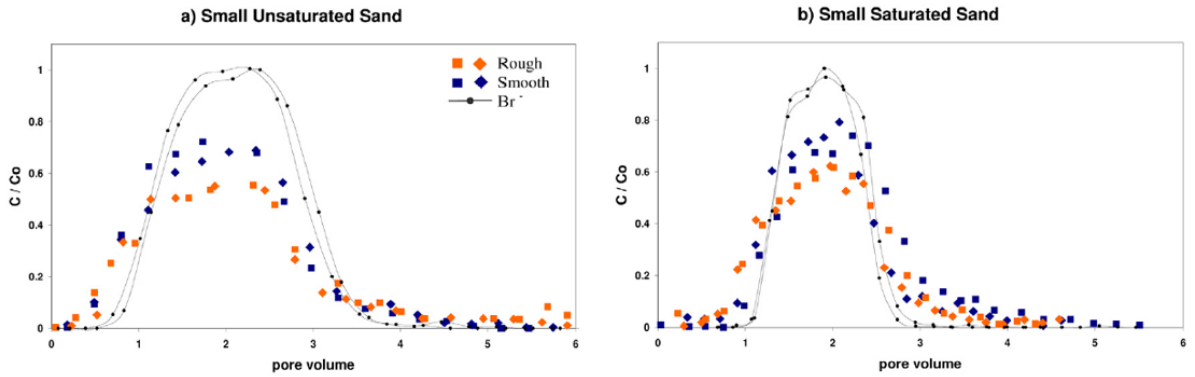


Figure 1.39 - Courbes de percée pour des sables lisses et rugueux de 0,3 à 0,42 mm (a) non saturés et (b) saturés. Le bromure a été utilisé en tant que traceur pour la courbe de référence (en noir) (Morales *et al.*, 2009).

Une observation plus directe par microscopie optique de l'influence de la rugosité sur l'absorption de particules a été réalisée par Auset et Keller (2006) sur des milieux poreux 2D. Les images SEM (Figure 1.40(2)) révèlent les différences de morphologie de surface entre les deux micromodèles avec notamment les bords plus lisses du modèle A. La rugosité semble avoir un effet sur l'hydrodynamique, altérant les lignes de courant et induisant ainsi un dépôt de particules plus important que pour des surfaces collectrices plus lisses. Par ailleurs, les efficacités de collision sont statistiquement plus importantes dans le milieu poreux rugueux que dans celui où les grains sont lisses (Figure 1.40(1)), et ce même pour des conditions de dépôt plutôt défavorables (force ionique faible).

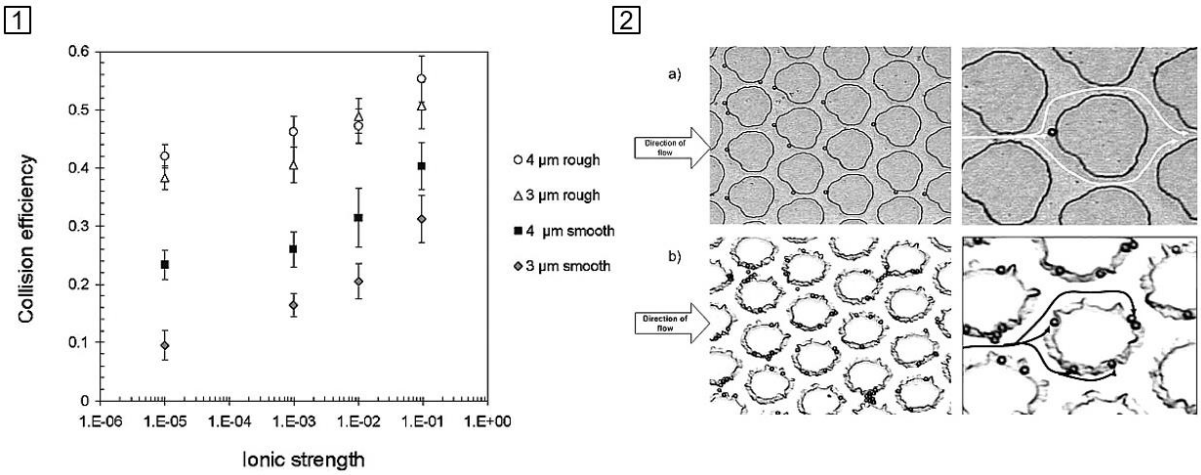


Figure 1.40 - 1) Efficacités de collision en fonction de la force ionique pour les colloïdes de 3 et µm (polystyrène) injectés dans les micromodèles rugueux (« rough ») et lisse (« smooth ») (Auset et Keller, 2006). 2) Images du dépôt des colloïdes dans (a) le micromodèle A (smooth) et (b) le micromodèle B (rough). Les lignes de courant sont dessinées à la main pour indiquer le trajet des colloïdes (Auset et Keller, 2006).

Ces expériences tendent à montrer que la rugosité de surface a un impact important sur la cinétique des interactions entre les collecteurs de particule (Auset et Keller, 2006). Shen *et al.* (2012) précisent que l'hétérogénéité de la surface joue également un rôle critique dans le détachement des colloïdes dans des conditions favorables et défavorables.

L'ensemble des résultats montre que la rugosité de surface est un paramètre pertinent à introduire dans les approches générales du dépôt (Henry *et al.*, 2011).

1.3.5 Influence des conditions opératoires sur l'écoulement

1.3.5.1 Débit

De nombreuses études se sont intéressées à l'effet de la vitesse d'écoulement sur la rétention des colloïdes dans les milieux poreux saturés (Mackley et Sherman, 1992 ; Bradford *et al.*, 2007 et 2011 ; Du *et al.*, 2013). L'ensemble de leurs résultats tend à montrer qu'à forte vitesse d'écoulement et avec des conditions chimiques non favorables au dépôt, la rétention des colloïdes est moins importante. Lorsque les conditions sont favorables, les conclusions sont moins évidentes ; la compétition entre les forces d'adhésion dues aux interactions DLVO et les forces hydrodynamiques est importante. Le dépôt dépend du débit et de l'amplitude des forces d'interactions DLVO.

Zhang *et al.* (2015) ont ainsi étudié le comportement de colloïdes en suspension soumis à un écoulement dans un milieu poreux selon différents débits. Ils ont utilisé un micromodèle en PDMS (polydimethylsiloxane, polymère hydrophobe) et des microsphères hydrophiles de polystyrène fluorescent avec des groupements de surface carboxyle et un diamètre moyen de 300 nm en solution. Les calculs effectués sur les forces DLVO ont montré qu'une barrière énergétique significative existe entre un colloïde et la surface du PDMS, indiquant que le dépôt est improbable dans les conditions expérimentales mises en place. Les courbes de percée obtenues (mesure de l'intensité de fluorescence en sortie du micromodèle) ainsi que les observations faites au microscope confocal ont permis de montrer que le taux d'attachement des colloïdes est plus petit lorsque le débit est plus important. Ainsi, lorsque le débit est à 50 nL/min (q), la concentration en colloïdes normalisée des effluents atteint ~ 0,68. Lorsque le débit est augmenté d'un facteur 5 (5q), le maximum atteint ~ 0,8 et à un débit de 10q, la concentration maximum des effluents atteint ~ 0,95, indiquant un taux d'attachement bien plus faible que pour les débits moins importants (Figure 1.41).

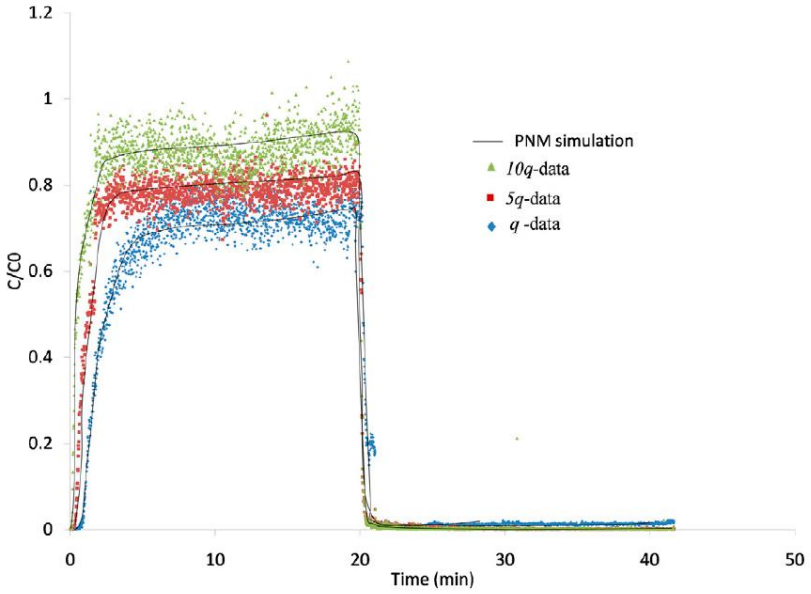


Figure 1.41 - Courbes de percée de la concentration en colloïdes de la suspension mesurée en dans les effluents selon un débit d'injection différent (q, 5q et 10q correspondent à 50, 250 et 500 nL/min respectivement) ; PNM signifie modèle de milieu poreux 'Pore-Network Model' et correspond aux simulations effectuées (Zhang *et al.*, 2015).

Ce résultat semble confirmer qu'à fort débit, et avec des conditions non favorables au dépôt, la rétention des colloïdes est moins importante.

Plus récemment, les travaux de Bizmark *et al.* (2020) ont mis en lumière l'importance des forces hydrodynamiques (fort débit) dans le transport et le dépôt des colloïdes ; leurs résultats montrent que les caractéristiques macroscopiques du dépôt sont dictées par la pression imposée à l'écoulement, et ce de façon similaire pour des particules dont les propriétés de surface sont différentes.

En effet, dans un premier temps, ils se sont intéressés à l'écoulement d'une suspension de particules de polystyrène fluorescent fonctionnalisées avec des groupements amines dans un milieu poreux 3D constitué de billes hydrophiles de verre. Théoriquement, lorsque le débit est important (fort gradient de pression imposé, ΔP = 260 kPa soit 1,5 ml/h) et selon la théorie DLVO, les fortes interactions électrostatiques entre les particules chargées positivement et les billes chargées négativement devraient mener à un dépôt localisé en amont du milieu poreux. Or les observations au microscope confocal montrent un profil de dépôt des particules étendu sur toute la longueur du milieu poreux (Bizmark *et al.*, 2020). De fait, puisque l'injection est continue, les contraintes hydrodynamiques dues à l'écoulement du fluide sur les dépôts qui croissent sont suffisantes pour surmonter les répulsions électrostatiques possibles entre les particules de même charge et qui sont déjà déposées dans le milieu.

Les dépôts mono et multi particulaires sont érodés, brutalement déplacés par l'écoulement du fluide et ensuite redéposés dans d'autres pores en aval. Ce processus cyclique et progressant de manière continue au cours de l'injection permet aux particules de se déposer sur toute l'étendue du milieu poreux.

L'analyse suggère ainsi que l'érosion du dépôt peut être modulée par le gradient de pression imposé ; en effet, à plus faible débit (ΔP = 80kPa soit 0,15 ml/h), les forces hydrodynamiques sont moins importantes. Le dépôt est localisé en amont du milieu (Figure 1.42).

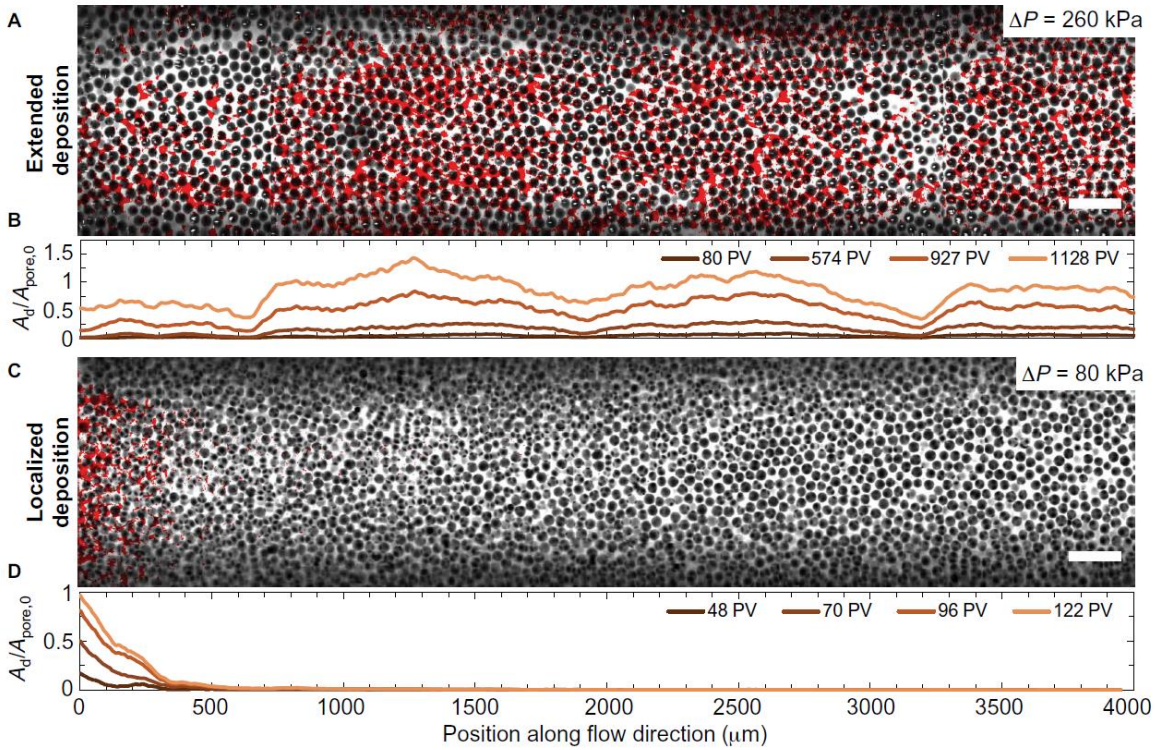


Figure 1.42 - A et C) Images au microscope confocal du dépôt des particules de polystyrène aminées (en rouge) au sein du milieu poreux (billes de verre en noir) selon les deux gradients de pression imposés à l'écoulement (260 kPa et 80 kPa respectivement) ; la barre d'échelle correspond à 200 μm. B et D) indiquent la quantité de dépôt à chaque position le long de la direction d'écoulement, avec A_d la surface moyenne latérale occupée par les particules déposées et $A_{pore,0}$ la surface de l'espace poreux avant l'injection. Issu de Bizmark *et al.*, 2020.

À fort débit (ΔP = 170 kPa soit 1,2 ml/h), l'injection de particules de polystyrène portant un groupe carboxyle aboutit à la formation d'un profil de dépôt étendu sur toute la longueur du milieu poreux bien que les interactions électrostatiques entre les particules et les billes soient répulsives (charges similaires). La microscopie révèle néanmoins que le dépôt, bien que suivant une dynamique similaire à celle observée avec les particules fonctionnalisées par des amines (dépôt, érosion, puis redéposition) est bien moins important. De la même façon, lorsque le gradient de pression imposé est plus faible (ΔP = 80 kPa soit 0,15 ml/h environ), l'impact des forces hydrodynamiques est diminué et entraine un dépôt des particules principalement en amont du milieu poreux (Figure 1.43).

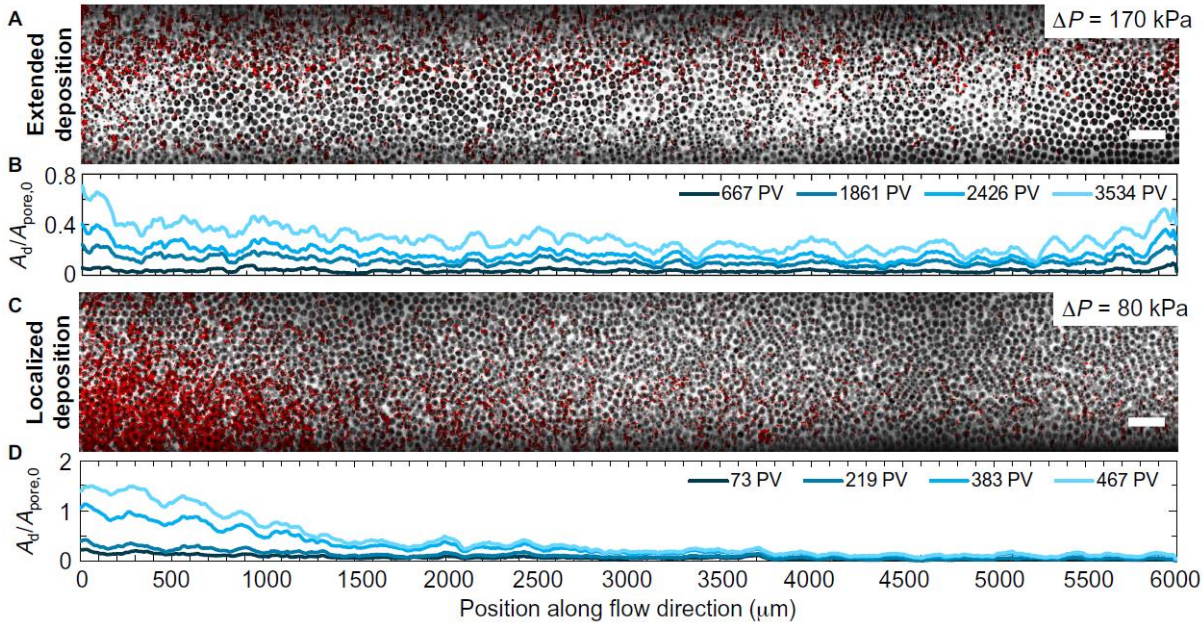


Figure 1.43 - A et C) Images au microscope confocal du dépôt des particules de polystyrène carboxylées (en rouge) au sein du milieu poreux (billes de verre en noir) selon les deux gradients de pression imposés à l'écoulement (170 kPa et 80 kPa respectivement) ; la barre d'échelle correspond à 200 μm. B et D) indiquent la quantité de dépôt à chaque position le long de la direction d'écoulement, avec A_d la surface moyenne latérale occupée par les particules déposées et $A_{pore,0}$ la surface de l'espace poreux avant l'injection. Issu de Bizmark *et al.*, 2020.

Ces résultats montrent que les interactions hydrodynamiques en relation avec les propriétés de surface sont importantes à prendre en compte pour l'analyse du dépôt et le transport des particules colloïdales.

1.3.5.2 Température

Dans le cadre des applications géothermiques, l'influence de la température sur le transport et le dépôt de particules puis l'endommagement des formations a fait l'objet de nombreux travaux.

En effet, durant l'exploitation géothermique, l'une des raisons principales de la réduction de perméabilité est la migration de particules fines tels que les argiles, les limons et sablons (Baudracco, 1990 ; Rosebrand et Fabricius, 2012 ; Rosebrand *et al.*, 2012, 2014, 2015 ; You *et al.*, 2019).

L'augmentation de température affecte la migration des fines selon différents mécanismes (Rosebrand *et al.*, 2014) parmi lesquels :

- L'expansion thermique de la roche (matrice solide) conduit à une réduction du volume poreux, et ainsi à une perte de perméabilité ;
- Les taux de dissolution minérale augmentent pour les systèmes fluide-roche qui sont en déséquilibre chimique. Les particules issues de ce phénomène peuvent alors contribuer au colmatage ;
- La permittivité diélectrique de la solution devient plus faible, réduisant ainsi l'épaisseur de la double couche électrique. Les répulsions entre les particules (d'argiles par exemple) et les surfaces collectrices (de grès) sont moindres, ce qui conduit à favoriser le dépôt ;
- La viscosité de l'eau et la force de traînée sont réduites, ce qui rend plus difficile l'éventuelle remobilisation des particules déposées.

Ainsi, de nombreux travaux menés sur des carottes issues de roches réelles tels que des grès de Berea, de Boise, de Massillon ou des Vosges, ont permis de montrer qu'une augmentation de

température est associée à une augmentation du dépôt lorsque la roche est soumise à l'écoulement d'un fluide. Rosebrand *et al.* (2015), Schembre et Kovscek (2005) et You *et al.* (2016) ont montré que la réduction de perméabilité dans des grès de Berea lors de l'augmentation de la température est dû à un changement de charge de la surface des grains de kaolinite (argile) et de quartz (du grès). Cette augmentation entraine une répulsion plus importante entre la kaolinite et le quartz ; l'argile n'adhère pas à la roche, reste en suspension et reste disponible pour le colmatage des pores.
Les essais menés par Cheng et Milsch (2020) sur des grès contenant des argiles différentes (illites) ont abouti à des résultats similaires : l'augmentation de la température jusqu'à 145°C a entrainé une réduction de la perméabilité par un facteur de 1,5 et ce quelle que soit la composition du fluide en écoulement (eau déionisée et solution à 2M de NaCl).

Plus récemment, Yan *et al.* (2020) ont conçu un dispositif microfluidique permettant l'observation directe du processus de dépôt de particules dans un micro-canal le long de la direction du gradient de température appliqué. Une suspension de particules de polystyrène fluorescent (diamètre d'environ 1 µm) diluée avec de l'eau Milli-Q et du chlorure de sodium NaCl ($5x10^{-4}$ M) est injectée au sein d'un micromodèle en PDMS dont le design (Figure 1.44(A)) permet d'appliquer un gradient de température.

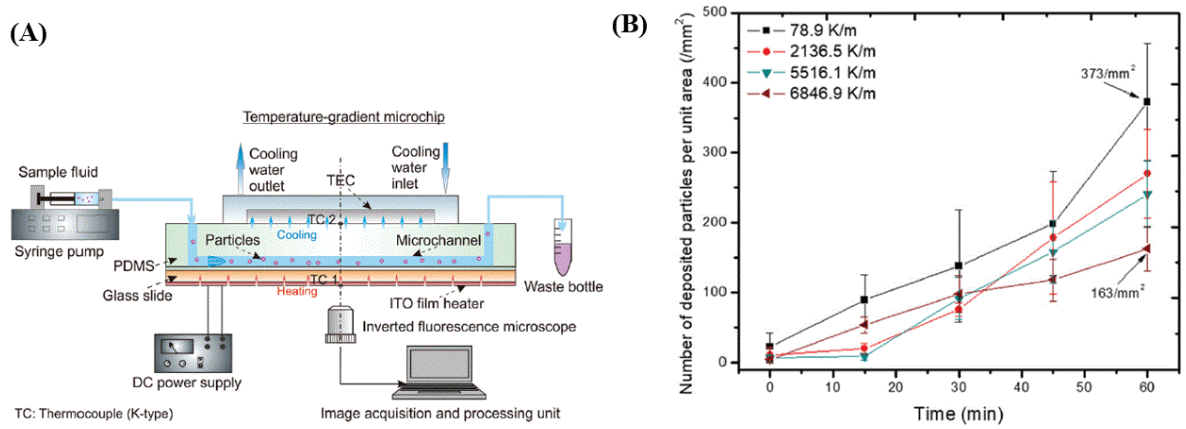


Figure 1.44 - (A) Schéma du système microfluidique. Deux thermocouples (TC 1 et TC 2) sont utilisés pour mesurer la température à la surface du PDMS et au niveau du système de chauffage du micromodèle (film mince d'oxyde d'indium et d'étain (200 nm d'épaisseur)). (B) Nombre de particules déposées par unité de surface en fonction du temps d'injection (débit fixe à 0,1 ml/h) pour quatre gradients de température différents. Figures issues de Yan *et al.* (2020).

Leurs résultats (Figure 1.44(B)) ont montré que pour chaque gradient de température appliqué, le nombre de particules déposées par unité de surface augmentait graduellement avec le temps d'injection, passant de 0 particules/mm² à 163 particules/mm² par exemple pour le gradient de 6846,9 K/m (soit un gradient de 6,6 °C/mm environ) lorsque t est égal à 60 minutes.

En effet, après 60 minutes d'injection, le nombre de particules déposées est plus de deux fois supérieur entre les deux gradients de température extremums testés (373 particules/mm² pour le faible gradient contre 163 particules/mm² pour le fort gradient) ; ceci indique qu'un fort gradient de température a un impact négatif pour le processus de dépôt des particules dans le micro-canal. Plus le gradient de température est important, moins il y a de dépôt. Cette observation est probablement due au fait que des températures plus importantes induisent une amplitude plus forte des forces de thermodiffusion ; moins de particules peuvent approcher la surface du canal, elles sont « poussées ».

Bien que ces observations semblent singulières par rapport aux précédentes conclusions effectuées pour les études menées sur des carottes réelles, il est important de noter que la présente

étude menée par Yan *et al.* (2020) correspond à l'injection d'une suspension dans un canal et non un milieu poreux.

Enfin, la température est un paramètre dont l'influence peut s'avérer majeure dans le cadre du transport et dépôt de colloïdes spécifiques tels que les virus, bactéries et autres micro-organismes. En effet, la température est un élément clé des systèmes biochimiques et de leur fonctionnement.

Ainsi, Sasidharan *et al.* (2017) ont étudié l'influence de la température sur le dépôt de deux virus biotiques (PRD1 et ΦX174) et des nanoparticules (NP) de latex modifié par des carboxyles (50 et 100 nm) au sein de colonnes de sables. L'objectif des expériences de transport est d'examiner la cinétique de fixation des virus et des NP dans un milieu poreux à deux températures différentes, 4 et 20 °C. Leurs résultats sont nombreux :

- Pour les deux virus considérés, les courbes de percée indiquent que le taux de rétention dans le milieu poreux est sensiblement égal lorsque la force ionique est importante, i.e. I = 50 mM, malgré les variations de température (Figure 1.45(A) et (B)). En effet, les courbes sont sensiblement identiques. A contrario, à force ionique modérée, *i.e.* I = 10 mM, l'augmentation de la température de 4 à 20°C est associée à une rétention bien plus importante des deux virus au sein du milieu poreux (C/C_0 plus faible à 20°C).
- Pour les colloïdes abiotiques considérés (NP de 100 nm de diamètre), les courbes de percée obtenues montrent qu'à force ionique modérée (I = 10 ou 30 mM), l'augmentation de la température de 4 à 20°C entraine une rétention plus importante des particules dans le milieu (Figure 1.45(C) et (D)), et ce pour les deux débits d'écoulement imposés.

Des résultats similaires ont été obtenus pour les NP de 50 nm de diamètre.

Ces observations indiquent que, pour les virus et les nanoparticules, l'augmentation de température est associée à une probabilité plus élevée de surmonter la barrière énergétique nécessaire au dépôt.

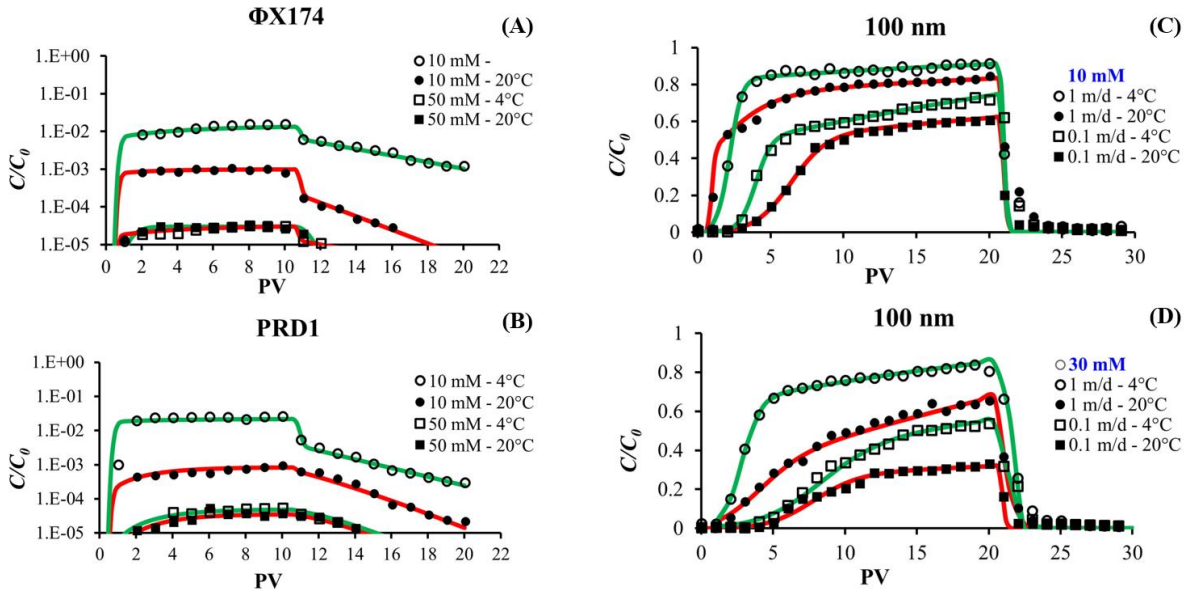


Figure 1.45 - (A) et (B) Concentrations des effluents (marqueurs) et les courbes de simulations correspondantes (lignes) associées à l'injection des virus ΦX174 et PRD1 respectivement, pour des expériences menées à température 4 ou 20 °C à des forces ioniques de 10 ou 50 mM. La vitesse interstitielle de pore est fixée à 0,1 m/jour. (C) et (D) Concentrations des effluents (marqueurs) et les courbes de simulations correspondantes (lignes) associées à l'injection d'une suspension de NP (diamètre 100nm) avec des expériences conduites à des forces ioniques de 10 mM et 30mM

respectivement, selon une température de 4 ou 20°C et une vitesse de pore de 0,1 ou 1 m/jour. Figures issues de Sasidharan *et al.* (2017).

L'ensemble de ces résultats montrent que la température semble avoir un effet clair sur la dynamique de transport et de dépôt des colloïdes au sein du milieu poreux.

1.4 Conclusion de l'état de l'art & définition des objectifs de l'étude

L'importance relative des forces d'origine hydrodynamique et physico-chimique a été étudiée afin d'évaluer leur impact sur l'énergie d'interaction totale qui régit le comportement d'une particule à l'approche d'une surface collectrice. Ces forces sont à mettre en relation avec les caractéristiques intrinsèques du milieu dans lequel la suspension de particules est mise en écoulement. En effet, les propriétés telles que la porosité, la tortuosité ou la perméabilité vont avoir un impact immédiat sur les mécanismes de rétention et ainsi le dépôt des particules. L'ensemble du transport particulaire dans les milieux est par ailleurs régi par un ensemble d'équations issues de la mécanique des fluides et de la théorie de la filtration développée par les travaux menés sur les écoulements de fluides.

La figure suivante (Figure 1.46) permet de récapituler l'ensemble de ces facteurs qui gouvernent les mécanismes d'endommagement des formations poreuses par colmatage progressif.

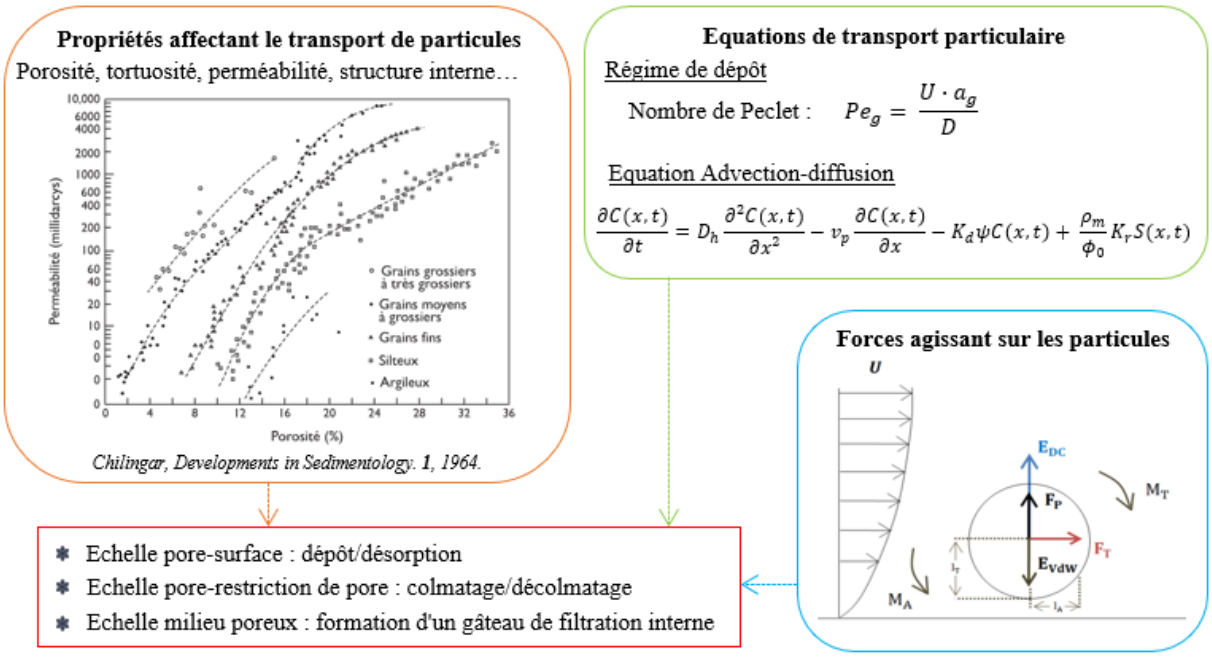


Figure 1.46 - Mécanismes de transport dans les milieux poreux.

La deuxième partie de l'analyse consacrée à la synthèse des travaux menés sur la problématique de l'injectivité a permis de montrer que de nombreux paramètres étaient des facteurs d'influence sur le transport et le dépôt des colloïdes, tels que les propriétés des particules (taille, forme, concentration) ou celles de la phase aqueuse (force ionique, électrolytes en présence, pH …), ou bien le type de structure porale et les conditions d'écoulement tels que le débit, la température et la pression. Les travaux consacrés à l'étude de l'effet de ces paramètres sont très nombreux et l'apport est très riche. Néanmoins, la grande hétérogénéité des descriptions et les

contradictions de certains résultats rendent complexe la généralisation des conclusions et les extrapolations à des cas applicatifs tel que la géothermie. Un premier élément clé expliquant ceci est le fait que la majorité des travaux sont conduits sur des milieux poreux 3D de dimension centimétrique ; les résultats sont donc macroscopiques et moyennés et il existe un réel manque d'informations à l'échelle du pore qui pourraient préciser, compléter ou permettre de mieux interpréter les données. Ce constat justifie ainsi l'approche microfluidique adoptée pour ces travaux de thèse. Le second élément concerne la variabilité importante des conditions expérimentales dans lesquelles sont réalisées les études ce qui complique l'accès à des conclusions facilement généralisables. En effet, les travaux réalisés à ce jour avec des outils microfluidiques ont essentiellement été conduits à l'aide de géométries (milieux poreux) régulières ou « simples ». Ceci explique le choix pour ces travaux de se placer dans des conditions opératoires représentatives (dans la mesure du possible) de la géothermie.

De toute évidence, de nombreux verrous sont encore à lever pour généraliser la formalisation des modèles décrits dans ce chapitre.

A l'issue de cette étude des travaux existants relatifs au colmatage des milieux poreux par des suspensions colloïdales, les objectifs de nos travaux sont de répondre aux questions suivantes :

- Quels mécanismes sont mis en jeu lors du colmatage d'un milieu poreux 2D hétérogène ?
- Comment ce colmatage affecte-t-il la perméabilité du milieu ?
- Milieux poreux 3D : validation des mécanismes ?
- Quelles solutions de mitigation peuvent être proposées au colmatage ?
- Quelles recommandations pour limiter la perte d'injectivité dans le contexte de la géothermie ?

Afin de répondre à ces objectifs, plusieurs axes de travail ont été mis en place. Ils sont exposés dans la partie suivante qui détaille notamment les deux montages expérimentaux développés, les appareils ainsi que les méthodes/analyses utilisés afin de répondre aux différentes problématiques.

Chapitre 2 : Matériels et méthodes

Sommaire

2.1 Présentation et caractérisation des suspensions utilisées 61
2.1.1 Travaux préalables : particules de silice 61
2.1.2 Microsphères de polystyrène 62
2.1.2.1 Caractéristiques principales 62
2.1.2.2 Mesure de taille de particules en suspension 63
2.1.2.3 Potentiel zêta et forces DLVO 64
2.1.2.4 Spectres d'absorption 66
2.1.2.5 Protocole de préparation des suspensions de particules 67
2.1.2.6 Rhéologie de la suspension 68
2.1.3 Particules d'argiles 69
2.1.4 Résumé des caractéristiques principales 70

2.2 Micromodèles : milieux poreux 2D complexes 71
2.2.1 Présentation des géométries et analyse du milieu poreux 71
2.2.1.1 Géométrie G1 71
2.2.1.2 Géométrie G2 74
2.2.1.3 Géométrie G3 76
2.2.2 Cartographie de la tortuosité 78
2.2.3 Simulations champ de vitesse 79
2.2.4 Comparaison des géométries et conclusion 81
2.2.5. Interface micromodèle – circuit microfluidique 82

2.3 Massifs granulaires : milieux poreux 3D 82
2.3.1 Caractéristiques du massif granulaire 83
2.3.2 Cellule de mesure 83
2.3.3 Caractérisation du milieu poreux 84

2.4 Bancs expérimentaux 85
2.4.1 Dispositif expérimental n°1 : imagerie LIF 86
2.4.1.1 Principe de la LIF pour l'étude du transport des fluides complexes en milieu poreux 86
2.4.1.2 Dispositif expérimental et fonctionnement 87
2.4.1.3 Traitement des mesures de perte de charge 88
2.4.1.4 Traitement des données d'imagerie 89
2.4.1.5 Calibration 92
2.4.1.6 Exemple type de données extraites d'une injection sur le banc expérimental n°1 92
2.4.2 Dispositif expérimental n°2 : dispositif de suivi dans le visible 93
2.4.2.1 Dispositif expérimental et fonctionnement 94
2.4.2.2 Traitement des mesures de perte de charge 95
2.4.2.3 Traitement des données d'imagerie 95
2.4.2.4 Exemple type de données extraites d'une injection sur le banc expérimental n°2 96
2.4.3 Choix des conditions expérimentales d'injection 97
2.4.4 Récapitulatif des expériences menées 99

Ce chapitre décrit les dispositifs expérimentaux utilisés, les développements réalisés ainsi que les différents fluides et milieux poreux testés. Une partie est consacrée à l'analyse des champs de vitesse réalisée par simulation numérique. Enfin, les différentes méthodes développées pour mettre en valeur les acquisitions expérimentales et en extraire les informations souhaitées sont exposées dans ce chapitre.

2.1 Présentation et caractérisation des suspensions utilisées

Dans la présente section, nous exposons les différentes particules qui ont été utilisées dans le cadre de ces travaux. Dans un premier temps, afin d'étudier le comportement de particules naturellement en circulation dans les formations géologiques, nous avons utilisé des particules de silice. Néanmoins, en raison de contraintes expérimentales, nous avons ensuite orienté le choix vers un système fluide plus « modèle » avec l'utilisation de particules de polystyrène. Enfin, lors de la phase finale d'expérimentation, des particules d'argiles ont été injectées dans le milieu poreux.

2.1.1 Travaux préalables : particules de silice

Certains travaux menés sur la nature des dépôts solides colmatant différentes installations géothermiques ont permis d'illustrer la diversité de la composition chimique des particules. Ainsi, la figure suivante (Figure 2.47) indique la signature géochimique des différents éléments particulaires identifiés comme responsables du colmatage du doublet géothermique correspondant. Une forte diversité se dégage de cette analyse, avec la présence de nombreuses natures géochimiques différentes selon des proportions fortement variables, en lien étroit avec les formations géologiques dans lesquelles les fluides circulent.

La silice semble être un agent particulaire rencontré fréquemment dans les dépôts et a ainsi orienté le choix initial de particules utilisées dans le cadre des travaux présentés ici.

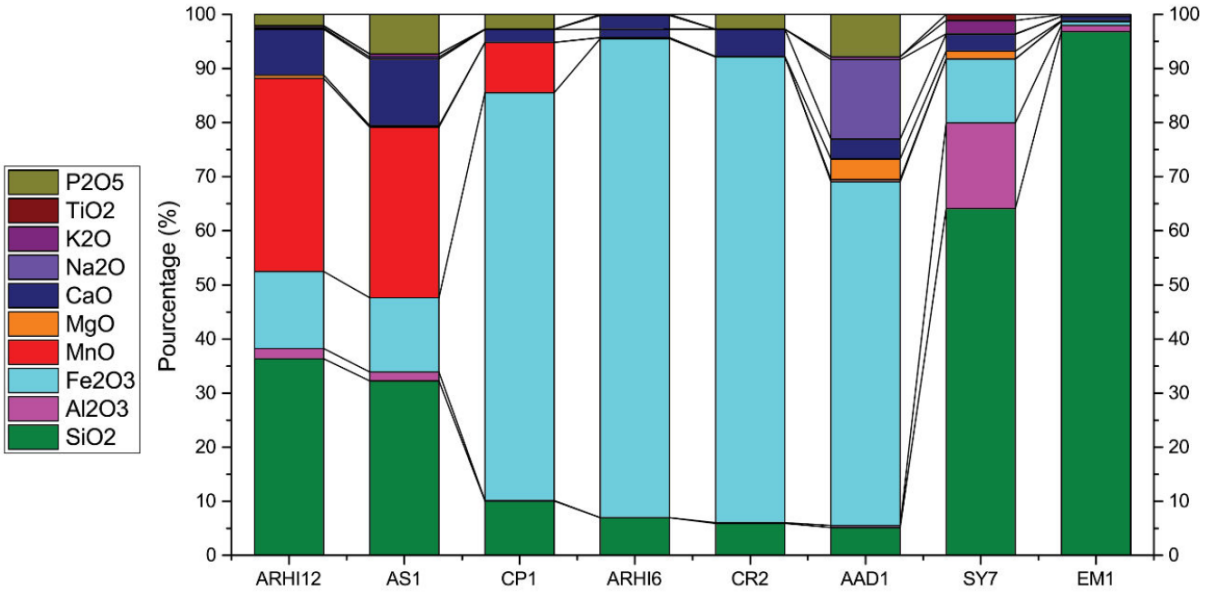


Figure 2.47 - Analyses élémentaires des dépôts impliqués dans le colmatage des éléments de la boucle géothermique. L'axe des abscisses (ARHI12, AS1, CP1 …) correspond aux noms de différents doublets pour lesquels les mesures ont été réalisées (Burté, 2018).

Des billes de silice (Si02) monodisperses de diamètre 1 µm ont ainsi été mises en suspension dans de l'eau distillée. Ces microsphères achetées auprès de ©NanoCym ont été choisies pour leur propriété d'indéformabilité. Par ailleurs, la nature de ces particules est associée à des propriétés de surface intéressantes ; puisqu'il s'agit de silice, la constante de Hamaker précédemment introduite (équation 1.8) est de l'ordre de 6.10^{-20} J. Selon des conditions de bulk, les interactions entre particules sont alors répulsives.

Ces solutions ont fait l'objet de mesure de taille de particules (appareil HORIBA LA 950) et de potentiel zêta (appareil Zetasizer Nano ZS de Malvern Instruments) afin notamment de comparer la stabilité des suspensions.

Néanmoins, ce produit a une densité bien plus élevée que celle de l'eau Milli-Q et environ égale à 2,65 $g.cm^{-3}$. Lorsque mises en suspension, ces particules de silice sont soumises à une vitesse de sédimentation proche de 0,324 $cm.h^{-1}$ selon la loi de Stokes (équation 1.1). Ce phénomène a ainsi été observé dans les lignes d'injection lors de leur utilisation. La sédimentation entraine de nombreuses incertitudes sur les concentrations réellement injectées dans le micromodèle lors des expériences. Nous avons ainsi pu observer des amas denses de particules de silice à certains emplacements spécifiques du circuit microfluidique, généralement en amont des inclinaisons ascendantes. À la suite de cette observation et dans la mesure où notre volonté résidait dans l'utilisation d'un fluide porteur simple, un nouveau type de particules moins denses a été choisi pour les travaux expérimentaux.

2.1.2 Microsphères de polystyrène

2.1.2.1 Caractéristiques principales

Le choix des nouvelles particules s'est porté sur des microsphères de polystyrène stabilisées par des groupements de surface. Les microsphères sont des particules sphériques inertes formées à partir d'un polymère amorphe tel que le polystyrène dont la taille est contrôlée. Le polystyrène est une chaine hydrocarbonée avec un anneau de benzène attaché à un atome de carbone sur deux et qui peut être fonctionnalisé par des groupements de surface. Dans le cadre de notre étude, deux types de microsphères de polystyrène ont été utilisés : des particules fonctionnalisées par des groupements carboxyles et d'autres fonctionnalisées par des groupements amidines greffées en surface (Figure 2.48).

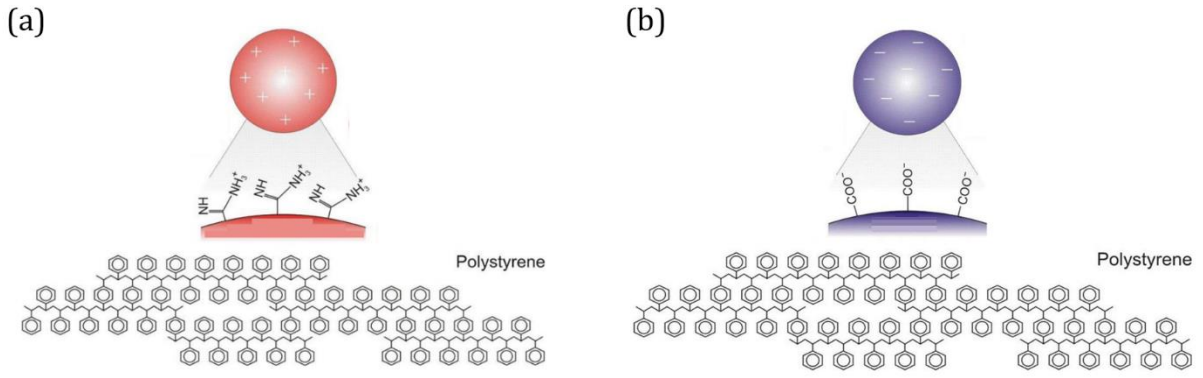


Figure 2.48 - Représentations schématiques d'une particule de polystyrène avec un groupe fonctionnel de surface (a) amidine et (b) carboxyle (modifié depuis Szilagyi, 2017).

Dans le cas des particules amidines (Fisher Scientific SAS), le groupement $C(=NH)NH_2$ rend la particule initialement hydrophobe positive. Ces particules sont sensibles aux contaminants chargés négativement et doivent être utilisées dans des environnements à pH faible ou neutre. Ces particules de taille 1 µm sont fournies dans une solution aqueuse à 4 % (w/v) et ont une densité de

1,05 g.cm^{-3} ce qui permet d'avoir une vitesse de sédimentation bien moins importante que pour les particules de silice. La vitesse est proche de 0,235 cm.j^{-1} selon la loi de Stokes (équation 1.1) alors que cette dernière était de 0,324 cm.h^{-1} pour les particules de silice. Ces particules ne fluorescent pas.

Finalement, à des fins d'analyse par fluorescence, des particules de polystyrène fluorescentes modifiées avec des carboxyles -COOH et de différents diamètres (1, 1,75 et 4,5 µm) ont été achetées auprès de Polysciences et mises en suspension dans de l'eau milli-Q. Les colloïdes sont fournis dans une solution aqueuse à 2,5 % (w/v) quelle que soit la taille. La forme ionisée du groupement fonctionnel de surface rend les particules chargées négativement. Ces microsphères ont également une densité de 1,05 g.cm^{-3} et sont donc soumises à une vitesse de sédimentation faible (0,235 cm.j^{-1}).

Une observation au microscope confocal en transmission a été réalisée sur des suspensions de particules de polystyrène préalablement utilisées lors de certaines phases d'expérimentation (calibration, essais d'injection) afin de vérifier qu'aucune contamination notamment par des micro-organismes n'avait lieu ; ceci a été réalisé à l'aide de cellules de Thoma (Figure 2.49).

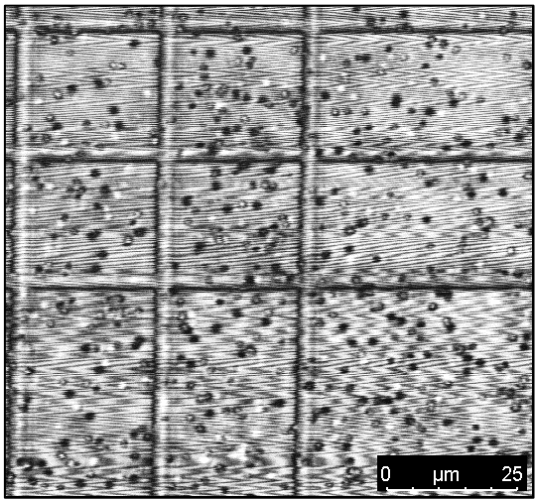


Figure 2.49 - Observation des particules de polystyrène carboxylé sur des grilles de comptage (cellules de Thoma) au microscope confocal en transmission.

L'observation a montré que la suspension n'était pas contaminée par des micro-organismes puisque seules les particules sont visibles.

2.1.2.2 Mesure de taille de particules en suspension

Bien que les coefficients de variation (CV) des tailles de particules utilisées soient relativement faibles, la présence de quelques particules de diamètre plus important peut être critique pour les problématiques de colmatage. Afin de travailler avec des suspensions de particules monodisperses, nous avons préalablement vérifié le diamètre moyen des suspensions de particules injectées au sein du milieu poreux par diffusion dynamique de la lumière (DLS) à l'aide d'un appareil HORIBA LA 950 (Figure 2.50).

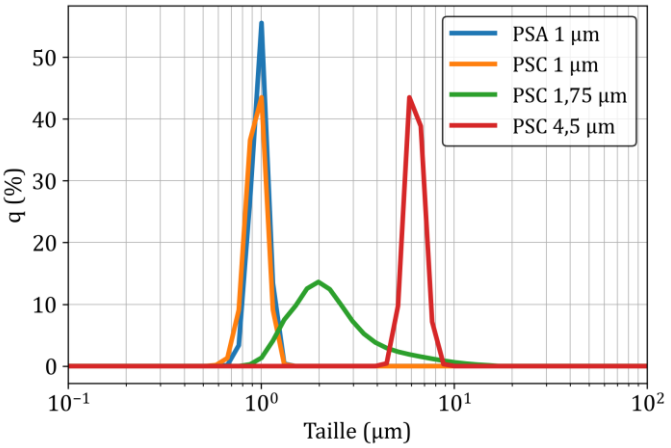


Figure 2.50 - Distributions granulométriques des différentes particules de polystyrène utilisées lors des injections. PSC indique les particules fluorescentes portant des carboxyles tandis que PSA correspond au polystyrène avec des groupements amidines.

L'allure resserrée des distributions granulométriques pour chacun des types de particules permet de valider le caractère monodisperse des suspensions formulées et utilisées lors des injections en milieux poreux. Le fournisseur indique que le coefficient de variation de la taille atteint 5 % dans le cas des particules de polystyrène carboxylé de diamètre 1,75 µm, ce qui peut expliquer la distribution granulométrique plus large.

L'étude de l'influence de la taille des particules sur l'endommagement (section 1.3.3.1) a permis de montrer qu'il s'agit d'un paramètre important. Cependant, d'autres facteurs tel que les interactions entre particules et particule-paroi peuvent influencer les mécanismes de colmatage. A cet effet, la mesure de potentiel zêta permet d'évaluer l'ampleur de ces interactions en calculant les forces DLVO.

2.1.2.3 Potentiel zêta et forces DLVO

Mises en suspension dans de l'eau Milli-Q à différentes concentrations et différents pH, les préparations ont fait l'objet de mesures de potentiel zêta avec le Zetasizer Nano ZS de Malvern Instruments afin d'étudier la stabilité des solutions à différentes concentrations (Figure 2.51).

Pour les particules de polystyrène amidines (PSA), en dessous de pH = 5, le potentiel zêta mesuré présente un plateau positif dû à la présence des groupements cationiques sur les particules de polystyrène. Le point isoélectrique semble se trouver autour d'un pH = 6 mais il peut être dépendant de la charge de la suspension (Marmey *et al.*, 2020). Dans la suite des travaux, et notamment pour le calcul des forces d'interactions électrostatiques, le potentiel zêta est considéré égal à +40 mV pour ces particules de polystyrène amidines mises en suspension à pH = 5 (Figure 2.51(a)).

Pour les particules de polystyrène carboxyle (PSC), le potentiel zêta présente un plateau négatif dû à la présence des groupements anioniques. Pour le calcul des forces d'interactions électrostatiques, le potentiel zêta est considéré égal à -60 mV pour les particules de polystyrène carboxyles mises en suspension à pH = 5. Cette valeur est en accord avec de précédentes études utilisant ces microsphères (Makino *et al.*, 2003) (Figure 2.51(b)).

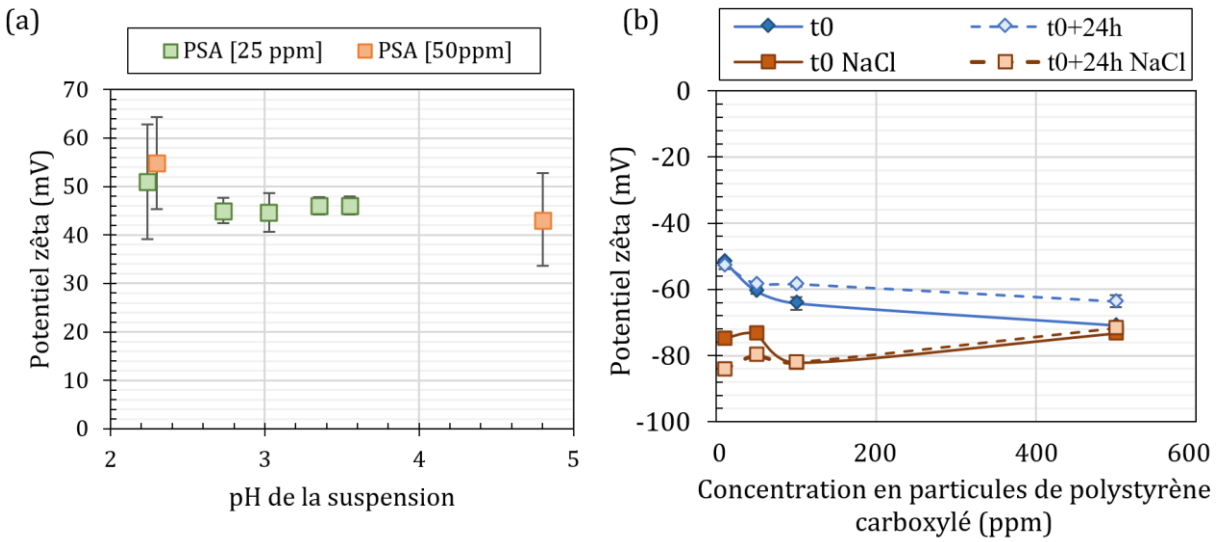


Figure 2.51 - (a) Potentiel zêta de deux suspensions de particules de polystyrène amidine (PSA) à différentes concentrations en fonction du pH (ajusté par ajout d'HCl) ; chaque point correspond à la moyenne d'au moins 6 mesures différentes. (b) Potentiel zêta des suspensions de particules de polystyrène carboxyle (PSC) à pH=5.

Afin de poursuivre l'analyse sur la stabilité des suspensions utilisées et appréhender ainsi le comportement des particules de polystyrène en suspension dans la solution aqueuse, les profils d'énergie totale d'interaction entre deux particules et à proximité des grains sont établis à l'aide de la théorie DLVO précédemment détaillée et les mesures de potentiel zêta.

Spécifiquement, les forces DLVO entre deux microsphères 1 et 2 dont les diamètres sont notés d_1 et d_2 respectivement interagissent avec un milieu 3 à une distance entre surfaces noté h tel que :

$$F_{DLVO}(h) = \pi \frac{d_1 d_2}{d_1+d_2} \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r \kappa [2\Psi_1\Psi_2 - (\Psi_1^2 + \Psi_2^2)e^{-\kappa h}]}{e^{+\kappa h} - e^{-\kappa h}} - \frac{H_{132}}{12h^2} \frac{d_1 d_2}{d_1+d_2} \quad (2.1)$$

Où les premier et deuxième termes représentent les interactions électrostatiques et les interactions de van der Waals, respectivement. L'ensemble des paramètres utilisés sont détaillés en annexe (Annexe A) et les résultats de ces calculs sont présentés sur la figure suivante (Figure 2.52).

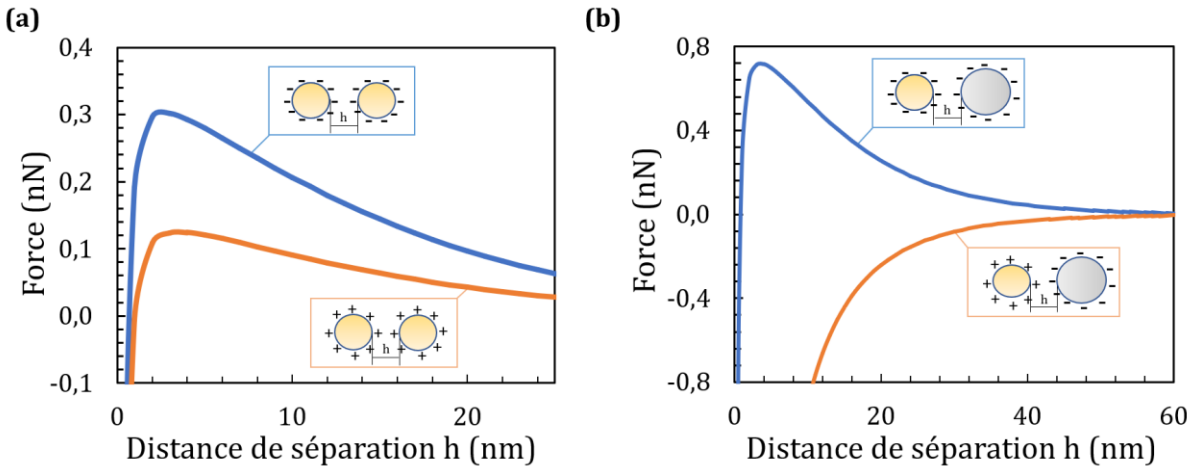


Figure 2.52 - Interactions DLVO totales (forces électrostatiques et forces de Van der Waals) calculées pour les particules de polystyrène amidines (courbes oranges) et carboxylées (courbes bleues) lorsqu'elles interagissent entre elles (a) ou avec le milieu poreux (b) lorsque mises en suspension dans de l'eau distillée.

Les résultats montrent que les interactions entre particules fonctionnalisées par des amidines (courbe orange) peuvent avoir une légère répulsion électrostatique avec un maximum à une distance h ~ 3 nm. Les interactions entre particules portant des charges carboxyles (courbe bleue) ont une répulsion électrostatique bien plus forte (0,3 nN versus 0,12 nN, respectivement) à une distance d'environ 3 nm également. Dans les deux cas, une légère attraction existe mais pour des distances beaucoup plus importantes entre les particules (Figure 2.52(a)). Les calculs indiquent que les interactions avec le verre sont purement attractives lorsque les particules sont celles portant les groupements amidines (courbe orange) tandis que celles avec les particules carboxylées sont à nouveau fortement répulsives autour de h ~ 2 nm (Figure 2.52(b)).

Finalement, les particules de même charge présentent une répulsion électrostatique forte lorsqu'elles interagissent les unes avec les autres, avec une attraction de van der Waals à des distances plus courtes, tandis que les interactions entre des corps de charge opposée sont purement attractives.

Cette étude des interactions entre particules et avec la matrice nous permet d'émettre l'hypothèse selon laquelle, dans des conditions opératoires similaires, le dépôt au sein du milieu poreux devrait être plus important avec les particules amidines dans la mesure où les interactions avec les grains sont favorables.

2.1.2.4 Spectres d'absorption

Les particules de polystyrène portant les groupements carboxyles ont été choisies en adéquation avec le matériel d'analyse optique à disposition (laser Nd:Yag 355 nm). Les sphères sont colorées par gonflement du solvant et piégeage du colorant. La coumarine est utilisée par le fournisseur et, en tant que colorant très hydrophobe, elle reste piégée dans les microsphères en milieu aqueux. La longueur d'onde d'excitation de ces particules est 360 nm en accord avec celle du laser et une réponse (longueur d'onde d'émission) à 407 nm tel que le montre les spectres d'émission réalisés sur des suspensions de polystyrène carboxylé à différentes concentrations (Figure 2.53).

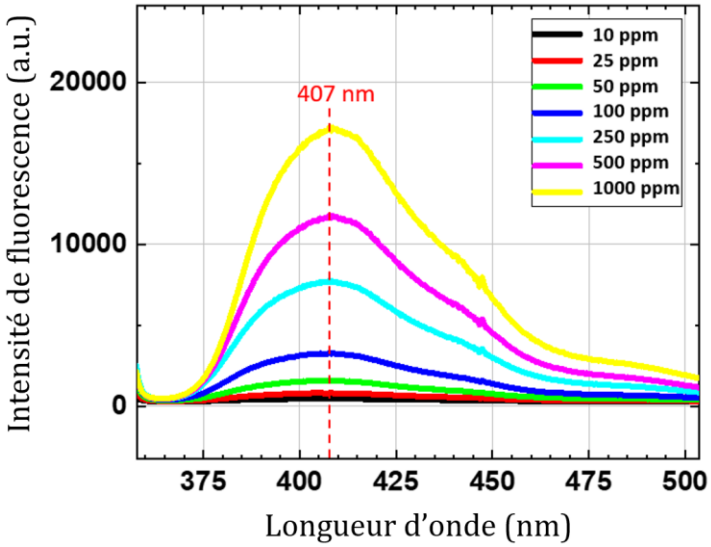


Figure 2.53 - Spectres d'émission en fluorescence de suspensions constituées de microsphères de polystyrène fluorescent carboxylé et eau distillée à différentes concentrations (λ_{exc} = 355 nm).

Les caractéristiques de fluorescence de ces microsphères sont particulièrement intéressantes dans la mesure où elles peuvent être utilisées à des fins d'analyse par fluorescence et par lumière blanche.

2.1.2.5 Protocole de préparation des suspensions de particules

Les colloïdes sont initialement fournis dans une solution aqueuse à 4% (w/v) pour les particules portant des amidines et 2,5 % (w/v) pour celles carboxylées. Les suspensions utilisées pour les injections en micromodèles sont obtenues par dilution de la suspension initiale avec de l'eau déionisée afin de ne favoriser aucune interaction spécifique lors de l'expérience. La concentration particulaire est choisie afin de pouvoir étudier le colmatage en milieu poreux des particules injectées. En effet, une concentration trop élevée représenterait un biais par rapport aux procédés géothermiques où les fluides en écoulement sont relativement peu chargés en particules avec des concentrations en silice variant de 115 à 1123 ppm par exemple (Pauwels *et al.*, 1991). Nous avons donc choisi de travailler avec trois concentrations principalement, 100, 500 et 1000 ppm, respectivement. Quelques concentrations différentes ont été utilisées, notamment pour de la métrologie des outils utilisés et pour investiguer une plus large gamme de valeurs. Les caractéristiques des suspensions de particules de différents diamètres sont exposées à la figure suivante (Tableau 2.8).

Le nombre de particules est calculé selon l'expression suivante :

$$Nombre\ de\ particules\ par\ ml = \frac{6W \cdot 10^{12}}{\rho \pi d^3} \qquad (2.2)$$

Avec W le nombre de grammes de polystyrène par ml, ρ correspond à la densité du polystyrène en $g.ml^{-1}$ et d est le diamètre des particules en microns.

Tableau 2.8 - Tableaux récapitulatifs des grandeurs caractéristiques associées à chaque suspension de particules de polystyrène carboxylées ; W représente le nombre de grammes de polystyrène par ml, d le diamètre en microns des particules, et ϱ la densité en grammes par ml. F_Vol correspond à la fraction volumique que représente les particules dans un ml de suspension.

d = 1 µm			
Concentration (ppm)	100	500	1000
W	0,0001	0,0005	0,001
ρ	1,05	1,05	1,05
d^3	1	1	1
Particules/ml	1,82E+08	9,09E+08	1,82E+09
F_Vol (v/v)	9,52E-05	4,76E-04	9,52E-04

d = 1,75 µm			
Concentration (ppm)	100	500	1000
W	0,0001	0,0005	0,001
ρ	1,05	1,05	1,05
d^3	5,359375	5,359375	5,359375
Particules/ml	3,39E+07	1,70E+08	3,39E+08
F_Vol (v/v)	9,52E-05	4,76E-04	9,52E-04

d = 4,5 µm			
Concentration (ppm)	100	500	1000
W	0,0001	0,0005	0,001
ρ	1,05	1,05	1,05
d^3	91,125	91,125	91,125
Particules/ml	2,00E+06	9,98E+06	2,00E+07
F_Vol (v/v)	9,52E-05	4,76E-04	9,52E-04

2.1.2.6 Rhéologie de la suspension

Afin de contrôler la viscosité des suspensions utilisées lors des travaux expérimentaux, des mesures de viscosité ont été réalisées grâce au rhéomètre Physica MCR 300. La viscosité du fluide porteur, *i.e.* l'eau milli-Q, a ainsi été comparée à la viscosité d'une suspension de particules de polystyrène carboxylé concentrée (1000 ppm) (Figure 2.54).

Pour chacun des fluides considéré (eau milli-Q seule ou suspension de particules), la viscosité est égale à $1x10^{-3}$ Pa.s lorsque le cisaillement est à 250 s^{-1}. Lorsque le taux de cisaillement est plus important (1500 et 2200 s^{-1}), la viscosité de la suspension particulaire est identique à celle de l'eau milli-Q. Ainsi, la mise en suspension de particules dans de l'eau milli-Q n'induit pas de changement de viscosité par rapport au fluide porteur seul ; lorsque la suspension est en bulk, dans le réservoir et en amont du milieu poreux, sa viscosité peut être considérée comme analogue à celle du fluide porteur.

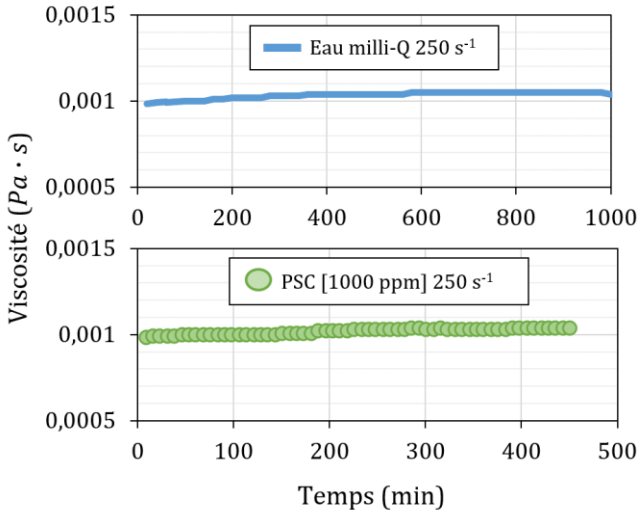


Figure 2.54 - Evolution de la viscosité au cours du temps à un taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ = 250 s^{-1} pour l'eau milli-Q (fenêtre du haut) et une suspension de particules de polystyrène carboxylé à concentration C = 1000 ppm (fenêtre du bas).

2.1.3 Particules d'argiles

Lors des phases expérimentales finales, exposées dans ce manuscrit dans le chapitre 4, la volonté de tendre à nouveau vers un système fluide plus réaliste en termes de composition chimique nous a orienté vers l'utilisation de particules d'argiles. Ces dernières sont des éléments inhérents à de nombreux systèmes silico-clastiques.

Les espèces argileuses peuvent ainsi être responsables du colmatage de certains intervalles stratigraphiques (Raies *et al.*, 2023). Les travaux menés par Raies *et al.* (2023) sur la problématique de colmatage en milieu poreux 3D reposent sur l'injection de particules d'argiles « pures » (Illites du Puy-en-Velay) dont la composition minéralogique est proche de celle des argiles de Feigneux. Ces dernières ont été utilisées dans le cadre d'une caractérisation minéralogique ayant pour but d'identifier les espèces argileuses présentes dans l'environnement sédimentaire du Trias supérieur du Bassin parisien, dans la formation des grès de Chaunoy (série de Feigneux, puits FEX-1, indice national : 129-1-140). Cependant, les illites de référence ont été utilisées pour les expériences d'injections en milieu poreux puisque l'utilisation expérimentale des illites extraites des roches naturelles est difficile (processus long d'extraction, faible quantité, abondance de minéraux secondaires).

Par ailleurs, les argiles de Feigneux et les illites du Puy ont pour phases majoritaires des micas et/ou des illites. La comparaison des formules structurales des deux argiles a permis de valider l'utilisation des argiles modèles « pures ».

Nous avons ainsi utilisé la suspension d'illites du Puy-en-Velay dans de l'eau milli-Q formulée et caractérisée dans ces travaux. Après un traitement complet (décarbonatation, échange cationique, dialyse et tri granulométrique), un gel d'illites de concentration égale à 140 g/l et pH = 7,3 (Raies, 2023) est disponible pour réaliser les expériences d'injection en milieu poreux. La taille médiane des particules est 120 nm avec une distribution allant de 50 à 300 nm (Raies *et al.*, 2023). Afin de connaître avec certitude la taille des particules d'illites présentes dans la suspension, des mesures de diamètre ont été réalisées à l'aide de l'appareil de mesure DLS d'HORIBA LA 950. La distribution granulométrique caractéristique des illites en suspension indique que les particules ont un diamètre compris entre 50 et 200 nm et confirme le diamètre médian autour de 120 nm (Figure 2.55).

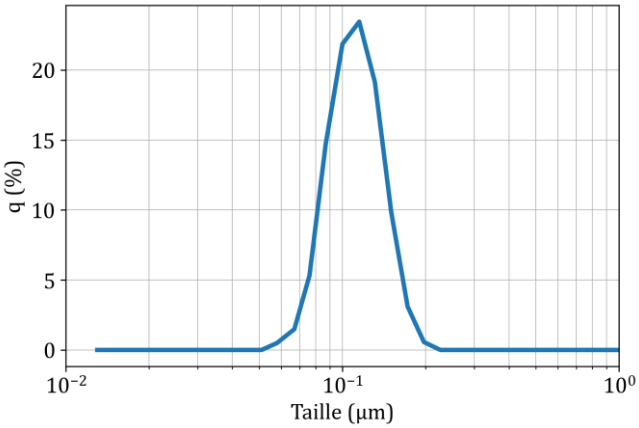


Figure 2.55 - Distribution granulométrique de l'illite du Puy en suspension obtenue avec l'équipement DLS d'HORIBA.

De façon analogue aux particules de polystyrène, la suspension de particules d'illites est obtenue par dilution du gel précédemment mentionné. Les interactions entre particules et avec la matrice de silice sont décrits dans les travaux de Raies (2023). Lorsque le pH de la suspension correspond à un pH d'équilibre soit ici 7,3, les particules d'illites sont négativement chargées avec un potentiel zêta mesuré à -40 mV. Ce résultat est cohérent avec d'autres travaux réalisés avec ces particules (Hu *et al.*, 2003 ; Wei *et al.*, 2021) ; les interactions entre particules et avec le milieu sont donc répulsives, une importante barrière de potentiel doit donc être franchie pour entrainer l'agrégation irréversible des argiles entre elles. Ces interactions apparaissent analogues au cas des particules de polystyrène portant des groupements carboxyles.

Finalement, dans le cadre des injections réalisées en micromodèles et les particules d'argiles étant plus petites que celles de polystyrène, la concentration choisie pour les particules d'illites est 1000 ppm afin de favoriser la visualisation rapide des phénomènes de transport et de dépôt éventuel au sein du milieu poreux. Cette concentration correspond à $1{,}03 \times 10^{12}$ particules/ml (en prenant en compte un diamètre médian de 120 nm et une masse volumique de 1,07 $g.cm^{-3}$ mesurée expérimentalement).

2.1.4 Résumé des caractéristiques principales

Le tableau suivant (Tableau 2.9) récapitule les principales caractéristiques des particules et leur utilisation expérimentale dans le cadre des travaux présentés ici sur la problématique de colmatage.

Tableau 2.9 - Récapitulatif des principales caractéristiques des particules utilisées.

	Particules		
Nature	Polystyrène	Polystyrène	Illites du Puy
Groupement de surface	Amidine -C(=NH)NH2	Carboxyle -COOH	X
Diamètre (µm)	1	1, 1,75 et 4,5	0,05-0,2
Densité (g/cm³)	1,05	1,05	2,75
Potentiel zêta (mV) à pH = 5	+40	-60	-40 à pH = 7,3
Vitesse de sédimentation (cm/j)	0,235	0,235	0,118
Fluorescence	X	Excitation : 360 nm Emission : 407 nm	X
Bancs expérimentaux d'utilisation	Imagerie visible	Imagerie visible Imagerie LIF	Imagerie visible

Les suspensions injectées au sein des différents milieux sont ainsi constituées de petites particules qui se repoussent entre elles (prévention de l'agrégation pré-injection) et ne sédimentent pas rapidement.

Après avoir décrit les particules utilisées pour l'étude du colmatage et les caractéristiques qui leur sont associées, la section suivante présente les différents milieux poreux 2D utilisés et l'analyse associée à chacune des géométries correspondantes.

2.2 Micromodèles : milieux poreux 2D complexes

Dans le cadre de notre étude, trois micromodèles différents notés G1, G2 et G3 ont été considérés. Chacun d'entre eux est associé à une géométrie différente dont les caractéristiques sont détaillées dans les sections suivantes. Il apparait indispensable d'évaluer ces caractéristiques géométriques de ces micromodèles dans la mesure où les propriétés physiques et mécaniques des roches sont dictées par plusieurs paramètres clés tels que leur nature et leur structure interne. Ainsi, la taille et la distribution des pores jouent un rôle déterminant dans le comportement des fluides qui s'écoulent à travers les phases solides poreuses (Ehrlich & Kennedy, 1984). Les gorges/seuils servent de connexion entre les pores et sont donc essentielles pour la perméabilité du milieu dans son ensemble.

2.2.1 Présentation des géométries et analyse du milieu poreux

Tous les micromodèles utilisés et présentés dans ces travaux sont en verre (silice) et ont été obtenus par gravure à l'acide fluorhydrique (HF).

2.2.1.1 Géométrie G1

Le premier micromodèle utilisé est un microsystème poreux bidimensionnel manufacturé par ©Micronit en verre borosilicaté. Le réseau poreux est inspiré d'une tranche 2D d'une image CT-scan obtenue sur une roche réelle. Le masque de gravure a été obtenu à partir de cette image après une légère modification pour rendre le réseau percolant (Figure 2.56).

L'entrée de la puce microfluidique est une cavité conique dont la face inférieure est reliée à un canal de 740 µm de largeur. Le canal est successivement ramifié en plusieurs canaux de 540, 440 et 340 µm de largeur respectivement ; la longueur de ces canaux a été décrite précédemment

(Pradhan *et al.*, 2019). Les huit canaux ainsi créés sont connectés à un canal perpendiculaire de 500 µm de largeur et de 1 cm de long qui précède le réseau de pores du micromodèle. La zone en aval de la puce est reliée à une structure de canaux exactement similaire, mais dans l'ordre inverse. L'avantage de cette structure repose sur une répartition uniforme et une homogénéisation complète de la pression à l'entrée du milieu poreux, et ce quel que soit le sens de l'injection. L'annexe B présente ainsi la cartographie du champ de pression au sein du milieu poreux lorsqu'un débit d'injection est imposé au micromodèle.

Les dimensions du réseau poreux interne sont de 10 mm de large par 20 mm de long et le micromodèle a une profondeur de 20 µm.

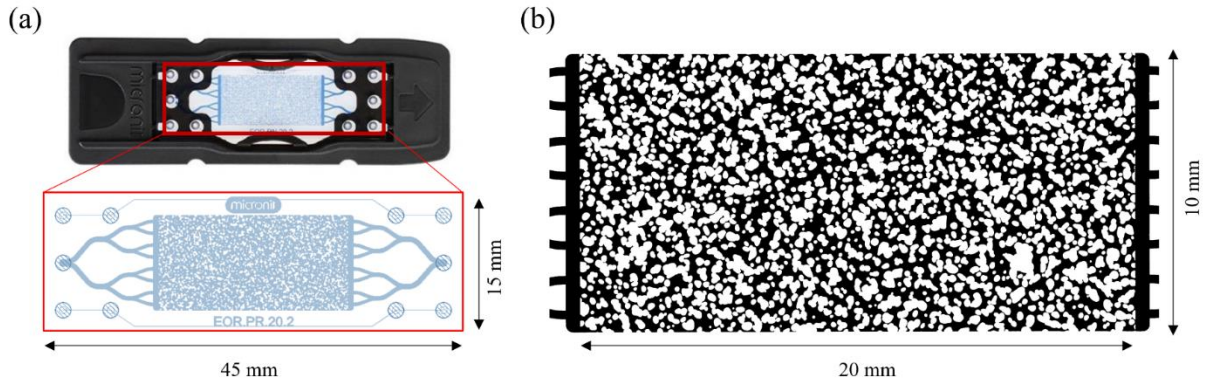


Figure 2.56 - (a) Visuels associés à la puce microfluidique Micronit. (b) Modèle binarisé du milieu poreux noté G1 (les grains apparaissent en blanc tandis que les zones poreuses sont en noir).

En utilisant la loi de Darcy (équation 1.16) et la perte de charge mesurée aux bornes du micromodèle, il est possible d'évaluer la perméabilité des puces microfluidiques Micronit avec des valeurs comprises entre 2 et 3 Darcy. Cette perméabilité prend en compte la partie poreuse et les canaux d'entrée/sortie. La perméabilité (déterminée de façon semi-expérimentale) de la zone poreuse a été évaluée à 6,39 Darcy (Pradhan *et al.*, 2019). Le volume poreux est environ égal à 3 µl.

Ce micromodèle est principalement utilisé pour l'imagerie optique mais le matériau utilisé pour la microfabrication le rend apte à être utilisé à des fins d'analyse par fluorescence.

Ainsi, pour comprendre son influence sur les propriétés macroscopiques de l'écoulement, nous avons réalisé une analyse quantitative du réseau poreux. Sur la base d'une image binarisée du micromodèle, nous avons utilisé une version modifiée de l'algorithme de bassin versant ImageJ (Soille et Vincent, 1990 ; Yeates *et al.*, 2019) pour identifier les minima locaux de distance entre les obstacles. Il s'agit des gorges/seuils de pores tandis que les bassins versants correspondent aux pores eux-mêmes. Un exemple de cette décomposition est présenté à la Figure 2.57.

Le total des obstacles assimilés à des grains est de 906 avec un rayon moyen égal à 146 µm. La porosité globale du milieu poreux est de 52,8%. Les distributions de taille des grains, des pores et des seuils de pores sont présentées dans la Figure 2.57. Celles des grains et des seuils de pores apparaissent légèrement asymétriques avec une queue de distribution étalée vers la droite soit vers les tailles importantes. Cette asymétrie a été précédemment rapportée dans le cadre de l'analyse du réseau poreux d'échantillons de carbonates et de grès (Bloomfield *et al.*, 2001 ; Liu *et al.*, 2022 ; Steinwinder et Beckingham, 2019). Comme pour d'autres méthodes d'investigation, notamment la tomographie micro-informatique (µ-CT), la porosimétrie par intrusion de mercure (MIP) ou la résonance magnétique nucléaire (RMN), les erreurs dans les distributions du réseau de pores et de seuils peuvent résulter des limites de la résolution de l'image (Shah *et al.*, 2016 ; Zhang *et al.*, 2018).

Cependant, dans le cadre de notre étude, les erreurs induites par les volumes partiels sont évitées car les micromodèles sont des objets bidimensionnels.

Néanmoins, les distributions du réseau de pores et de seuils semblent imiter de manière raisonnable les distributions observées pour les échantillons de roche : elles s'étendent sur une large gamme de valeurs (en taille).

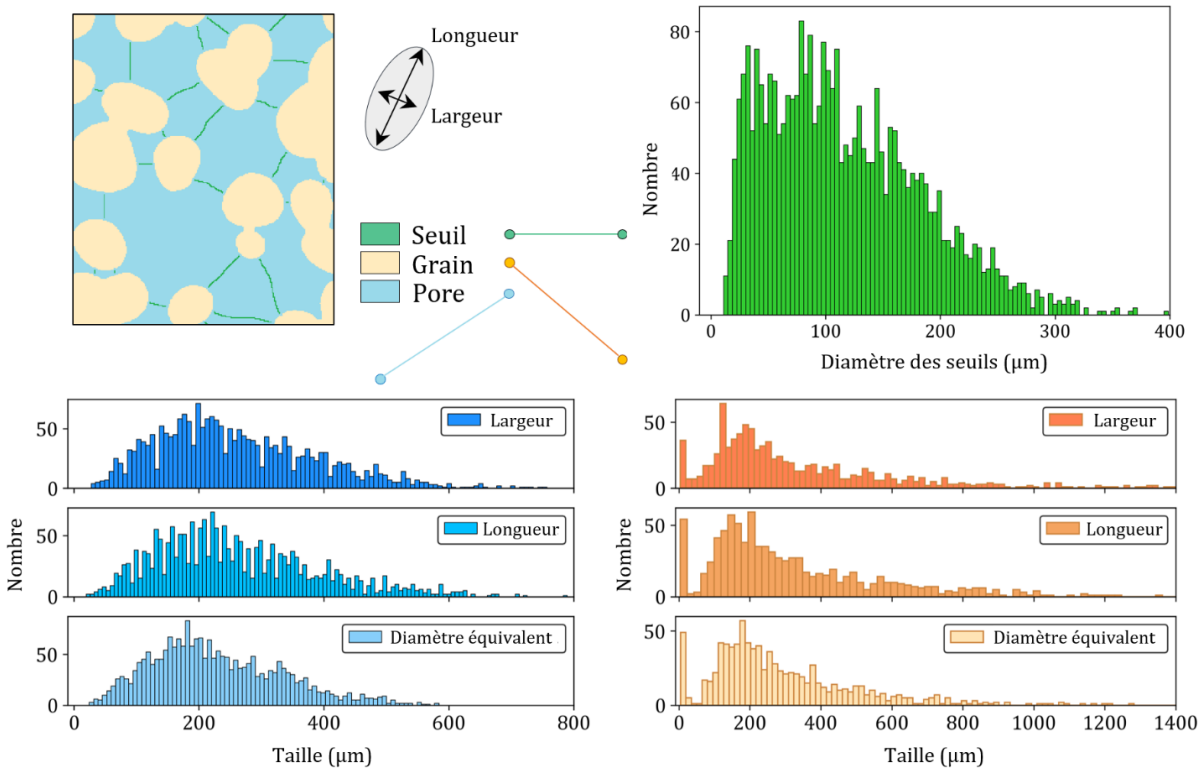


Figure 2.57 - Analyse du réseau poreux au sein de la géométrie G1 ; distributions des grandeurs caractéristiques associées aux éléments du réseau poreux (grains, pores et seuils).

Les moyennes correspondantes des distributions de taille des pores et des seuils sont respectivement de 229 et 117 µm ; la moyenne du rayon est donc de 114,5 et 58,5 µm pour les pores et les seuils respectivement, soit un rapport d'environ 2 entre les deux éléments.

Un autre paramètre peut également être considéré pour évaluer la connectivité d'un réseau poreux : le nombre de coordination. Il s'agit d'un nombre sans dimension qui se réfère au nombre de seuils connectés à un seul pore ; plus ce nombre est grand, meilleure est la connectivité. En outre, l'augmentation de la connectivité entraîne généralement une probabilité accrue de former des voies d'écoulement hautement conductrices, ce qui améliore la perméabilité globale du milieu poreux (Dong et Blunt, 2009 ; Yuan, 1981). Dans un premier temps, la distribution et le diamètre moyen des pores suggèrent une bonne connectivité. Cette observation est confirmée par le calcul du nombre de coordination. En effet, pour le milieu poreux G1, le nombre de pores s'élève à 2144 tandis que le nombre de seuils est de 2927, ce qui conduit à un nombre de coordination moyen de 1,4. Cette valeur se situe dans la gamme des nombres de coordination obtenus pour des échantillons de roches carbonatées et gréseuses (Liu *et al.*, 2022 ; Shah *et al.*, 2016). 7 % des corps poreux correspondent à des impasses (« dead-ends »).

Par ailleurs, lorsque le diamètre des particules utilisées est 1 µm, le ratio T/C présente une distribution similaire à celle des seuils. Le ratio T/C est donc compris entre 40 et 400 avec une moyenne à 117. Dès lors que le diamètre des colloïdes augmente, ce ratio chute ; il est compris

entre 22 et 228 lorsque les particules font 1,75 μm de diamètre et entre 8 et 88 lorsque les particules font 4,5 μm de diamètre.

2.2.1.2 Géométrie G2

La volonté d'accéder à des mesures de pression à intervalles précis au sein du micromodèle a abouti à la conception de micromodèles à prises de pression intermédiaires. En effet, bien que la dynamique de réduction de la perte de charge soit clairement établie aux bornes du milieu poreux, trop d'incertitudes demeurent sur la dynamique interne. Jusqu'à présent, les mesures de la pression du fluide pendant les expériences d'injectivité avec micromodèle ont été principalement effectuées dans les conduits externes ou dans les zones d'entrée/sortie (Zarikos *et al.*, 2018) ; ces mesures ne sont pas représentatives de la distribution de pression au sein de l'espace poreux.

Ainsi, afin de réaliser des mesures de pression à l'échelle du pore, une puce microfluidique avec capteurs de pression à fibre optique intégrés a été développée avec ©Klearia afin de pouvoir réaliser des mesures de pression à intervalles précis au sein du micromodèle et éventuellement corréler ces dernières aux informations obtenues par imagerie. Les connexions des prises de pression au milieu poreux ont été situées de façon à réaliser des mesures sur une colonne initialement homogène tel que peut l'illustrer la cartographie du champ de pression (Annexe B). Cette simulation du champ de pression est réalisée lorsque le milieu poreux n'est pas affecté par des dépôts, *i.e.* pour des stades initiaux d'injection.

Le micromodèle est en verre borosilicaté incolore (D263) qui présente une auto-fluorescence intrinsèque homogène et faible sur l'ensemble du spectre. La profondeur de gravure réalisée à l'acide fluorhydrique est égale à 20 μm (± 10% de tolérance). La figure suivante présente le motif du réseau poreux et la configuration du micromodèle avec les prises de pression intermédiaires (Figure 2.58). Le motif du milieu poreux gravé est également basé sur une image d'une tranche 2D de roche de Bentheimer. Cette géométrie est notée G2. Les dimensions du réseau poreux interne sont de 10 mm de large par 17 mm de long.

Les capteurs de pression à fibre optique correspondent à des piézomètres miniaturisés développés par Fiso, conventionnellement utilisés pour mesurer la pression des fluides dans les tissus vivants. Les capteurs utilisés dans le cadre de nos travaux sont les modèles FOP-MIV-30, dont le diamètre est de 550 μm. Une gaine en polyimide permet de protéger le capteur, donnant ainsi un diamètre global de 635 μm. Une présentation schématique du capteur de pression est illustrée en annexe (Annexe C).

Le fonctionnement du capteur repose sur le principe de l'interférométrie de Fabry-Pérot. Une cavité cylindrique (appelée cavité de Fabry-Pérot) est formée entre une membrane souple, avec une surface intérieure réfléchissante, et une surface optique de référence à l'extrémité de la fibre optique. La pression du fluide agissant sur la membrane flexible la déforme et modifie par conséquent la longueur de la cavité. La lumière, émise par une source lumineuse, traverse la fibre optique et pénètre dans la cavité, puis est réfléchie par la surface de la membrane et revient enfin à travers la fibre optique vers le spectromètre. Le spectre mesuré de la lumière, modifié par le changement de longueur de la cavité, est alors traduit en pression (Zarikos *et al.*, 2018). La plage de mesure des capteurs s'étend de 0 à 10 bar, avec une résolution de l'ordre de 3,4 mbar et une précision de 0,6 % de la plage complète, ce qui rend ces capteurs particulièrement intéressants pour monitorer la pression à l'échelle du pore.

Grâce à ces capteurs, l'évolution de la réduction de mobilité peut être obtenue pour trois différentes sections, additionnellement à celle obtenue aux bornes du milieu poreux. Ces trois sections correspondent à la zone centrale du milieu poreux (Figure 2.58(a)).

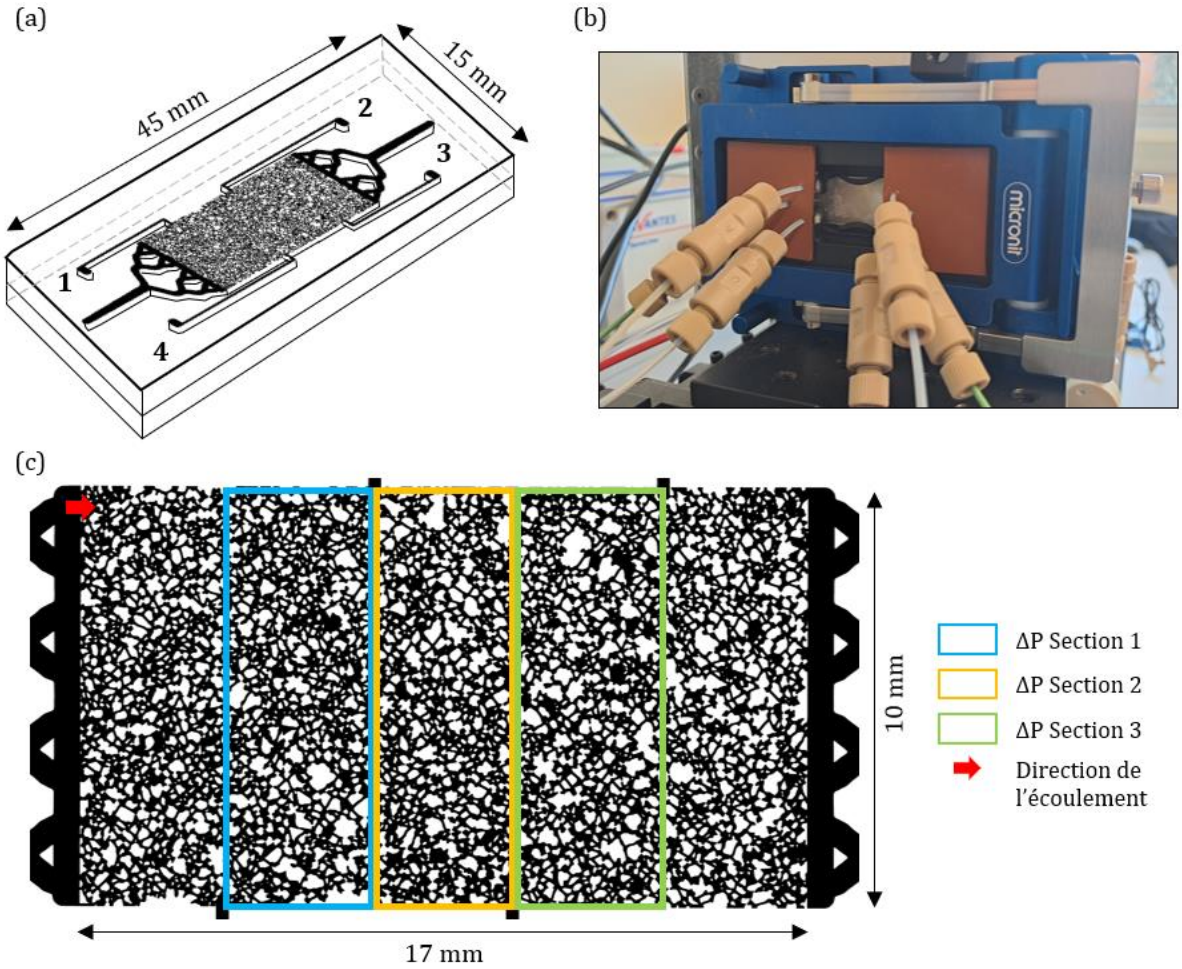


Figure 2.58 - (a) Visuels associés aux puces microfluidiques avec la géométrie G2. (b) Photographie du micromodèle à prises de pression intermédiaires dans son holder avec les fibres optiques mises en place. (c) Modèle binarisé du milieu poreux (les grains apparaissent en blanc tandis que les zones poreuses sont en noir). Les encadrés de couleur indiquent les sections au sein desquelles la réduction de mobilité est mesurée grâce aux capteurs de pression en fibre optique.

Les caractéristiques du réseau poreux de la géométrie G2 ont été analysées selon le même processus que pour la géométrie G1. La décomposition est ainsi réalisée par traitement d'image (Figure 2.59). L'observation locale du réseau permet de montrer que les grains de cette géométrie G2 sont plus anguleux mais la porosité globale du milieu poreux, égale à 51%, est relativement similaire à celle de G1. Le nombre de grains est plus élevé (2413) mais ils sont plus petits avec un rayon moyen égal à 84 µm. Les moyennes des rayons de pores et seuils sont de 71,4 et 26,5 µm, respectivement, soit un rapport d'environ 2,7 entre les deux grandeurs. Plus généralement, les distributions de taille des grains, des pores et des seuils sont à nouveau légèrement asymétriques avec des queues de distribution étalées vers les plus grandes valeurs de taille.

Le nombre de coordination est quant à lui égal à 1,5 (4419 pores et 6708 seuils) ce qui indique que le milieu poreux bénéficie d'une bonne connectivité.

Finalement, les distributions étant étendues sur une large gamme de valeurs, le réseau apparait à l'image d'un échantillon réel de roche.

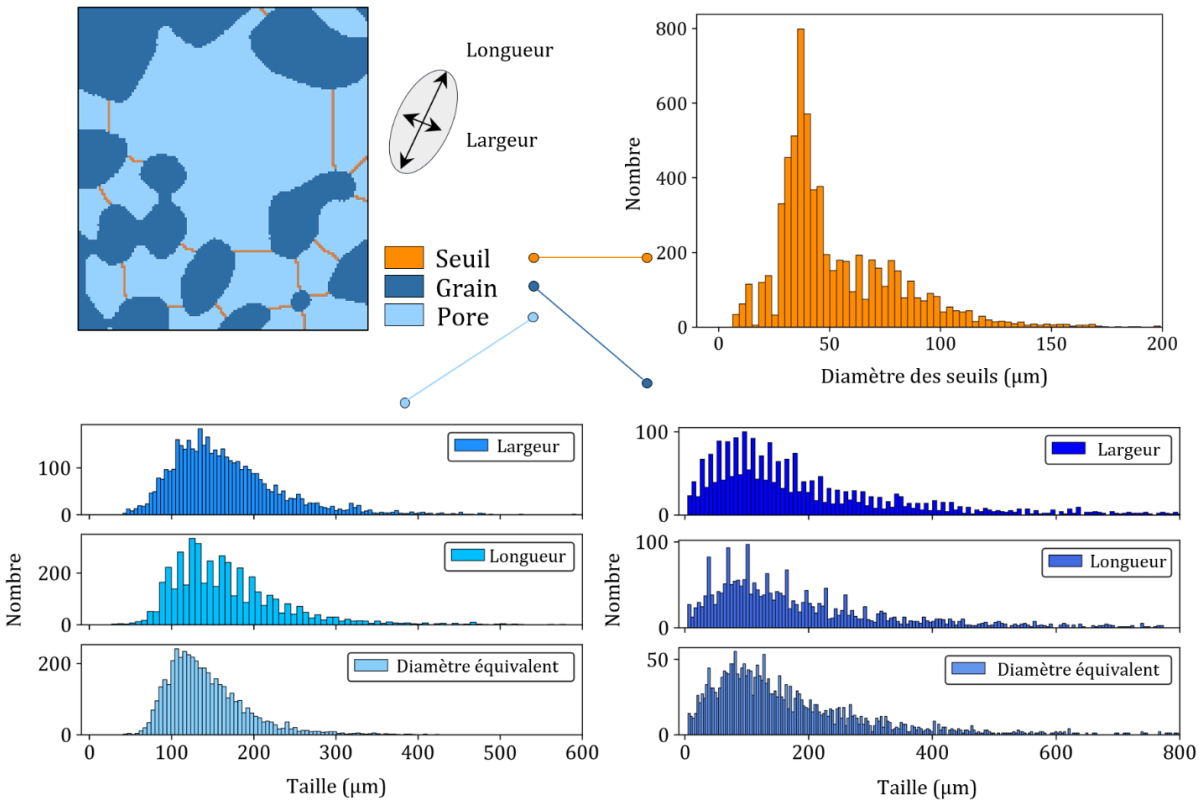


Figure 2.59 - Analyse du réseau poreux au sein de la géométrie G2 ; distributions des tailles de seuils de pores et grandeurs caractéristiques des grains et pores.

Les valeurs des grandeurs caractéristiques étant plus faibles, le rapport T/C couvre une gamme plus restreinte. Celle-ci est comprise entre ~10 et 150 avec une moyenne égale à 52,9 lorsque les particules font 1 µm de diamètre, soit une diminution par un facteur supérieur à 2 par rapport à la géométrie G1. La diminution du ratio est d'autant plus importante lorsque le diamètre des particules augmente ; il est compris entre 6 et 86 lorsque le diamètre des colloïdes injectés est 1,75 µm et entre 3 et 33 lorsque les particules font 4,5 µm de diamètre.

2.2.1.3 Géométrie G3

La dernière géométrie utilisée dans le cadre des travaux expérimentaux menés sur la problématique de colmatage est notée G3. Un micromodèle avec prises de pression intermédiaires a été développé avec ©Micronit afin de pouvoir réaliser des mesures de pression selon différentes sections du milieu poreux et les corréler aux informations obtenues par imagerie. Le motif du milieu poreux gravé est identique à celui de la géométrie G2. Les dimensions du réseau interne sont donc identiques : 10 mm de large par 17 mm de long et la profondeur de gravure est égale à 20 µm. Le champ de pression homogène est présenté en Annexe B.

La configuration des prises de pression intermédiaires permet d'obtenir des mesures des différents intervalles qui partagent de façon égale le milieu poreux (Figure 2.60). Dans le cadre des injections réalisées avec cette géométrie, les mesures des pertes de charge des sections internes au milieu poreux ont été réalisées avec des capteurs de pression Keller (série 33X) dont la plage de mesure s'étend de 0 à 10 bar. L'exactitude est égale à 0,05% de la plage de mesure complète, soit une excellente performance permettant de détecter avec précision les variations de la perte de charge des différentes sections.

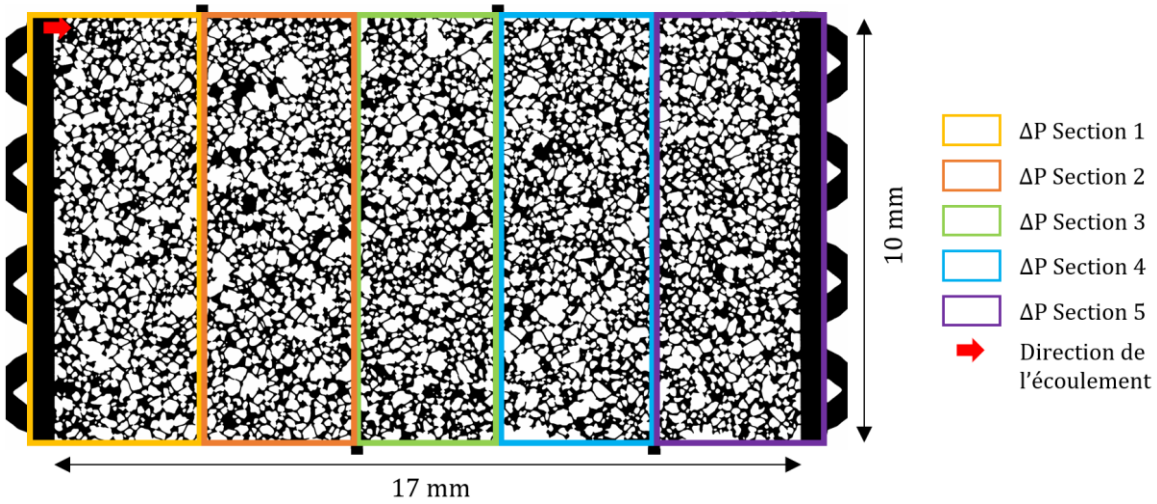


Figure 2.60 - Modèle binarisé du milieu poreux noté G3 (les grains apparaissent en blanc tandis que les zones poreuses sont en noir). Les différentes sections de mesures de perte de charge sont soulignées par différents encadrés de couleur.

Le réseau poreux correspond à l'équivalent miroir de la géométrie G2 mais avec une porosité moins importante. Celle-ci représente en effet 43 % du milieu soit 10 % de moins que la géométrie G1. La géométrie initiale étant similaire à celle de G2, les caractéristiques du réseau poreux sont analogues ; le nombre de grains est élevé et ces derniers conservent leur angularité. Les moyennes de rayons de pores et seuils sont 67 µm et 50,1 µm respectivement et le nombre de coordination est égal à 1,5 (4708 pores et 6861 seuils) indiquant que le milieu poreux G3 bénéficie également d'une bonne connectivité. Tel que pour les deux précédentes géométries, les distributions de taille de grains, pores et seuils sont légèrement asymétriques avec un étalement vers les plus grandes valeurs (Figure 2.61).

Le rapport T/C couvre une gamme comprise entre ~10 et 150 avec une moyenne égale à 49,1 lorsque les particules font 1 µm de diamètre.

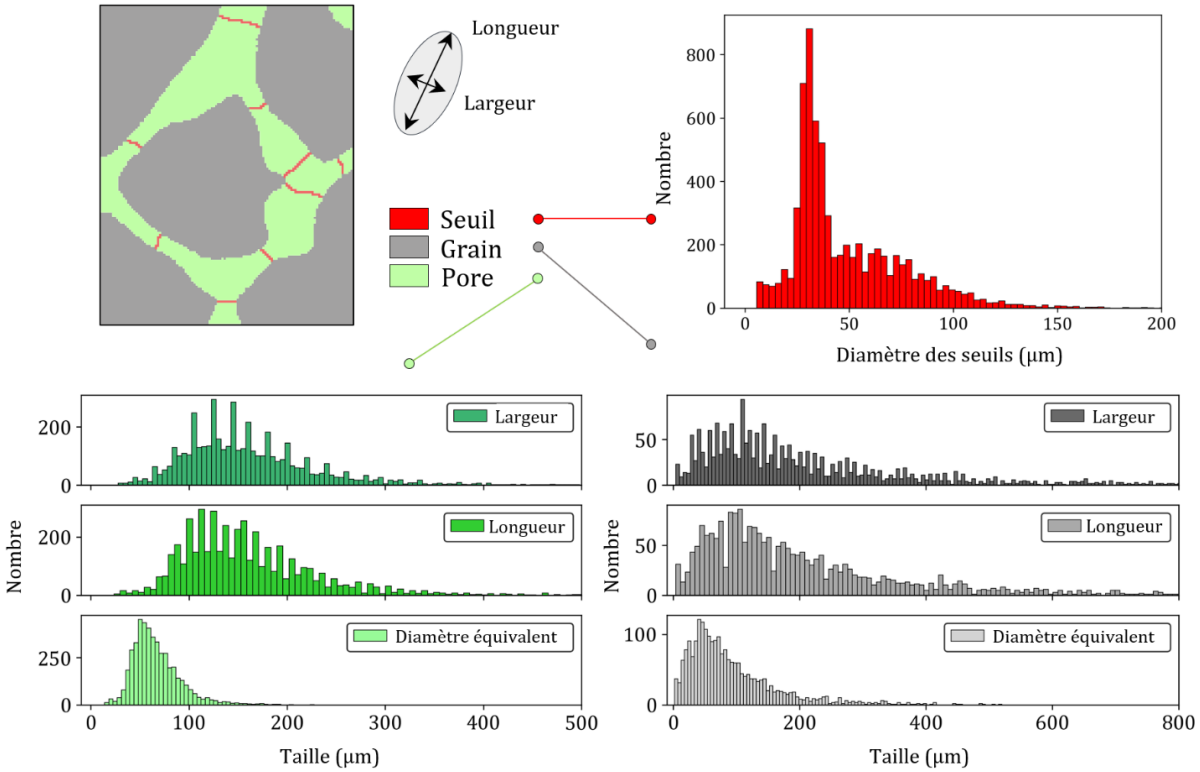


Figure 2.61 - Analyse du réseau poreux au sein de la géométrie G3 ; distributions des tailles de seuils de pores et grandeurs caractéristiques des grains et pores.

L'analyse menée sur les caractéristiques géométriques des différentes géométries a permis d'illustrer les nombreuses différences (taille, forme) qui existent entre les trois milieux poreux. Ces différences géométriques existent mais ne correspondent néanmoins pas à des variations drastiques ; initialement, la volonté était d'instrumenter les puces microfluidiques afin de pouvoir obtenir des informations supplémentaires sur la réduction de perméabilité associée à différentes sections du milieu poreux.

Cependant, les variations des propriétés géométriques d'un milieu poreux, telles que les modifications de la taille ou de la forme des pores dans le milieu, peuvent entraîner des variations spatiales de la tortuosité. La forme et la taille des pores dans un milieu poreux jouent ainsi un rôle crucial dans la détermination de la tortuosité. Des pores de forme irrégulière ou de taille variable peuvent conduire à un chemin plus tortueux pour l'écoulement des fluides ou le transport des particules. Des pores plus petits peuvent également augmenter la tortuosité dans la mesure où ils peuvent fournir des voies d'écoulement moins directes.

Afin d'appréhender l'éventuel impact des différences géométriques des réseaux poreux sur l'écoulement, nous avons étudié la tortuosité propre à chacun des milieux.

2.2.2 Cartographie de la tortuosité

La tortuosité est un descripteur usuel de la complexité d'une géométrie (section 1.2.1.3). Afin d'évaluer celle-ci pour chacune des géométries des milieux poreux utilisés, le calcul du descripteur M-tortuosité proposé par Chaniot *et al.* (2019) a été utilisé. L'algorithme est basé sur un processus de Monte-Carlo qui permet de caractériser la sinuosité du milieu.

Les cartes de tortuosité (Figure 2.62) permettent d'identifier clairement les impasses/dead-ends où la tortuosité atteint les valeurs les plus importantes (en rouge) et les zones où l'écoulement est moins contraint par des obstacles (tortuosité plus faible) et peut donc se faire plus facilement.

La distinction entre ces zones est plus nette pour la géométrie G1 ; les grains sont moins nombreux mais leur diamètre plus grand que pour les géométries G2 et G3 ce qui permet d'apprécier plus facilement le contraste entre espace poreux et matrice solide. La tortuosité apparait relativement similaire sur l'ensemble du milieu entre G1 et G2, ce qui est par ailleurs confirmé par les profils de tortuosité moyenne sur l'axe perpendiculaire à l'écoulement. Les profils de G1 et G2 se côtoient, avec des pics plus prononcés pour G1 où la tortuosité peut atteindre 0,58 alors qu'elle se situe plus généralement autour de 0,48. Ces pics sont dûs aux grains de grand diamètre. La géométrie G3 se distingue des deux précédentes géométries par une tortuosité globale plus importante tel que l'illustre la cartographie du descripteur. Le profil confirme cette observation, avec une valeur moyenne atteignant ~0,7 pour la dernière section du micromodèle.

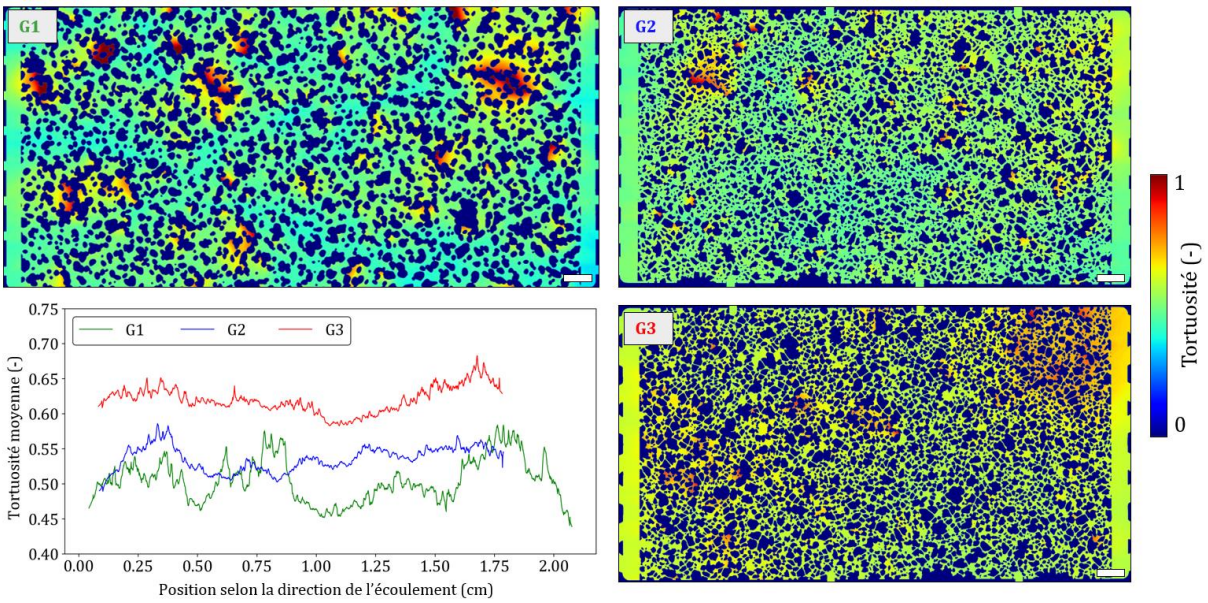


Figure 2.62 - Cartographie et profil de la tortuosité le long de la direction d'écoulement pour chacune des géométries utilisées lors des expériences d'injection en milieu poreux. L'injection se fait de la gauche vers la droite pour chacun des milieux poreux présentés. La barre d'échelle correspond à 1 mm.

Finalement, la tortuosité moyenne au sein de chacun des milieux poreux est égale à 0,50, 0,54 et 0,62 pour les géométries G1, G2 et G3 respectivement. Une particule emprunte donc un chemin plus long pour parcourir le milieu poreux d'amont en aval lorsqu'il s'agit de la géométrie G3 et rencontre ainsi un nombre accru d'obstacles (grains).

2.2.3 Simulations champ de vitesse

En collaboration avec A. Erriguible (I2M, Bordeaux INP), nous avons procédé à la simulation des champs de vitesse associés à chacune des géométries afin d'appréhender l'effet de leur réseau poreux, de leur complexité et leur tortuosité sur les vitesses d'écoulement. L'équation de Navier-Stokes est résolue pour une formulation incompressible d'écoulement monophasique (Zhang *et al.*, 2019, 2020). La phase solide du milieu poreux est prise en compte par une méthode de pénalisation. Le système aux dérivées partielles est résolu numériquement par le code CFD Fortran "Notus" (https://notus-cfd.org/), développé à l'Institut de Mécanique et d'Ingénierie (I2M-TREFLE). Notus est un logiciel libre d'accès basé sur la méthode des volumes finis. Les champs variables sont résolus sur une grille fixe en quinconce.

La simulation 2D est associée à certaines limitations dans la mesure où les micromodèles, bien que généralement considérés comme des objets bidimensionnels, sont constitués de

l'assemblage de deux plaques parallèles avec un espace confiné entre ces plaques dans lequel de nombreux phénomènes physiques ont lieu. Ainsi, certains processus ne peuvent être pris en compte par la simulation 2D. Néanmoins, l'intégration additionnelle de termes associés à la résolution des équations de transport et plus généralement l'utilisation de modèles 3D nécessite d'importantes ressources informatiques (Soulaine *et al.*, 2021). Dans le cadre des travaux présentés dans ce rapport, le choix s'est donc limité à la simulation 2D.

Le résultat de ces simulations est présenté à la figure suivante (Figure 2.63) qui montre la distribution complexe des vitesses dans le milieu poreux « vierge », *i.e.* sans la présence de dépôts. Les vitesses les plus élevées (couleurs vers le jaune et le rouge) sont associées à des chemins préférentiels tandis que les zones moins connectées du réseau sont associées à des vitesses faibles (zones bleues).

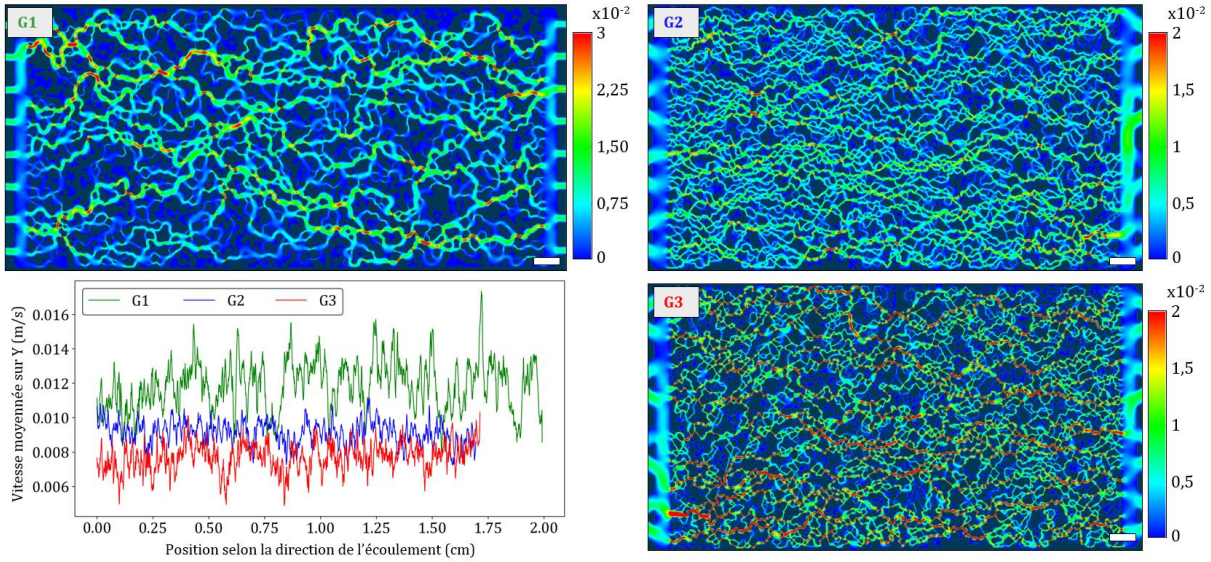


Figure 2.63 - Cartographies et profils de la vitesse d'écoulement le long du milieu poreux pour chacune des géométries utilisées. L'échelle de couleur exprime la vitesse en m/s pour chacune des géométries. Ces simulations sont réalisées pour un débit d'injection Q = 1,5 ml/h. La barre d'échelle correspond à 1 mm.

L'Annexe D présente les champs de vitesse associés aux trois géométries pour les deux débits d'injection utilisés lors des travaux expérimentaux.

L'observation des champs de vitesse permet d'illustrer la coexistence de différentes zones d'écoulement. Bien que le débit d'injection soit constant, la vitesse locale peut être fortement différente selon la localisation de la zone considérée. La cartographie des vitesses au sein de G1 permet ainsi de montrer la coexistence de chemins préférentiels où la vitesse locale d'écoulement peut atteindre $3x10^{-2}$ m.s^{-1} et la présence de zones de non-circulation où le flux est nul ou très faible. L'apport particulaire, *i.e.* le nombre de particules arrivant dans chacune de ces zones, est donc différent ; il est plus important là où l'écoulement est le plus rapide. En parallèle, le temps de résidence d'une particule arrivant dans une zone de circulation faible est plus grand ; ainsi pour une même distance à parcourir de 200 µm, une particule met 7 ms à la parcourir si la vitesse locale est $3x10^{-2}$ m.s^{-1} et 200 ms si cette vitesse est $1x10^{-3}$ m.s^{-1}.

Les cartographies des vitesses au sein de G2 et G3 permettent de montrer l'impact de la géométrie sur le champ de vitesse ; les voies d'écoulement sont moins larges (longueur des seuils de pore plus petite) mais les grains sont bien plus nombreux, et donc il existe plus de chemins d'écoulement possibles au sein du milieu. Pour G2, la simulation du champ de vitesse indique que celle-ci est relativement homogène sur toutes les trajectoires ; des accélérations (v = $2x10^{-3}$ m.s^{-1}) associées à la présence de constrictions, i.e. des diminutions du canal local d'écoulement, sont

présentes mais peu nombreuses. Il apparait difficile d'identifier les chemins préférentiels, la distinction entre les différentes zones d'écoulement est plus compliquée. Au contraire, la géométrie G3 est associée à une cartographie du champ de vitesse plus analogue à G1 dans la mesure où il est possible de distinguer trois comportements locaux d'écoulement :

- certains chemins constituent des voies préférentielles, les vitesses sont hautes ;
- d'autres sont intermédiaires ;
- et enfin, certains espaces du milieu poreux sont associés à des vitesses d'écoulement nulles ou très faibles.

Les profils de vitesse moyenne au sein du milieu poreux sont cohérents avec les profils de tortuosité précédemment établis ; plus celle-ci est forte, et donc plus une particule doit emprunter un chemin tortueux pour parcourir une distance équivalente, plus la vitesse est faible. Ainsi, le profil de la vitesse d'écoulement au sein de la géométrie G3 acquiert une valeur moyenne pour chaque position le long de la direction d'écoulement qui est la plus faible des trois géométries. La vitesse moyenne au sein de chacun des milieux poreux est égale à $1{,}19\text{x}10^{-2}$, $9{,}13\text{x}10^{-3}$ et $7{,}69\text{x}10^{-3}$ $m.s^{-1}$ pour les géométries G1, G2 et G3 respectivement (débit d'injection identique Q = 1,5 $ml.h^{-1}$). Les vitesses moyennes d'écoulement acquièrent ainsi une gradation inverse analogue à celle de la tortuosité ; plus le milieu est tortueux, plus la vitesse d'écoulement est faible.

Par ailleurs, l'échelle d'analyse est particulièrement intéressante à considérer dans la mesure où, bien que la conclusion à l'échelle du milieu poreux indique que la vitesse moyenne d'écoulement est plus faible pour G3, l'observation à l'échelle du pore montre que de fortes vitesses peuvent être atteintes. Cette distinction relative à l'échelle d'observation est donc nécessaire à adopter afin de pouvoir comprendre les mécanismes locaux et les phénomènes englobant le milieu poreux dans son ensemble.

2.2.4 Comparaison des géométries et conclusion

Le tableau suivant (Tableau 2.10) récapitule les caractéristiques principales associées à chacune des géométries de milieu poreux utilisées dans cette étude. Le nombre de Reynolds est calculé selon l'équation suivante en considérant le diamètre moyen des seuils de pore (d), la vitesse moyenne au sein du milieu poreux (v) et la viscosité cinématique du fluide tel que $\nu_f = 1{,}005.10^{-6}$ $m^2.s^{-1}$:

$$Re = \frac{d \cdot v}{\nu_f} \tag{2.3}$$

Tableau 2.10 - Caractéristiques principales des géométries G1, G2 et G3. dp correspond au diamètre des particules pour le calcul du rapport T/C. Les vitesses moyennes sont calculées à partir du champ de simulation lorsque Q = 1,5 ml.h^{-1}.

Géométrie		G1	G2	G3
	Porosité (-)	0,53	0,51	0,43
	Tortuosité (-)	0,504	0,536	0,62
	Vitesse (m/s)	1,19E-02	9,13E-03	7,69E-03
	Nombre de Reynolds*	2,9	1,4	0,5
Diamètre équivalent (µm)	**Grains**	292,5	167,4	92,0
	Pores	228,9	142,8	67,0
Diamètre des seuils (µm)		116,8	52,9	49,1
Ratio T/C moyen (-)	**dp = 1 µm**	116,8	52,9	49,1
	dp = 1,75 µm	66,8	30,2	28,1
	dp = 4,5 µm	26,0	11,8	10,1

* $Re = (v\rho d_b)/\eta$ avec v la vitesse moyenne pour Q = 1.5 ml/h

A partir de l'ensemble des informations collectées sur les géométries et les caractéristiques qui leur sont associées, plusieurs hypothèses peuvent être formulées quant au transport de particules et le dépôt dans ces milieux poreux. En effet, dans la mesure où le rapport T/C est le plus faible pour les géométries G2 et G3 en comparaison avec G1, il semble probable que le dépôt soit plus important pour ces deux géométries. Par ailleurs, le flux étant « uniformément » réparti sur l'ensemble du milieu poreux G2, l'apport particulaire est présent en tout lieu ; le dépôt, en termes de surface occupée au sein de l'espace poreux, doit être plus important à conditions opératoires équivalentes.

2.2.5. Interface micromodèle – circuit microfluidique

L'interface entre la puce microfluidique et le circuit microfluidique est assurée par l'utilisation du holder basse pression commercialisé par Micronit. Le micromodèle en verre est placé dans un étui plastique sombre (Figure 2.56(a)). Cet ensemble peut ensuite être placé dans l'emplacement correspondant du holder. Ce dernier est alors refermé ; un système de pression par levier permet d'assurer l'étanchéité de la connexion entre les tubes du circuit microfluidique et les canaux du micromodèle. Ce holder a été utilisé pour l'ensemble des puces microfluidiques.

Pour donner suite aux travaux menés à l'aide des outils microfluidiques, des investigations supplémentaires ont été réalisées à l'aide de milieux poreux reconstitués, notamment pour assurer le continuum des échelles d'observations. Les caractéristiques associées à ces milieux sont exposées dans la section suivante de ce manuscrit.

2.3 Massifs granulaires : milieux poreux 3D

Le changement d'échelle expérimentale est nécessaire pour valider les résultats obtenus avec les milieux poreux 2D et appréhender d'éventuels effets additionnels. Cette section vise à présenter brièvement les caractéristiques des massifs granulaires utilisés pour les injections de suspension de particules en milieu poreux 3D. Les résultats de ces expériences font l'objet d'une discussion dans le Chapitre 4.

2.3.1 Caractéristiques du massif granulaire

Les milieux poreux granulaires préparés lors de cette phase expérimentale sont constitués d'un sable quartzique de Fontainebleau (carrière de Bourron-Marlotte) fin mais non broyé fourni par la société SIBELCO et désigné par la référence GA39. La fiche technique complète associée à ce sable est présentée en annexe (Annexe E).

Un traitement du sable a été effectué avant son utilisation :

- Plusieurs lavages en milieu acide (HCl = 1N) afin d'ôter les traces résiduelles d'oxydes métalliques ;
- Plusieurs lavages en milieu basique (pH = 9 avec NaOH) qui permettent d'éliminer les particules fines. Les lavages augmentent la charge de surface des grains et ainsi les répulsions électrostatiques entre eux.

Par ailleurs, aucun traitement thermique n'est réalisé afin de préserver l'état de surface naturel des grains de quartz.

De précédents travaux ont permis d'obtenir une distribution en taille des grains du sable GA39. Le diamètre moyen est 132 μm. Le diamètre d des seuils de pore peut être estimé à partir d'un modèle capillaire liant la perméabilité k (m²) et la porosité φ selon la relation suivante :

$$d/2 = 1{,}15 \cdot \sqrt{\frac{8k}{\varphi}} \qquad (2.4)$$

Le coefficient correctif 1,15 a été mesuré expérimentalement pour des milieux poreux formés de produits de broyage (Chauveteau *et al.*, 1996) et il est utilisé ici à titre approximatif.

2.3.2 Cellule de mesure

Une cellule porte échantillon rigide en PEEK (Figure 2.64) est utilisée et présente les caractéristiques suivantes : un diamètre interne de 1,5 cm et une longueur totale du milieu poreux d'environ 9,9 cm. Celle-ci peut varier de quelques millimètres selon la position des pistons qui sont introduits aux deux extrémités du corps de cellule. La cellule est équipée de prises de pression intermédiaires permettant de mesurer les pertes de charges sur différentes sections du milieu poreux.

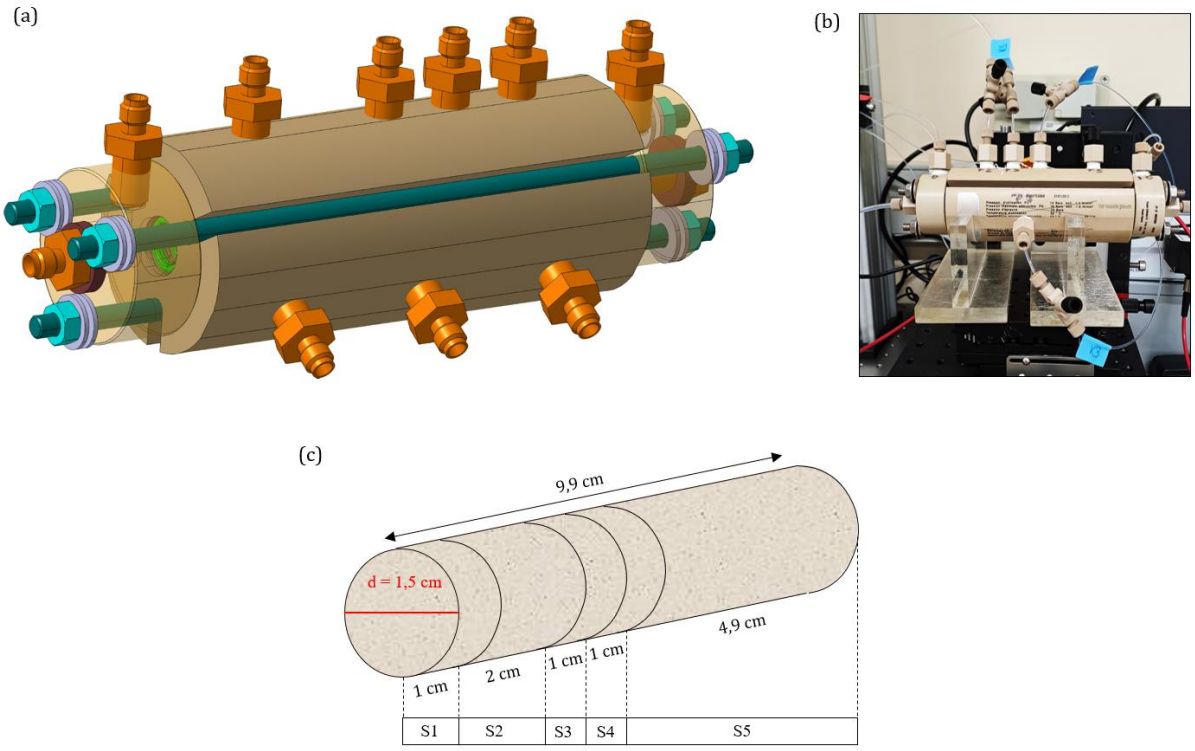


Figure 2.64 - (a) Illustration 3D de la cellule porte-échantillon avec prises de pressions multiples utilisée lors des expériences d'injection en milieu poreux granulaire. (b) Photographie de la cellule mise en place sur le banc expérimental n°2 à l'emplacement usuel du micromodèle et de la lampe LED de rétro-éclairage. (c) Description schématique du massif granulaire et des différentes sections associées aux mesures de perte de charge.

Afin de conserver des conditions opératoires identiques à celles mises en place pour les injections en micromodèles, la cellule de mesure est positionnée à l'exacte position de ces derniers.

2.3.3 Caractérisation du milieu poreux

Les porosités des massifs granulaires sont calculées à partir de la mesure des dimensions des milieux poreux et de la pesée du sable introduit dans la cellule. La masse volumique du sable est 2,65 g.cm^{-3}. Les perméabilités sont mesurées sur toutes les sections préalablement à chaque expérience et après saturation complète du milieu poreux avec de l'eau milli-Q.

L'ensemble de ces caractéristiques est reporté dans le Tableau 2.11 pour les deux expériences d'injection menées avec ces massifs granulaires. Malgré certaines variations de perméabilité entre les différentes sections considérées, les milieux poreux apparaissent relativement homogènes avec une porosité φ = 40%, un volume de pore VP = 7 ml et une perméabilité K = 5,17 ± 0,045 Darcy.

Tableau 2.11 - Récapitulatif des perméabilités mesurées pour chacune des sections.

		Global	S1	S2	S3	S4	S5
Massif 1	K (D)	**5,22**	4,45	5,52	6,35	4,86	5,15
Massif 2	K (D)	**5,13**	4,48	5,04	5,87	4,91	5,27

En reprenant l'équation 2.3, le diamètre d des seuils de pore peut être estimé à partir des données précédemment mesurées tel que d ≈ 23 μm (valeur relativement comparable à celles mesurées pour les géométries des micromodèles).

Ainsi, si les particules injectées ont un diamètre de 1 μm, le rapport T/C atteint une valeur moyenne environ égale à 23.

2.4 Bancs expérimentaux

La phase de développement expérimental est particulièrement cruciale dans la mesure où de nombreux éléments et contraintes sont à prendre en compte pour réaliser une étude précise et exacte :

- il faut ainsi prendre en compte les propriétés optiques de chacun des éléments (milieu poreux, particules, fluide porteur) en relation avec les outils utilisés ;
- ou bien encore les problématiques de sédimentation associées à la nature des particules ;
- les à-coups potentiels lors des différentes phases d'injections (saturation initiale, injection de la suspension, balayage final en eau) selon l'agencement du circuit microfluidique.

Ces trois exemples de contraintes illustrent les différents éléments qui ont été pris en compte lors de la mise en place des bancs expérimentaux.

Diverses méthodes d'imagerie optique sont fréquemment employées pour visualiser la distribution des fluides et le transport dynamique des particules dans les microstructures 2D. Ces méthodes comprennent entre autres l'utilisation de caméras, de microscopes-caméras, de techniques volumétriques photoluminescentes, de la microscopie confocale ou Raman et de la vélocimétrie par image de microparticules (μPIV). En général, ces méthodes sont relativement peu coûteuses et constituent souvent l'option la plus facile pour l'imagerie des micromodèles. Cependant, chaque technique est associée à des avantages et des limitations qui rendent difficile, par exemple, la visualisation de la dynamique du transport des particules sur des échelles de longueur allant d'un seul pore à des milliers de pores et sur des échelles de temps allant d'un volume de pore (PV) à des milliers de PV injectés.

Dans le cadre des travaux présentés dans ce manuscrit, deux dispositifs microfluidiques axés autour de deux techniques d'imagerie différentes ont été développés :

- Le premier banc expérimental repose sur l'imagerie Fluorescence Induite par Laser (LIF) ;
- Le second banc expérimental utilise une caméra haute résolution pour acquérir des images optiques du micromodèle dans le domaine visible lors des expériences.

Ces deux bancs expérimentaux ont été conçus afin de pouvoir réaliser des mesures complémentaires et accéder ainsi à des informations non disponibles par les techniques d'imagerie associées à chacun des deux dispositifs. Leur mise en place et l'élaboration des protocoles d'injection représente un segment important de l'étude expérimentale menée pour répondre à la problématique. L'objectif principal est de suivre le transport d'un fluide complexe et les phénomènes associés au cours du temps, en couplant imagerie à l'échelle du pore et mesures macroscopiques de pression et concentration. Ainsi, chacun des dispositifs inclut un circuit microfluidique utilisé pour assurer le transport du fluide vers la puce microfluidique transparente, un système d'imagerie permettant l'acquisition automatique d'images du milieu poreux et des

capteurs de pression permettant l'évaluation de la réduction de perméabilité au cours du temps. Les caractéristiques détaillées de chacun des systèmes sont présentées ci-dessous.

2.4.1 Dispositif expérimental n°1 : imagerie LIF

La technique LIF est un outil puissant, très sensible et capable de détecter et de quantifier des traces de substances fluorescentes, même à de faibles concentrations. En outre, la LIF offre une excellente sélectivité et correspond à une technique non destructive d'imagerie associée à des procédures non invasives qui permet un suivi en temps réel et des mesures répétées sur le même échantillon sans en altérer l'intégrité. Lorsqu'elle est couplée à une caméra à haute vitesse et à haute résolution, la LIF offre une résolution temporelle et spatiale élevée, permettant de capturer des processus dynamiques précis ou des phénomènes localisés.

La caractéristique majeure du premier montage réalisé réside dans la possibilité d'obtenir à partir d'images du micromodèle le champ de concentration de la suspension et des dépôts au sein du milieu poreux. Ce montage fait appel à la LIF. La concentration en chaque point du micromodèle est déduite à partir de la mesure de l'intensité du signal émis spontanément par les particules fluorescentes composant la suspension injectée et qui ont été portées dans un état électronique excité par une radiation laser. Ainsi, plus le dépôt (concentration en particules) est important, plus l'intensité de fluorescence est importante.

2.4.1.1 Principe de la LIF pour l'étude du transport des fluides complexes en milieu poreux

La fluorescence induite par laser (LIF) est une technique spectroscopique utilisée pour étudier les propriétés des atomes, des molécules et des ions. Cette technique a été développée pour la première fois par Richard Zare en 1968 et peut être considérée comme une classe de spectroscopie de fluorescence où l'excitation habituelle de la lampe est remplacée par une source laser. Le principe de cette technique repose sur quatre étapes différentes énumérées ici et illustrées par la figure suivante (Figure 2.65) :

- Excitation laser : un faisceau laser (haute intensité, longueur d'onde étroite) est dirigé sur l'échantillon d'intérêt. La lumière laser doit avoir suffisamment d'énergie pour exciter les atomes ou les molécules de l'échantillon à des niveaux d'énergie plus élevés.
- Absorption et excitation : l'échantillon absorbe la lumière laser, ce qui fait passer les électrons des atomes à des niveaux d'énergie plus élevés.
- Relaxation et fluorescence : après une brève période, les électrons excités retournent à leur état d'énergie inférieur. Pendant cette période de relaxation, l'échantillon émet une lumière d'une longueur d'onde supérieure à celle de la lumière laser incidente (fluorescence).

Des dispositifs optiques appropriés doivent alors être utilisés pour détecter et analyser la fluorescence émise. Le LIF est utilisé dans divers domaines, notamment la surveillance de l'environnement, les études de combustion, la recherche biomédicale et la science des matériaux. Ses applications vont de la détection des polluants dans l'atmosphère à l'étude des processus biologiques dans les cellules vivantes.

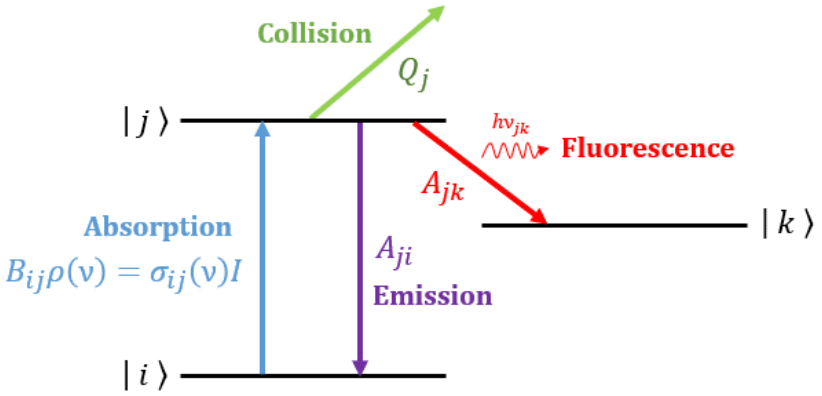


Figure 2.65 - Schéma du principe de la spectroscopie LIF. Les photons d'énergie $\boldsymbol{h\nu = E_j - E_i}$ excitent la transition $\boldsymbol{|i\rangle \rightarrow |j\rangle}$. La fluorescence correspond à l'émission spontanée de lumière pendant le temps de relaxation vers le niveau $\boldsymbol{|k\rangle}$. $\boldsymbol{\rho}$ est la densité spectrale de l'énergie, $\boldsymbol{B_{ij}}$ correspond au coefficient d'Einstein pour l'absorption, I est l'intensité du faisceau laser et $\boldsymbol{\sigma}$ est la section efficace d'absorption. $\boldsymbol{A}$ fait référence aux coefficients d'Einstein pour une émission spontanée et Q correspond à la désexcitation non-radiative.

En géosciences, cette technique d'imagerie est utilisée pour identifier des terres rares dans des échantillons de roche (Seidel *et al.*, 2019) ou investiguer le transport des panaches de solutés (Roth *et al.*, 2021). Ici, cet outil optique nous permet de suivre le transport et le dépôt de particules en mode dynamique à différentes échelles d'observation, du pore au milieu poreux dans sa globalité.

2.4.1.2 Dispositif expérimental et fonctionnement

La Figure 2.66 illustre le dispositif expérimental pour les expériences de colmatage. Le laser d'excitation est une lumière UV dont la longueur d'onde est de 355 nm. Celle-ci est déclenchée à une fréquence de 10 Hz avec une énergie d'impulsion de ~240 mJ/impulsion. Un obturateur est placé derrière la tête du laser pour contrôler la sortie du faisceau. Un miroir ne réfléchit que la longueur d'onde de 355 nm, transmettant les autres fréquences vers une zone d'extinction. Le faisceau laser est ensuite focalisé sur un séparateur de faisceau qui réfléchit 5 % de l'énergie totale du laser. La lumière réfléchie est dirigée vers un compteur d'énergie qui enregistre la fluctuation de l'intensité du laser pendant toute la durée de l'expérience. Cet enregistrement est utilisé pour la correction de l'énergie du laser. Avant d'atteindre le micromodèle, le faisceau laser est élargi à travers un homogénéisateur de faisceau carré. Finalement, la lumière fluorescente émise est capturée par une caméra sCMOS haute résolution (Kinetix) avec un objectif (300 mm) qui est placé orthogonalement au micromodèle. La taille des pixels de l'image est calculée à 6,5 µm/pixel. De plus, le circuit microfluidique est composé de deux pompes (contrôleur de débit modulaire Fluigent basé sur la pression et pompe Strata DCP50) qui assurent l'injection d'eau déionisée ou de la suspension colloïdale vers la puce microfluidique. La chute de pression à travers le micromodèle est mesurée par des capteurs de pression ABB placés en amont et en aval de la puce microfluidique tandis que la présence d'un régulateur de contre-pression Zaiput en aval nous permet de minimiser les effets de compressibilité du gradient de pression sur le système et donc de permettre une saturation rapide de la puce microfluidique.

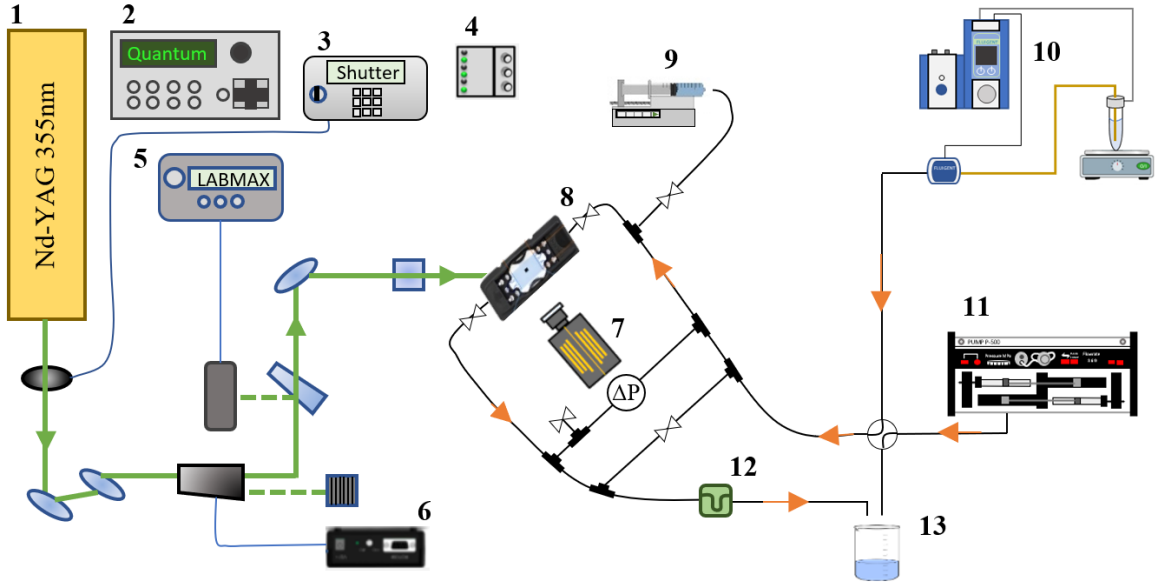


Figure 2.66 - Dispositif expérimental axé autour de l'imagerie LIF. 1 : Laser Néodynium-Doped Yttrium Aluminium Garnet (Nd-YAG) 355 nm ; 2 : Générateur de pulse quantique ; 3 : Shutter mécanique ; 4 : Boitier des cartes ET/OU ; 5 : Mesureur de puissance Labmax ; 6 : Atténuateur de puissance laser ; 7 : caméra Kinetix ; 8 : Micromodèle et son support ; 9 : Pousse-seringue ; 10 : Débitmètre Fluigent ; 11 : Pompe Pharmacia ; 12 : Régulateur de pression Zaiput ; 13 : Récupération des effluents.

Réalisée à température ambiante, une expérience consiste à injecter en continu une suspension colloïdale dans la puce microfluidique préalablement saturée d'eau déminéralisée. Un débit constant est imposé, ce qui signifie que la vitesse locale augmente lorsque la porosité diminue. Le flux continu et le caractère pulsatif du faisceau laser permettent d'éviter tout photoblanchiment. Le dépôt des particules dans le milieu poreux est suivi grâce à l'analyse d'images et à l'enregistrement de l'évolution de la différence de pression au cours de l'expérience. Une fois l'injection de la suspension colloïdale terminée, le flux entrant est remplacé par de l'eau déminéralisée afin d'éliminer les colloïdes mobiles du milieu poreux et d'établir ainsi la réduction de la mobilité due au colmatage des particules dans le système.

2.4.1.3 Traitement des mesures de perte de charge

La mesure de la différence de pression au cours de l'injection permet d'établir la réduction de la perméabilité causée par le transport et le dépôt de particules dans le milieu poreux à travers le coefficient de réduction de la mobilité Rm calculé comme suit :

$$R_m = \frac{\Delta P_{injection} - \Delta P_0}{\Delta P_{DI\ water} - \Delta P_0} = \frac{k_0}{k}\frac{\mu}{\mu_0} = R_k \cdot \frac{\mu}{\mu_0} \qquad (2.5)$$

Avec $\Delta P_{injection}$ la différence de pression (en mbar) mesurée lors de l'injection de la suspension colloïdale à débit imposé, $\Delta P_{DI\ water}$ mesurée avant l'injection avec de l'eau DI au débit d'injection et ΔP_0 la différence de pression mesurée à travers le micromodèle (en mbar) lorsque le débit d'injection est nul. μ_0 étant constante, le rapport μ/μ_0 décrit l'évolution de la viscosité relative au cours de l'injection.

Ainsi, une augmentation du Rm, le coefficient de réduction de la mobilité au cours de l'injection peut traduire :

- Seulement une réduction de la perméabilité en absence d'évolution de la viscosité de la suspension dans le micromodèle. En effet en se basant sur les mesures de viscosités μ et μ_0 déterminées avant injection le rapport μ/μ_0 est pratiquement égal à 1 ce qui implique Rm = Rk. L'évolution de Rm devrait donc décrire dans ce cas la cinétique de dépôt des particules dans le milieu poreux ; si Rm augmente, le dépôt augmente.
- Une augmentation de la viscosité apparente de la suspension dans le micromodèle couplée ou non à une réduction de la perméabilité.

Dans les deux cas une augmentation de Rm traduit la présence et l'augmentation de dépôt dans le micromodèle.

2.4.1.4 Traitement des données d'imagerie

L'acquisition des images est associée à un certain nombre d'incertitudes liées aux outils avec lesquels le banc expérimental fonctionne. A des fins d'analyse, il est nécessaire de prendre en compte ces biais et de les corriger afin d'améliorer la qualité de l'image acquise initialement et ainsi d'avoir des mesures quantitatives.

Ainsi, le traitement d'images réalisé dans le cadre de ces travaux est segmenté en deux parties : la première correction est uniquement liée à l'acquisition même tandis que la deuxième est liée à la mesure finale c'est-à-dire la fluorescence des particules au sein du micromodèle.
L'ensemble du traitement d'images a été développé avec le langage de programmation Python.

La méthode de traitement d'image permettant de déterminer la cartographie de concentration à partir des images LIF est décrite ici dans une approche systématique, ainsi que les sources d'erreurs possibles.

Correction du bruit électronique

La caméra d'acquisition génère un bruit électronique qui est fonction de la température du capteur et dont il est nécessaire de s'affranchir. Pour faire la correction du bruit électronique, une image du micromodèle est acquise sans que le faisceau laser ne soit fonctionnel ; concrètement, une lentille d'obturation située sur le trajet du faisceau laser est mise en place. Le faisceau ne peut alors pas atteindre le micromodèle. La puce microfluidique est néanmoins en place sur le support et les caméras sont allumées ; plusieurs images sont ainsi acquises avant l'acquisition des images brutes d'injection et leur moyenne est soustraite des images brutes selon l'équation suivante :

$$\text{Dark_}I_{corr} = I_{RAW} - \frac{1}{n}\sum \text{Dark_}I \tag{2.6}$$

Avec n le nombre d'images à partir desquelles une moyenne est calculée.

Correction de l'énergie laser

Le fonctionnement intrinsèque du laser est associé à une instabilité temporelle. L'énergie délivrée par le laser ε_L à chaque pulse est instable au cours du temps or cette donnée est une information connue grâce au mesureur de puissance du dispositif expérimental. Pour prendre en compte cette variation de l'énergie des impulsions laser au cours du temps, chaque image est corrigée par l'énergie laser associée au pulse laser incident au moment de l'acquisition tel que :

$$E_{corr} = \text{Dark_}I_{corr} \cdot \left(\frac{E_{mean}}{E_{act}}\right) \tag{2.7}$$

Ici, E_{mean} est la moyenne de l'énergie du laser d'excitation et E_{act} est l'énergie instantanée.

Correction du champ spatial laser

Le faisceau laser incident sur le micromodèle n'est pas homogène sur toute la fenêtre de prise de vue, notamment du fait de l'agencement spatial des différents éléments optiques et de l'angle d'éclairage du micromodèle. Cet angle permet de garantir l'intégrité des capteurs de la caméra du faisceau laser. Néanmoins, la différence spatiale induite doit être corrigée. Pour réaliser cette correction, le micromodèle est saturé avec une solution de rhodamine B (composé organique colorant et fluorescent) puis une succession d'images est acquise. L'utilisation de cette solution permet d'obtenir une réponse en fluorescence de l'ensemble du réseau poreux du micromodèle (Figure 2.67(a)).

Les variations des niveaux d'intensité de chaque pixel ne sont pas dues à des variations de concentration puisque la solution de rhodamine B injectée est homogène mais bien à l'inhomogénéité spatiale du faisceau laser. Cette phase est sans risque de dépôt au sein du milieu poreux. L'interrogation sur les fluctuations temporelles de cette inhomogénéité spatiale a ainsi pu être éclaircie dans la mesure où les profils moyens d'intensité de fluorescence établis sur la moyenne de 500 images, elles-mêmes séparés par 6h d'acquisition, apparaissent identiques (Figure 2.67(b) et (c)). La cohérence du signal est excellente et ce malgré un très long temps d'acquisition qui est inhérent à la réalisation de ces expériences d'injection en milieu poreux.

L'image moyenne du micromodèle saturé en rhodamine est elle-même corrigée du bruit électronique et normalisée par l'énergie laser associée à son acquisition. Les fluctuations spatiales du laser sont ainsi prises en compte selon l'équation suivante :

$$I_{analysis} = \frac{E_{corr}}{I_{rhod}} \tag{2.8}$$

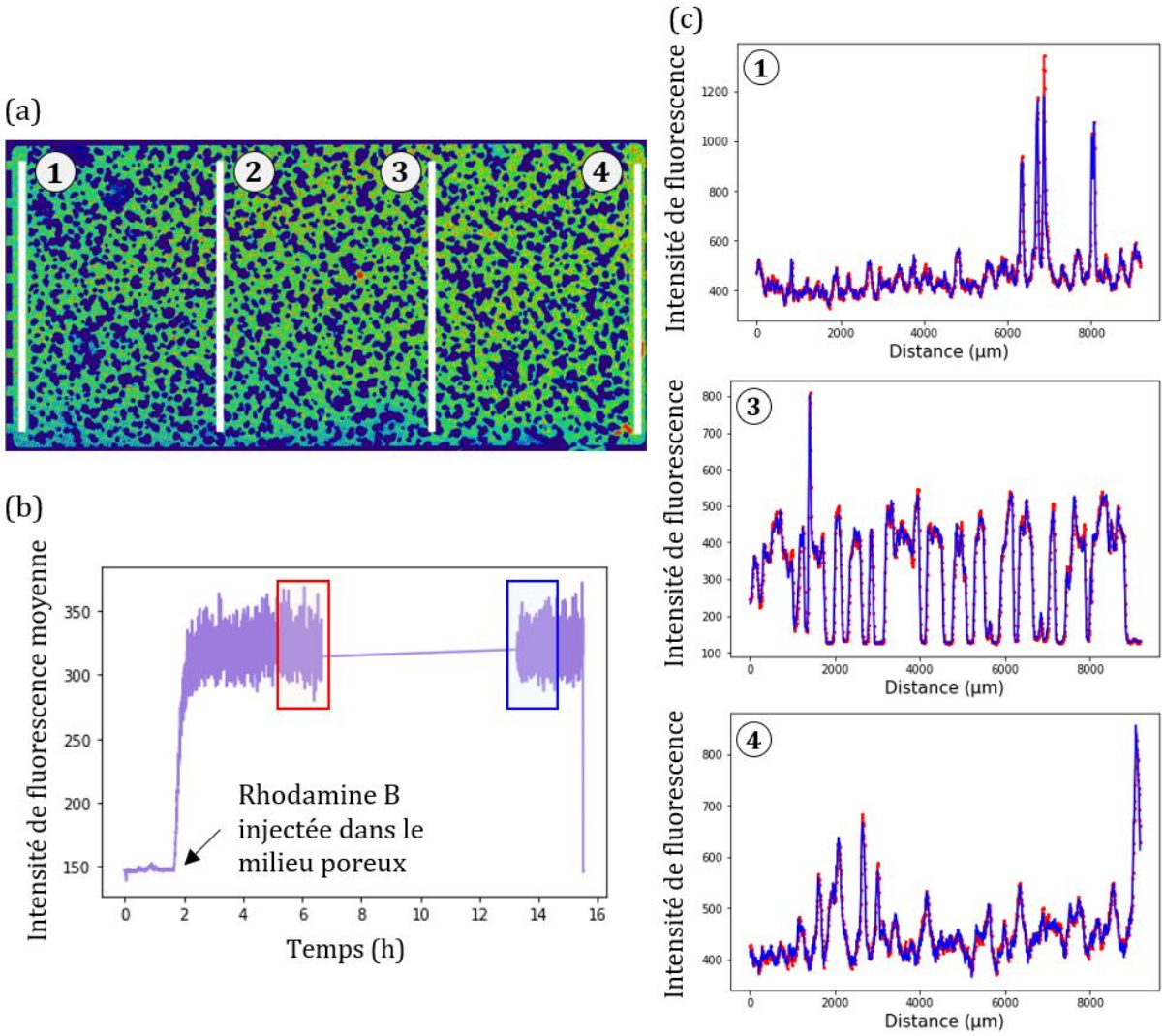


Figure 2.67 - (a) Milieu poreux saturé avec une solution de rhodamine B. (b) Cinétique de l'intensité de fluorescence moyenne du milieu poreux entier au cours du temps. Les encadrés rouge et bleu correspondent aux images utilisées (soit 500 images pour chaque période) pour la construction des profils présentés en (c). Ces profils correspondent au profil moyen établi sur 500 images pour chacune des périodes séparés par 6h d'acquisition.

Correction du background

Dès lors qu'une image brute a été corrigée des effets associés à son acquisition, elle est prête à être utilisée pour l'analyse. Dans le cas de notre étude, l'objectif étant de quantifier la concentration de la suspension de particules au sein du micromodèle, l'image prétraitée $I_{analysis}$ subit une seconde correction ; celle-ci permet d'obtenir le signal de fluorescence des particules uniquement.

Cette seconde correction consiste à soustraire l'intensité de fluorescence naturelle du fluide porteur soit ici l'eau milli-Q et de toute autre trace de fluorescence résiduelle pouvant provenir d'impuretés à celle de la suspension ; il s'agit de la correction du background selon la formule suivante :

$$BG_{corr} = I_{analysis} - BG \quad (2.9)$$

Ici, BG correspond à l'image du background (micromodèle saturé en eau milli-Q) elle-même corrigée par les fluctuations spatiales (faisceau) et temporelles (énergie) du laser.

2.4.1.5 Calibration

Dans la mesure où l'intensité de fluorescence est directement proportionnelle à la concentration de l'analyte dans le régime linéaire de puissance et de concentration, une courbe d'étalonnage est suffisante pour établir la carte de distribution de la concentration dans le milieu poreux. Le micromodèle est rempli, sans balayage long pour éviter l'accumulation de particules dans les pores, avec une concentration connue et l'intensité correspondante est alors mesurée dans la zone réservoir en amont du milieu poreux. On peut faire l'hypothèse que la suspension est relativement homogène dans cette zone (Figure 2.68(a), zone encadrée en rouge). Plusieurs concentrations sont ainsi successivement utilisées. Après acquisition et traitement, une courbe de calibration est établie (Figure 2.68(b)) où chaque point correspond à la moyenne des intensités de fluorescence relevées dans la zone amont pour 100 images acquises par concentration testée.

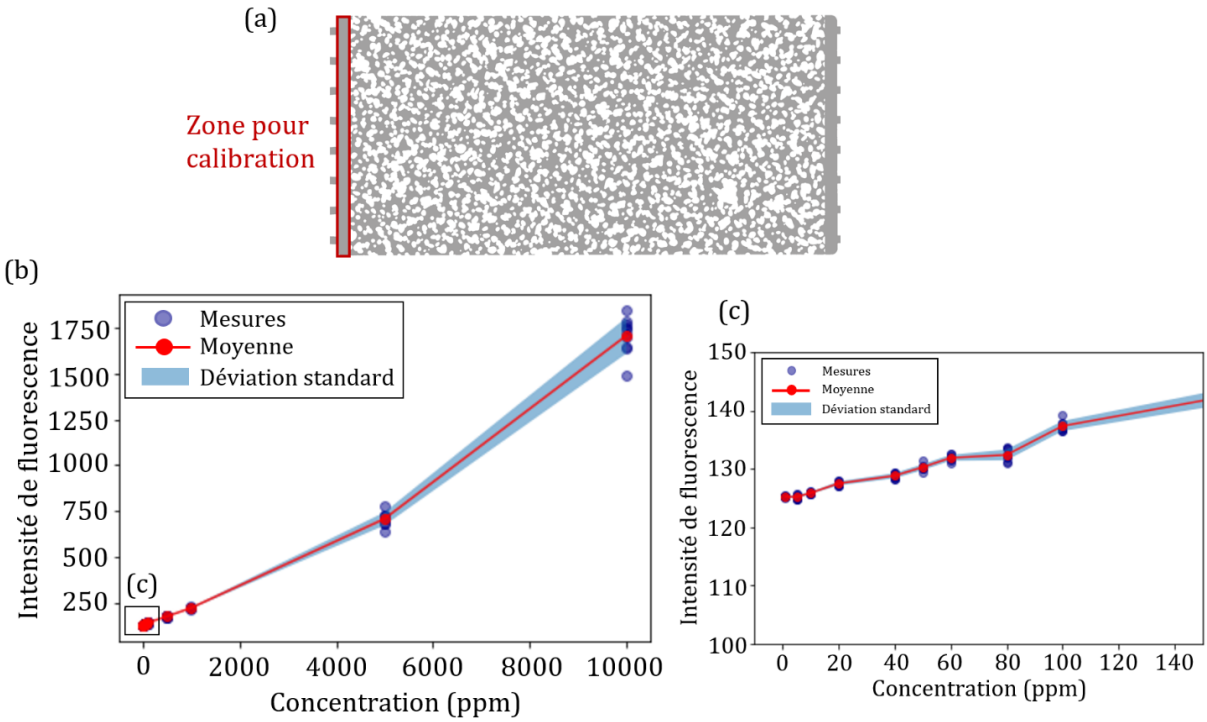


Figure 2.68 - Courbes de calibration (b) et (c) des intensités de fluorescence en fonction de la concentration de la suspension en particules dans la zone réservoir en amont du milieu poreux (a).

Ainsi, en considérant une suspension diluée, le système développé couplant LIF et microfluidique permet d'établir une cartographie de la concentration au sein du milieu poreux. Cependant, lorsque la concentration locale en particules est plus importante, *i.e.* elle dépasse la gamme explorée lors de la calibration, ou que la nature des objets observés est différente (amas cohésifs de particules), cette quantification n'est plus valable. Les observations permettent alors seulement une description qualitative du dépôt généré par l'écoulement de la suspension au sein du milieu poreux.

2.4.1.6 Exemple type de données extraites d'une injection sur le banc expérimental n°1

La figure suivante réunie les deux principaux éléments qui peuvent être extraits du banc expérimental n°1 : le champ de concentration au sein du milieu poreux (Figure 2.69(a)) et la réduction de mobilité associée à l'injection de la suspension au cours du temps (Figure 2.69(b)). Ainsi, le champ de concentration permet d'identifier les zones de dépôt, les sites ainsi que la distribution au cours du temps tandis que la mesure de la perte de charge permet d'appréhender

l'effet de l'injection de la suspension colloïdale sur la réduction de mobilité. L'objectif est de coupler ces deux informations afin de comprendre comment le champ de concentration (a) et l'ensemble des caractéristiques associés au dépôt à cet instant engendre l'endommagement mesuré en (b), et ce tout au long de l'injection. A partir du champ de concentration, des profils moyennés selon l'axe perpendiculaire à l'écoulement ou locaux (fenêtres d'observation à l'échelle du pore) peuvent être extraits pour obtenir des informations sur les dynamiques locale et globale, à corréler avec l'évolution de la réduction de mobilité.

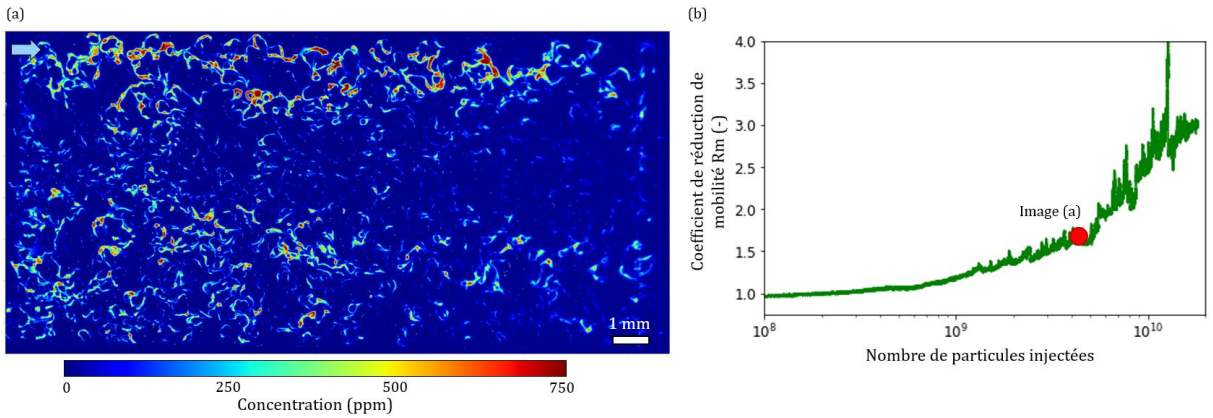


Figure 2.69 - (a) Champ de concentration obtenu après l'injection de $4{,}5.10^9$ particules de polystyrène carboxylé au sein du milieu poreux G1 (injection PM21). La flèche bleue indique la direction de l'écoulement. (b) Cinétique de la réduction de mobilité du milieu en fonction du temps lors de l'injection d'une suspension concentrée à 100 ppm et à débit Q = 1,5 ml/h (injection PM21). Le point rouge correspond au temps d'injection associé au champ de concentration présenté en (a).

2.4.2 Dispositif expérimental n°2 : dispositif de suivi dans le visible

L'imagerie LIF est associée à certains désavantages qui peuvent rendre son utilisation difficile selon l'application. En effet, cette technique repose sur la présence de fluorophores appropriés qui peuvent ne pas être inhérents à certaines substances ou particules, ce qui nécessite éventuellement des étapes de préparation supplémentaires. Les mesures peuvent être affectées par des interférences provenant de signaux de fond tels que la lumière laser diffusée ou l'autofluorescence de molécules non ciblées. Ces signaux peuvent interférer avec la détection et la quantification précises de l'émission de fluorescence souhaitée. Étant donné que le LIF implique l'exposition d'échantillons à une lumière laser intense, parfois pendant de longues périodes, les substances fluorescentes peuvent subir un photoblanchiment (perte du signal de fluorescence au fil du temps) et des effets délétères associés à la phototoxicité (dommages causés à des organismes vivants ou à des échantillons sensibles). Ces éléments sont importants à prendre en compte pour d'éventuelles expériences de réinjection en milieu poreux avec des particules dont la nature est plus sensible que le polystyrène par exemple. Des précautions doivent être prises pour minimiser ces effets.

Afin de compléter les observations et analyses réalisées avec le dispositif LIF, un second dispositif de suivi par imagerie plus classique a été développé et mis en place. Ainsi, il est possible d'utiliser l'imagerie classique pour observer l'écoulement de particules de toute nature. La visualisation directe des différents éléments du milieu poreux permet de distinguer les contours des grains et de situer les dépôts par rapport à ces collecteurs. Par ailleurs, les contraintes de sécurité opératoires associées à la mise en place d'une caméra classique sont moindres et permettent ainsi l'ajout rapide d'outils de mesure tel qu'un spectromètre ou des capteurs fibres optiques.

2.4.2.1 Dispositif expérimental et fonctionnement

Le dispositif expérimental est illustré par la figure suivante (Figure 2.70). Le banc expérimental repose sur un ensemble d'éléments communs au précédent système développé pour l'imagerie LIF, ce qui permet notamment de travailler dans des conditions opératoires similaires. Ainsi, une pompe Pharmacia et une pompe Fluigent assurent l'injection d'eau ou de la suspension colloïdale respectivement vers le micromodèle. La perte de charge aux bornes du micromodèle est mesurée par des capteurs ABB (gamme 0-2,5 bar) tandis qu'un régulateur de pression Zaiput en aval du système d'injection permet d'assurer une pression de ligne initialement choisie à 2 bar. Un ensemble de vannes et d'éléments de montage permettent d'assurer la circulation des fluides et d'isoler temporairement le micromodèle. Un pousse-seringue peut être connecté afin d'injecter ponctuellement des fluides auxiliaires vers le micromodèle.

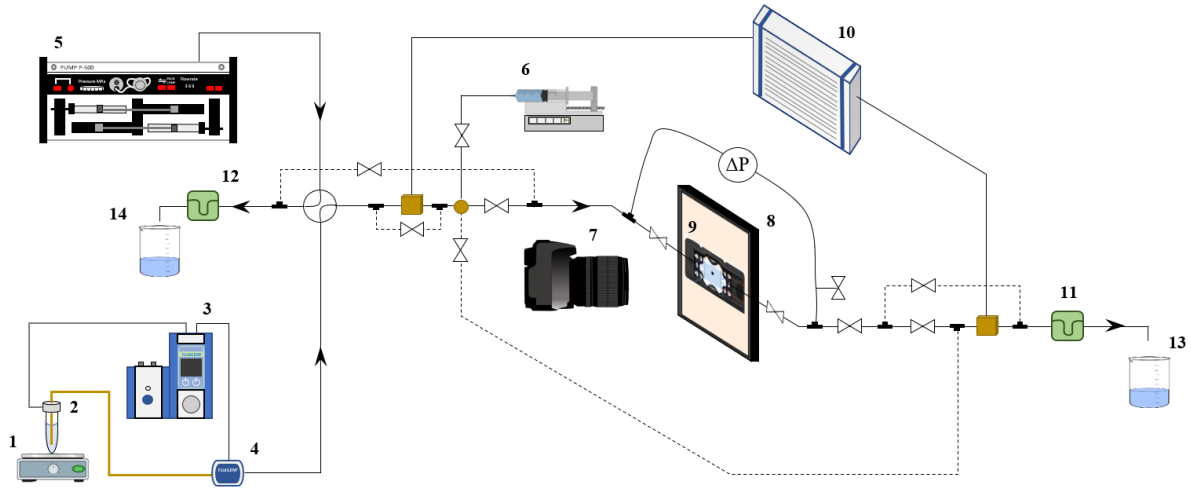


Figure 2.70 - Schéma du dispositif expérimental pour les injections. 1 : Agitateur ; 2 : Réservoir de la suspension colloïdale ; 3/4 : régulateur de débit modulaire Fluigent basé sur la pression ; 5 : pompe Strata DCP50 ; 6 : pousse-seringue ; 7 : caméra Canon ; 8 : plaque LED ; 9 : puce microfluidique et support ; 10 : spectrophotomètre Avantes ; 11/12 : régulateurs de contre-pression Zaiput (une seule alimentation pour les deux) ; 13/14 : récupération des effluents. Les carrés ocres correspondent aux cellules de mesures du spectrophotomètre.

Les principales différences avec le banc expérimental n°1 sont les suivantes :

- Le dispositif optique est constitué d'une plaque LED pour le rétro-éclairage de la puce microfluidique et d'un appareil Canon EOS-1D X dont le capteur CMOS associé à un objectif permet d'obtenir des images très haute résolution (3-4 µm/pixel).
- Un spectrophotomètre Avantes permet les mesures d'absorbance en ligne au niveau des cellules optiques placées en amont et en aval du micromodèle. Ces mesures peuvent ensuite être corrélées par la loi de Beer-Lambert à des concentrations en particules. L'Annexe F présente ainsi les travaux de calibration réalisés afin d'extraire les informations des profils d'absorbance obtenus au cours du temps. La comparaison des signaux amont/aval permet de remonter à la quantité retenue dans le micromodèle et contrôler la concentration de la suspension injectée. Toutefois, les analyses n'ayant pu être réalisées pour l'ensemble des expériences, les courbes correspondantes aux mesures faites par le spectrophotomètre ne sont pas présentées dans ce manuscrit.

Le protocole d'injection reste identique à celui précédemment avancé : une expérience d'injection est réalisée à température ambiante, avec l'alimentation en continu du milieu poreux préalablement saturée en eau. Une fois terminée, le flux de la suspension colloïdale est remplacé

par celui de l'eau afin d'éliminer les dépôts superficiels et établir la réduction de perméabilité due aux dépôts immobiles formés au débit considéré lors de l'injection des particules.

2.4.2.2 Traitement des mesures de perte de charge

De façon identique au traitement des mesures de perte de charge réalisé dans le cadre du dispositif LIF, la mesure de la différence de pression au cours de l'injection permet d'établir la réduction de la perméabilité à travers le coefficient de réduction de la mobilité Rm calculé selon l'équation 2.5. Une augmentation de Rm traduit la présence et l'augmentation de dépôt dans le micromodèle.

2.4.2.3 Traitement des données d'imagerie

Préalablement à toute analyse quantitative, les images acquises subissent une correction permettant de prendre en compte l'inhomogénéité de lumière de la LED qui rétro-éclaire le micromodèle ainsi que le niveau d'intensité lumineuse associée au fluide porteur (eau Milli-Q). Cette correction du fond également appelée correction du background correspond à la soustraction de l'image acquise par une image du micromodèle saturé en eau et rétro-éclairé par la LED. Par ailleurs

Les images ainsi corrigées sont constituées de pixels dont les valeurs sont comprises entre 0 et 255 (noir et blanc respectivement). Lorsque des particules se déposent dans le milieu, elles apparaissent sombres dans le micromodèle ce qui entraine une diminution du niveau de gris, *i.e.* les valeurs des pixels tendent vers 0. Cette évolution modifie la distribution des valeurs des pixels (Figure 2.71). Sur la base des informations ci-dessus, l'acquisition d'images nous permet de travailler avec deux quantités exposées ci-dessous.

Premièrement, nous déterminons la surface représentée par le dépôt dans la fenêtre d'analyse. Par exemple, sur l'image présentée en Figure 2.71(a), il s'agit de distinguer le dépôt apparaissant en noir au gris associé à la bordure des grains, au gris du grain solide et au gris de la suspension s'écoulant au sein de l'espace poreux. Afin d'identifier le dépôt sur l'ensemble de cette zone étudiée, nous avons utilisé la méthode de segmentation par seuillage, qui consiste à classer les pixels selon si leur valeur est supérieure ou inférieure au seuil déterminé pour chaque expérience (Figure 2.71(c)). Selon la valeur du niveau de gris, les objets considérés (grain, bordure du grain, espace poreux, dépôt) vont être classés en deux catégories distinctes. Cette méthode produit une image binaire (Figure 2.71(b)) regroupant les résultats issus de cette classification (0 pour le dépôt, et 255 pour les pores et les grains). La distribution du niveau de gris de cette image binaire est alors différente de celle initiale (Figure 2.71(d)). Le nombre de pixels associé à l'espace poreux de la zone considérée, et dans lequel le dépôt peut avoir lieu, est obtenu en multipliant le nombre de pixels total par la porosité de la zone $\varphi_{\text{zone étudiée}}$ (elle-même obtenue grâce à l'image de masque du milieu poreux). Ensuite, le rapport entre les pixels noirs et ce nombre de pixels associé à l'espace poreux permet d'obtenir la fraction surfacique représentée par le dépôt tel que :

$$\text{Fraction surfacique (\%)} = \left(\frac{\text{Pixels noirs (dépôt)}}{(\text{Pixels blancs et noirs}) \cdot \varphi_{\text{zone étudiée}}}\right) . 100 \qquad (2.10)$$

Réitérée pour les différentes images obtenues au cours de l'injection, cette opération permet d'obtenir la fraction surfacique représentée par le dépôt à l'intérieur de l'espace poreux au cours du temps.

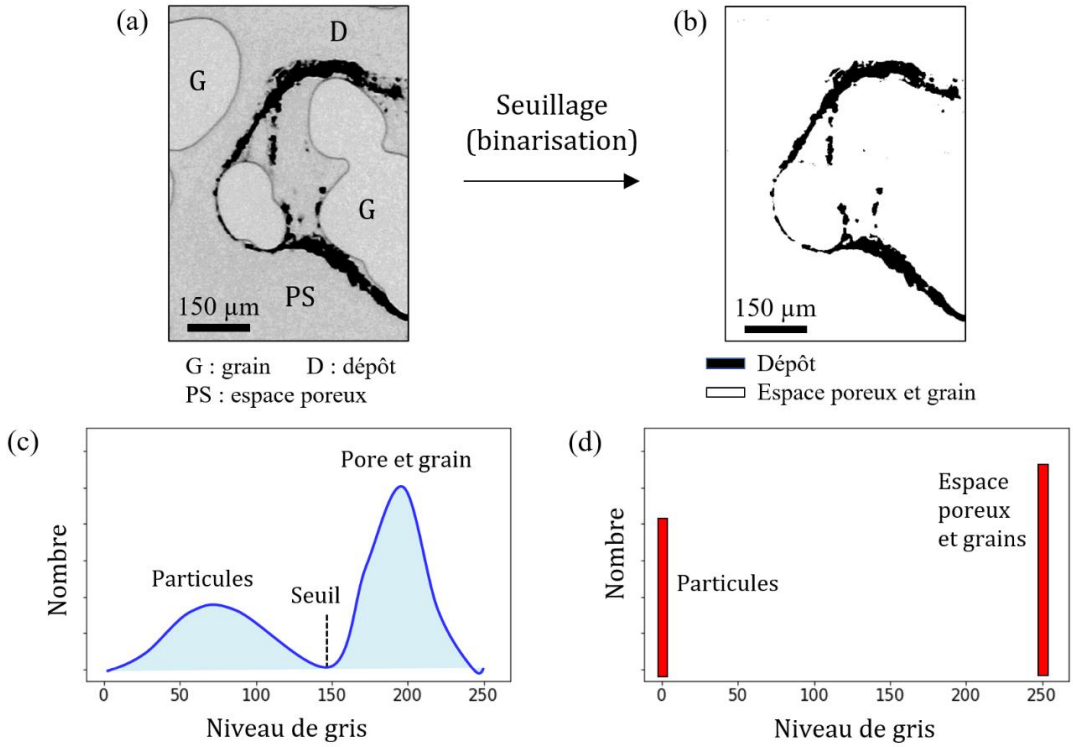


Figure 2.71 - Détail d'un dépôt observé lors de l'injection d'une suspension colloïdale en (a) niveau de gris et (b) binarisé (dépôt en noir, espace poreux et grain en blanc). Illustration schématique de la distribution des valeurs de gris de l'image (c) en niveau de gris et (d) après l'opération de seuillage qui la binarise.

Deuxièmement, le niveau de gris normalisé a été utilisé pour suivre spécifiquement la cinétique du dépôt pendant l'injection. Pour assurer la cohérence entre la croissance des dépôts et la distribution des valeurs des pixels (lorsqu'il y a un dépôt, les valeurs des pixels tendent vers 0 et le niveau de gris diminue), nous avons utilisé l'inverse du niveau de gris moyen normalisé calculé comme suit :

$$\text{Niveau de gris (NDG) moyen normalisé} = \frac{\text{NDG}_0 \text{ moyen}}{\text{NDG moyen}} \quad (2.11)$$

Avec NDG_0 la valeur de gris moyenne de la zone analysée lorsque l'injection commence, *i.e.* lorsqu'aucun dépôt n'est observé et NDG moyen la valeur de gris moyenne mesurée au sein de la zone étudiée.

Les incertitudes ont été estimées à 10% pour le traitement des images (seuillage) et à 1% pour le traitement des données de pression. Travailler avec la valeur moyenne des gris peut alors être plus précis car elle n'est pas seuillée, ce qui est particulièrement pertinent pour évaluer la cinétique de dépôt.

Ainsi, à la fin d'une expérience, les paramètres enregistrés sont des images permettant une analyse quantitative du dépôt dans le temps et de la cinétique associée ainsi qu'une mesure de la différence de pression dont on déduit la réduction de perméabilité associée. Le spectrophotomètre permet de contrôler l'évolution de la concentration de la suspension injectée au cours du temps.

2.4.2.4 Exemple type de données extraites d'une injection sur le banc expérimental n°2

La figure suivante réunie les principaux éléments qui peuvent être extraits du banc expérimental n°2 : la localisation des dépôts au sein de l'espace poreux (Figure 2.72 (a) et (b)),

l'évolution de la fraction surfacique associée à ce dépôt et l'évolution du niveau de gris moyen au cours de l'injection (Figure 2.72(c)), ainsi que la réduction de mobilité associée à l'injection de la suspension au cours du temps (Figure 2.72(d)). Ainsi, l'imagerie permet par exemple d'identifier les zones de dépôt à l'échelle macroscopique (milieu poreux entier) ou à l'échelle du pore. La Figure 2.72(a) permet de montrer que, dans le cadre des conditions opératoires associées à l'injection PM119, le dépôt est principalement localisé dans la zone amont du milieu poreux, mais sous différents types : sous forme filamenteuse (Figure 2.72(b)i) ou au niveau de certains seuils (Figure 2.72(b)ii et iii). Des profils moyennés peuvent être construits pour toutes les échelles d'observation considérées, et la mesure de la perte de charge permet d'appréhender l'effet de l'injection de la suspension colloïdale sur la réduction de mobilité. L'objectif est de coupler les informations extraites de l'imagerie à l'endommagement mesuré, à tout instant de l'injection, afin de comprendre l'impact de l'écoulement de la suspension colloïdale au sein du milieu poreux.

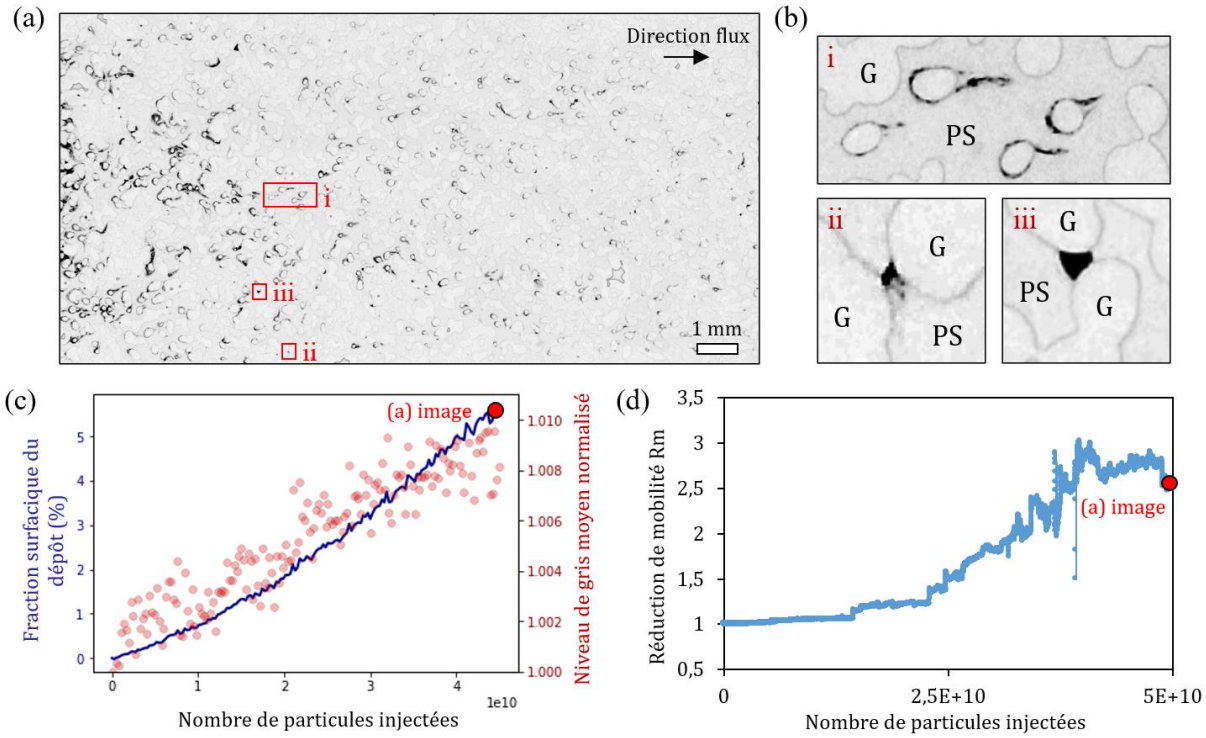


Figure 2.72 - (a) Image en niveau de gris obtenue à l'issue de l'injection de 5.10^{10} particules dans le milieu poreux G1 (expérience PM119). (b) Observations à l'échelle du pore de certains dépôts encadrés en rouge en (a). (c) Cinétiques de la fraction surfacique représentée par le dépôt et du niveau de gris moyen normalisé au cours de l'injection. (d) Evolution du coefficient de réduction de mobilité en fonction du nombre de particules injectées.

Les observations et mesures issues des bancs expérimentaux n°1 et 2 sont exposées, décrites et expliquées au sein du chapitre 3 et 4.

2.4.3 Choix des conditions expérimentales d'injection

Tel que mentionné précédemment (2.1.2.5 Protocole de préparation des suspensions de particules), les concentrations particulaires cibles sont au nombre de trois : 100, 500 et 1000 ppm respectivement. D'autres concentrations ont été étudiées, 10 et 50 ppm notamment, afin d'explorer une gamme plus étendue de valeurs.

Le choix du débit d'injection repose sur les débits usuels associés aux opérations géothermiques. En effet, le débit moyen d'injection conventionnel est maintenu constant autour

de 200 $m^3.h^{-1}$. Ce débit peut être plus faible (100 $m^3.h^{-1}$) mais aussi plus grand (300 $m^3.h^{-1}$). Si l'on considère une couche géologique d'épaisseur h = 20 m et d'une porosité φ = 40%, la vitesse interstitielle d'écoulement v_w est fonction de la distance radiale r_w par rapport au puits d'injection tel que :

$$v_w = \frac{Q}{2\pi\, r_w\, h\varphi} \tag{2.12}$$

Si l'on considère ensuite un débit au puits injecteur Q = 200 $m^3.h^{-1}$, l'évolution de la vitesse de pore diminue rapidement avec la distance (Figure 2.73).

Expérimentalement, les outils utilisés et les caractéristiques associées aux suspensions de particules contraignent le choix du débit d'injection ; en effet, un débit très faible permettrait d'atteindre une vitesse moyenne interstitielle faible et donc 'mimer' un écoulement loin du puits d'injection mais le débitmètre utilisé ne permet pas de délivrer un débit continu et précis à de telles faibles valeurs. Ainsi, nous avons choisi de travailler avec deux débits principaux : 1,5 et 6 ml/h respectivement. Un facteur 4 sépare ainsi les valeurs de débit qui correspondent à des vitesses interstitielles d'environ 25 et 100 cm/min pour le débit le plus faible et le plus fort respectivement (pour la géométrie G1). Notons que la simulation au sein du milieu G1 a montré que la distribution du champ de vitesse s'étend sur une large gamme de valeurs. Par rapport à un cas « réel », ces vitesses de pore correspondent à des vitesses atteintes proche puits, à environ 6,5 cm et 25,6 cm (Figure 2.73). Il est particulièrement intéressant d'obtenir cette configuration représentative de la vitesse proche puits dans la mesure où il s'agit d'une zone critique pour l'accumulation des dépôts et la localisation du colmatage. Cependant, ces dépôts peuvent être entrainés dans un deuxième temps en profondeur (éloignement radial par rapport au puits très important) mais ce cas n'est pas étudié ici.

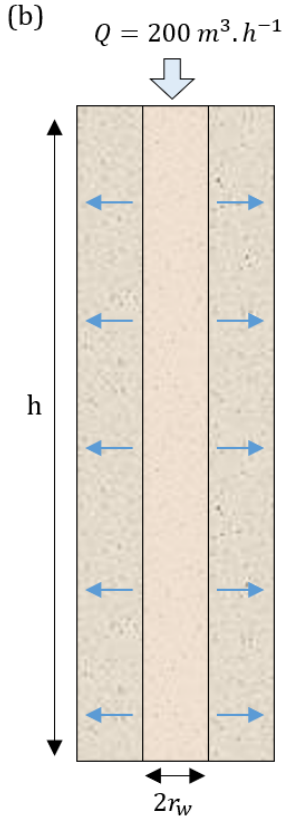
Afin de comparer les expériences réalisées avec différentes concentrations de particules ou différents débits, les résultats (réduction de mobilité, évolution du niveau de gris, évolution de la concentration moyenne, …) sont présentés en fonction du nombre de particules injectées au sein du milieu poreux, à l'exception de quelques-uns. Par ailleurs, les expériences sont conduites à température contrôlée, autour de 25°C.

Ainsi, la mise en place des conditions opératoires réalisée dans le cadre des travaux présentés dans ce manuscrit constitue une étude de la problématique d'endommagement des milieux poreux lors de la réinjection de fluides dans un environnement proche puits.

(a)

	L (cm)	l (cm)	P (cm)	S (cm²)	φ	Vi (cm/min)	Q_labo (ml/h)	V (pied/jour)
Débit min	2	1	0,002	0,002	0,5	**25**	1,5	1200
Débit max	2	1	0,002	0,002	0,5	**100**	6	4800

(b)



(c)

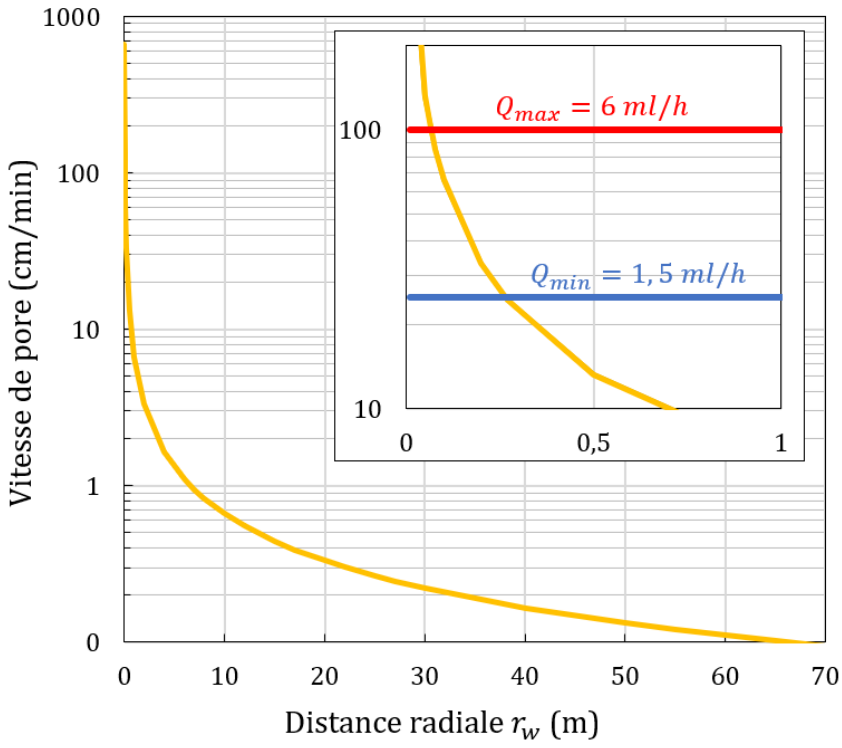


Figure 2.73 - (a) Calcul des vitesses interstitielles moyennes associées aux débits minimum et maximum choisis pour les injections dans la géométrie G1. L et l correspondent à la longueur et largeur du micromodèle, respectivement. P et S sont la profondeur et la section, φ la porosité, Vi la vitesse interstitielle, Q le débit et V la vitesse d'écoulement. (b) Schéma de l'injection d'un fluide à débit Q = 200 $m^3.h^{-1}$ dans une couche de roche d'une épaisseur h par un puits de rayon r_w. (c) Evolution de la vitesse d'écoulement du fluide autour du puits injecteur.

2.4.4 Récapitulatif des expériences menées

L'élaboration et la mise en place des dispositifs expérimentaux et des protocoles de traitement associés à chacune des deux techniques d'imagerie est le résultat d'une importante phase d'action permettant la collecte ultérieure d'informations précises et quantitatives sur les mécanismes de colmatage. Les deux dispositifs mis en place permettent en effet l'acquisition contrôlée et précise de données concernant la distribution des dépôts de particules autour des grains, la répartition le long du milieu poreux, la cinétique associée au dépôt, la localisation et le type de sites de rétention ou encore les paramètres/conditions exerçant une influence sur le dépôt.

Le tableau suivant (Tableau 2.12) récapitule l'ensemble des injections réalisées. Les résultats associés à la réalisation de l'ensemble de ces expériences d'injection en milieu poreux font l'objet des deux chapitres suivants.

Tableau 2.12 - Récapitulatif des expériences menées au cours de l'étude.

Nom expérience	Concentration (ppm)	Débit (ml/h)	Type de particules	Diamètre particules (µm)	Géométrie	Technique d'imagerie
M6	100	1,8	PS amidine	1	G1	Visible
M7	100	1,8	PS amidine	1	G1	Visible
M8	50	1,8	PS amidine	1	G1	Visible
M9	100	1,5	PS carboxyle	1	G1	Visible
M11	1000	2	PS carboxyle	1	G1	Visible
M12	1000	1,5	PS carboxyle	1	G1	Visible
M13	1000	1,5	PS carboxyle	1	G1	Visible
M15	500	1,5	PS carboxyle	1	G1	Visible
PM17	1000	1,5	PS carboxyle	1	G1	Visible
PM18	1000	1,5	PS carboxyle	1	G1	LIF
PM21	100	1,5	PS carboxyle	1	G1	LIF
PM24	500	1,5	PS carboxyle	1	G1	LIF
PM115	500	1,5	PS carboxyle	1	G1	LIF
PM116	500	2	PS carboxyle	1	G1	LIF
PM117	100	2	PS carboxyle	1	G1	Visible
PM118	1000	6	PS carboxyle	1	G1	Visible
PM119	500	6	PS carboxyle	1	G1	Visible
PM120	100	6	PS carboxyle	1	G1	Visible
PM122	100	1,5	PS carboxyle	1,75	G1	Visible
PM123	1000	1,5	PS carboxyle	1,75	G1	Visible
PM124	100	6	PS carboxyle	1,75	G1	Visible
PM1	100	1,5	PS carboxyle	4,5	G1	Visible
PM2	1000	1,5	PS carboxyle	4,5	G1	Visible
PM3	100	6	PS carboxyle	4,5	G1	Visible
M5	100	6	PS carboxyle	4,5	G1	Visible
PM23	500	1,5	PS carboxyle	4,5	G1	Visible
L1	100	1,5	PS carboxyle	1	G2	Visible
L2	1000	1,5	PS carboxyle	1	G2	Visible
K1	100	1,5	PS carboxyle	1	G3	Visible
K2	5	3	PS carboxyle	1	G3	Visible
K3	10	1,5	PS carboxyle	1	G3	Visible
K4	10	6	PS carboxyle	1	G3	Visible
Massif1	100	1000	PS carboxyle	1	Massif 1	-
Massif2	10	1000	PS carboxyle	1	Massif 2	-
K5	1000	1,5	Illites	0,05-0,2	G3	Visible

La réalisation de ces expériences a permis d'obtenir des informations majeures sur la localisation du dépôt au sein des différentes géométries des milieux poreux, les mécanismes de colmatage, l'effet de la variation des paramètres associés à l'injection de la suspension colloïdale et la dynamique générale de réduction de mobilité associée à l'écoulement et au transport de particules dans un milieu poreux. L'ensemble de ces résultats est présenté dans les chapitres suivants.

Chapitre 3 : Résultats expérimentaux

Sommaire

3.1 Description multi-échelle du dépôt 107
3.1.1 Description macroscopique des dépôts 107
3.1.2 Régimes d'écoulement – Alimentation particulaire différentielle 111
3.1.3 Mise en évidence des sites de dépôt 113
3.1.4 Mise en évidence d'une agrégation hydrodynamique 115

3.2 Mécanismes de colmatage 118
3.2.1 Mécanisme 1 : fermeture des seuils de pore par un dépôt multicouche progressif et stable 118
3.2.2 Mécanisme 2 : tamisage par déplacement d'agrégats (dépôts instables) 123
3.2.3 Conclusion sur les mécanismes de colmatage : compétition entre construction et destruction des dépôts 126

3.3 Etude paramétrique des facteurs d'endommagement 127
3.3.1 Analyse des courbes caractéristiques d'endommagement et corrélation avec l'imagerie 127
3.3.2 Effet de la concentration de la suspension injectée 129
3.3.3 Effet du débit d'injection 130
3.3.4 Effet de la taille de particules 132
3.3.4.1 Dépôts et mécanismes de colmatage 132
3.3.4.2 Endommagement du milieu poreux 133
3.3.5 Charges de surface différentes : particules de polystyrène amidines 136
3.3.5.1 Dépôt à l'échelle macroscopique 136
3.3.5.2 Dépôt à l'échelle du pore 138
3.3.5.3 Endommagement du milieu poreux 140
3.3.6 Conclusion étude paramétrique sur l'endommagement 141
3.3.7 Proposition d'un modèle empirique pour évaluer la réduction de perméabilité lors de l'injection d'une suspension de colloïdes au sein d'un milieu poreux. 143

3.4 Géométries différentes : conséquences sur le dépôt et l'endommagement 145
3.4.1 Géométrie G3 145
3.4.1.1 Description du dépôt à l'échelle du pore 145
3.4.1.2 Mécanismes de colmatage : dépôts stables et instables 146
3.4.1.3 Dépôt à l'échelle macroscopique 149
3.4.1.4 Effets de la concentration et du débit sur l'endommagement 151
3.4.2 Géométrie G2 152
3.4.2.1 Dépôt à l'échelle du pore 152
3.4.2.2 Dépôt à l'échelle macroscopique 155
3.4.2.3 Effet de la concentration sur l'endommagement 156
3.4.3 Comparaison des résultats obtenus avec les différentes géométries 157

3.5 Conclusion 159

L'analyse des travaux réalisés sur le phénomène de colmatage d'un milieu poreux a permis de montrer que différents paramètres étaient à l'œuvre, avec d'une part les effets liés aux caractéristiques du milieu poreux (*i.e.* porosité, perméabilité, tortuosité), d'autre part la suspension (*i.e.* taille des particules, nature, concentration) et enfin les effets liés aux conditions d'écoulement (*i.e.* débit d'injection, pression, température). Bien que très riche, la littérature reste limitée sur la caractérisation des mécanismes de colmatage dans un milieu poreux 2D hétérogène (au sens non régulier) et ses effets sur la réduction de perméabilité conduisant à l'endommagement.

Ce chapitre développe l'analyse globale menée sur les résultats expérimentaux obtenus lors de l'étude sur le transport et le dépôt de particules d'une suspension injectée dans les milieux poreux 2D hétérogènes présentés précédemment. Les résultats d'imagerie sont ainsi couplés aux mesures physiques et aux résultats de simulation numérique pour apporter des éléments de réponse à la problématique.

Dans un premier temps, les caractéristiques associés au dépôt (formation, localisation, nature) sont étudiées à différentes échelles puis les mécanismes de colmatage sont décrits. Leurs conséquences sur l'endommagement, *i.e.* la réduction de perméabilité, sont également discutées. Les résultats de l'étude paramétrique (effet de la variation de concentration, de débit, de taille de particules…) sont ensuite exposés et se concluent par la proposition d'un modèle empirique pour l'évaluation de la réduction de perméabilité lors de l'injection d'une suspension de colloïdes au sein d'un milieu poreux. L'ensemble de ces éléments sont associés à l'utilisation du milieu poreux G1. Ainsi, dans un second temps, nous nous intéressons aux résultats (dépôt, impact sur l'endommagement, effet de la variation des paramètres d'injection) associés à l'injection d'une suspension colloïdale dans les milieux poreux G2 et G3.

3.1 Description multi-échelle du dépôt

3.1.1 Description macroscopique des dépôts

Les interactions particule-particule et particule-paroi étant répulsives, la première hypothèse formulée sur les observations du micromodèle repose sur un écoulement sans dépôt ou attachement significatif des colloïdes dans la mesure où le fluide est relativement peu concentré en particules et le milieu poreux perméable. Néanmoins, après une série d'injections réalisées à différentes concentrations de particules, l'examen du champ de fluorescence (Figure 3.74(a)) et de la distribution de particules associée révèlent une tout autre configuration. De manière inattendue, les particules sont principalement réparties en amas qui continuent de croitre à mesure que l'injection se poursuit.

Les profils de distribution des dépôts le long du micromodèle (Figure 3.74(b)), obtenus pour une expérience typique (suspension de polystyrène à concentration 1000 ppm et débit égal à 1,5 ml/h), établissent un schéma cohérent des dépôts qui sont initiés à certains emplacements spécifiques. Ces dépôts augmentent ensuite progressivement en taille, localement, sans décalage notable du pic ou augmentation préférentielle dans une région particulière. La croissance peut localement présenter un mouvement unidirectionnel vers l'extrémité aval du milieu poreux, comme le montre par exemple la progression vers la droite du pic initial autour de la position 0,1 cm. Bien que l'on puisse observer une augmentation et un déplacement local des dépôts plus loin dans le milieu poreux, la forme des profils de dépôt reste essentiellement constante au cours de l'injection. La caractéristique principale de ces dépôts est une augmentation significative de la densité locale des particules. Le long du milieu poreux, la concentration moyenne peut doubler, comme le montre le pic en amont (entre 0,1 et 0,2 cm) qui passe de 2000 à près de 5000 ppm. Cette tendance est

confirmée par l'examen des images T1 et T2 prises à un intervalle de temps significativement différent (~17h d'injection entre les deux, correspondant à ~8585 volumes de pore supplémentaires). Les dépôts ont subi un déplacement spatial minime, mais ont plutôt augmenté en taille et en densité (Figure 3.74(a)).

D'un point de vue macroscopique (Figure 3.74(c)), l'évolution de la concentration moyenne dans le milieu poreux peut être décrite comme une loi de puissance avec deux phases distinctes : la première correspond à l'invasion initiale du milieu poreux par le fluide colloïdal et à la progression rapide du dépôt de particules. Durant cette phase, la concentration moyenne dans le milieu poreux subit son augmentation la plus rapide (>1500 ppm). Ensuite, à partir de $5x10^9$ particules injectées, l'ampleur de l'augmentation est moins importante. Néanmoins, le taux de croissance est très stable, avec une nette tendance à l'augmentation du dépôt dans le milieu poreux.

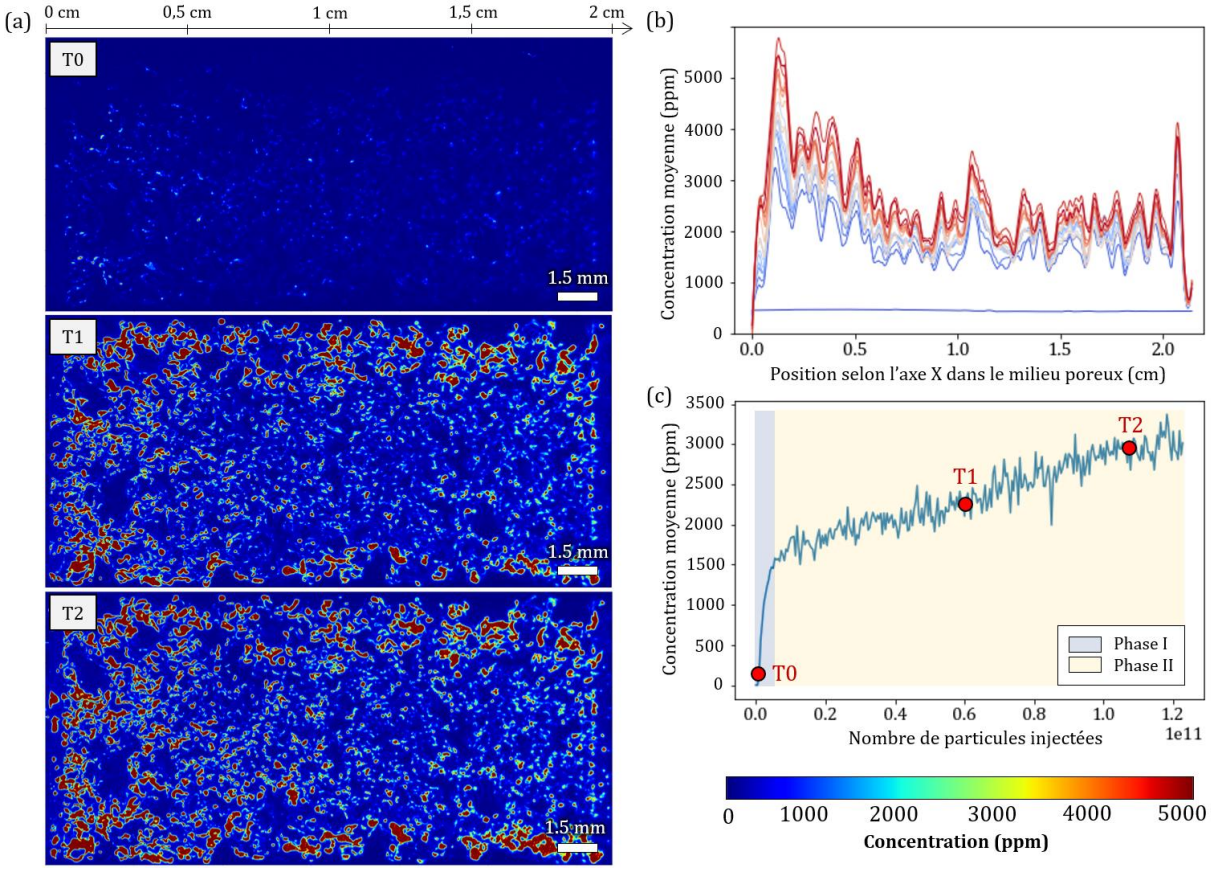


Figure 3.74 - Caractérisation macroscopique (sur toute la longueur du micromodèle) du dépôt lors de l'injection de particules de polystyrène fonctionnalisées par des carboxyles (expérience PM18) : (a) images des champs de concentration obtenues par LIF et montrant les sites de dépôt dans le milieu poreux (T1 = 1370 min, T2= 2400 min soit $6,23x10^{10}$ et $1,09x10^{11}$ particules injectées, respectivement) ; (b) les profils de dépôt correspondants montrent la quantité de dépôt à chaque position le long de la direction du flux et (c) évolution de la concentration moyenne dans le milieu poreux lors de l'injection.

L'imagerie classique permet de confirmer cette croissance d'amas de colloïdes, ou clusters de particules, dont la taille peut atteindre plusieurs centaines de microns au sein de l'espace poreux (Figure 3.75). Bien que la suspension soit constituée de particules d'1 µm de diamètre et l'écoulement au sein d'un milieu poreux fortement perméable, des objets de taille importante peuvent être visibles rapidement après le début de l'injection. Ces clusters peuvent localement se densifier (comparaison T0-T1, Figure 3.75(b)) mais également se déplacer comme le suggère la comparaison des images T1 et T2 où certains de ces objets colloïdaux ne sont plus présents (cercles

rouges). Cette observation indique qu'additionnellement à une croissance locale, le processus de dépôt est associé à une dynamique globale induite par l'écoulement le long du micromodèle. Malgré ces premières observations surprenantes (présence de clusters de particules de tailles importantes qui semblent pouvoir se déplacer), l'évolution de la fraction surfacique du dépôt au sein du milieu poreux indique une progression nette au cours du temps (Figure 3.75(c)). Cette évolution apparait identique à celle résultante de l'analyse par imagerie du dispositif LIF : une première phase de dépôt avec une progression rapide puis une seconde où l'accumulation est moins rapide. Néanmoins, le taux de progression reste constant.

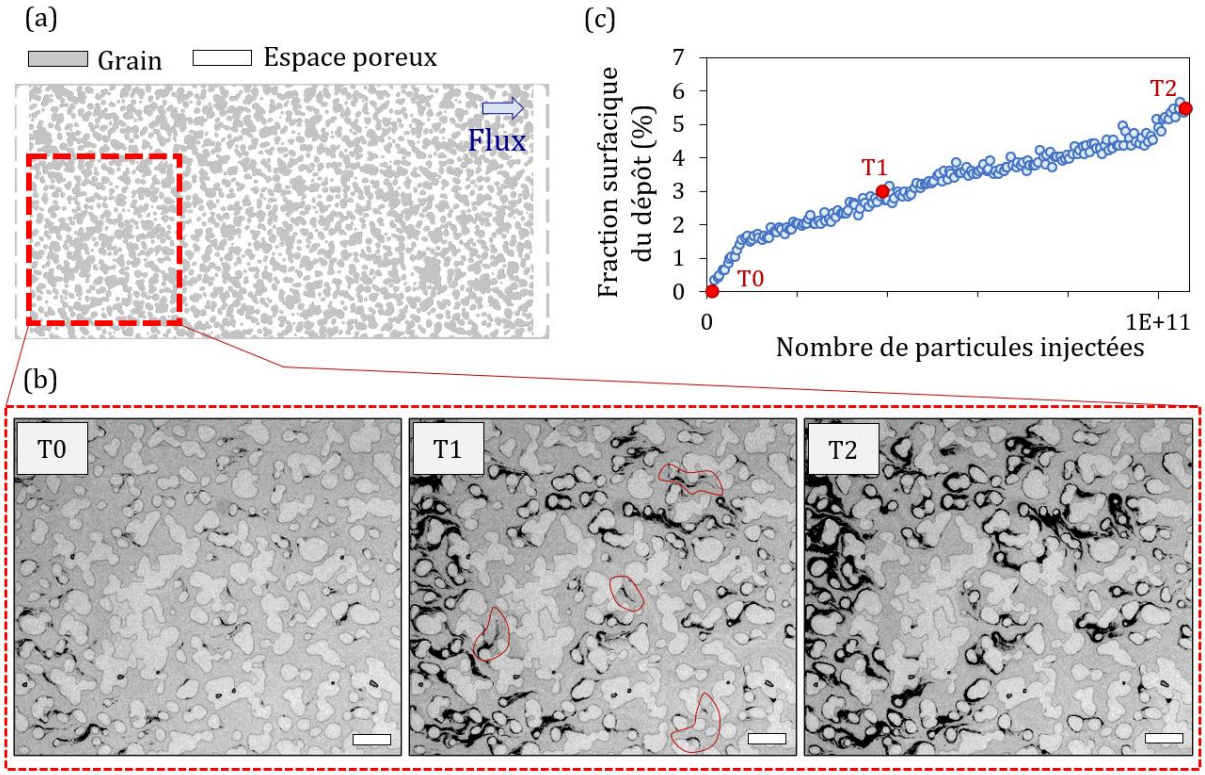


Figure 3.75 - (a) Image binarisée du micromodèle (grains en gris et espace poreux en blanc). L'encadré rouge indique la zone correspondant aux images présentées en (b). (c) Evolution de fraction surfacique du dépôt au cours de l'injection (expérience PM118) sur l'ensemble du micromodèle. La surface de dépôt évaluée correspond à celle du milieu poreux. Les points rouges notés T0, T1 et T2 correspondent aux images du milieu poreux et des dépôts présentées en (b). La barre d'échelle correspond à 850 µm.

En outre, l'observation de la progression du fluide dans le milieu poreux au cours de l'injection fournit des informations importantes sur les voies d'écoulement préférentielles et les zones de non-circulation. En effet, certaines zones semblent entièrement épargnées par le dépôt, le niveau de gris est plus faible ce qui indique que la concentration locale en particules est faible ou nulle. Aucune figure particulière n'est visible et ce malgré l'injection d'environ 20 000 VP (T2) tandis que certains pores semblent entièrement remplis par des clusters de particules. Ces zones, dictées par la géométrie du milieu poreux et dont la surface est réduite à fort débit d'injection, peuvent être identifiées par des simulations numériques des écoulements.

Dans le cadre des travaux expérimentaux, bien que la résolution de la caméra ne permette pas d'identifier les particules individuellement, des indications sur les zones d'écoulements préférentiels peuvent être obtenues grâce au dispositif LIF. Nous comparons ainsi une image du champ de concentration obtenue à la fin de l'injection ($1{,}2 \times 10^{11}$ particules injectées) (Figure 3.76, haut) avec la cartographie de la tortuosité du milieu poreux (Figure 3.76, bas) sans aucun dépôt. En

raison du volume important de fluide colloïdal injecté (22 500 VP), on peut s'attendre à une présence de dépôts dans toutes les zones du milieu poreux, y compris celles difficiles d'accès. En effet, le volume d'injection élevé assure *a priori* une distribution et une couverture étendues du milieu poreux avec le matériau déposé. Cependant, le champ de concentration obtenu après l'injection de $1{,}2x10^{11}$ particules révèle une absence totale de dépôts dans certaines zones spécifiques du milieu poreux qui correspondent à des zones de tortuosité maximale. En revanche, les régions à faible tortuosité sont associées à des amas denses de particules, présentant des concentrations significativement plus élevées que le fluide injecté (localement, la concentration peut atteindre 5000 ppm soit une augmentation d'un facteur 5 par rapport à la concentration de la suspension injectée). Ce phénomène est particulièrement visible dans la partie amont du milieu poreux, où la présence de dépôts est plus prononcée. Les zones à faible tortuosité dans cette région présentent des amas de dépôts plus importants et plus denses.

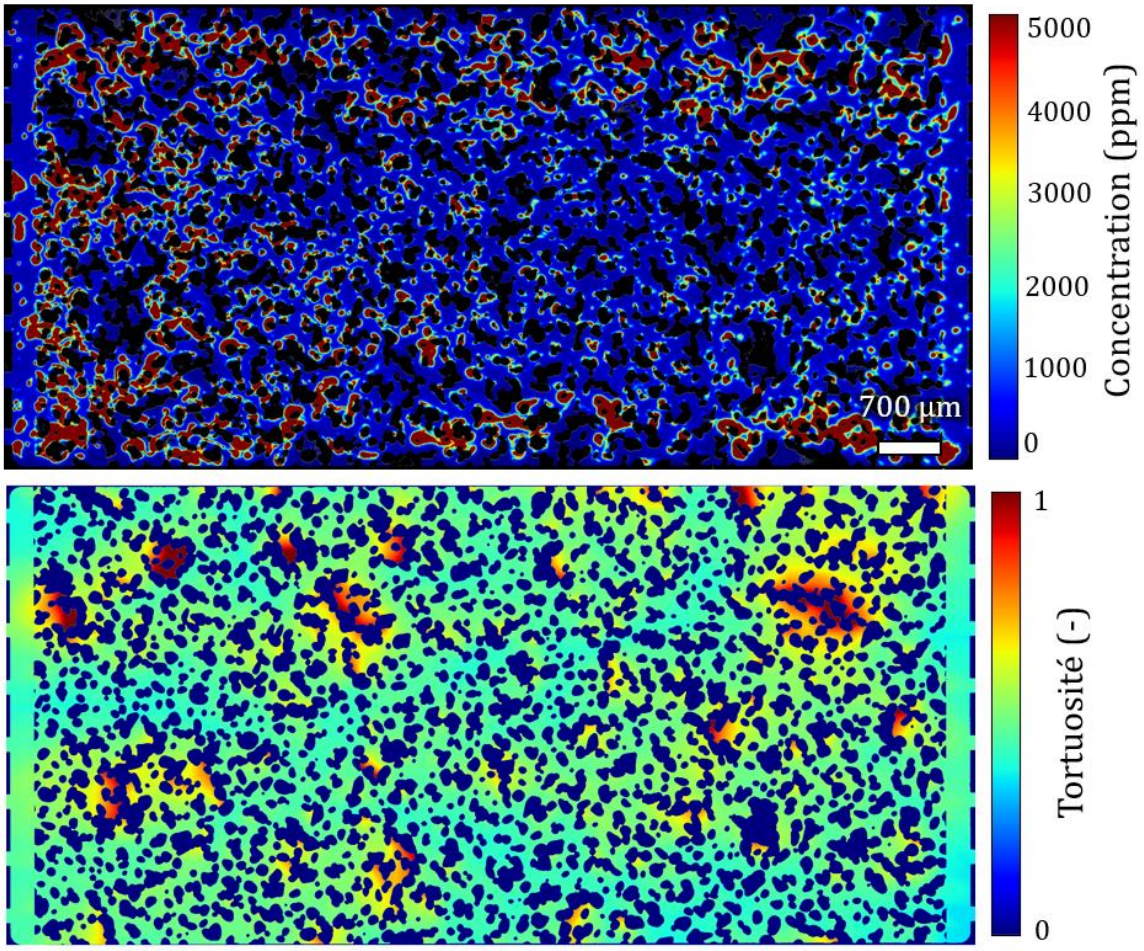


Figure 3.76 - Champ de concentration obtenu à la fin de l'injection PM18 (haut) et carte de la tortuosité du milieu poreux (bas) obtenu à partir de l'algorithme formulé par Chaniot *et al.* (2019).

L'observation des dépôts au sein du milieu poreux à l'échelle globale met en évidence principalement les points suivants :

- Un dépôt concentré sur la première partie du micromodèle qui diminue au fur et à mesure de la progression le long du milieu poreux. Ce résultat est cohérent avec ce qui est rapporté par la littérature sur des milieux 3D (Le Beulze *et al.*, 2023) et 2D (Gerber *et al.*, 2018).

- Une croissance de dépôt au cours du temps qui se traduit par une densification locale accompagnée d'un étalement surfacique progressif.
- La forte influence des facteurs géométriques sur l'écoulement et les schémas de distribution des dépôts.
- Une dynamique importante le long du micromodèle (présence d'agrégats très mobiles) qui ne semble pas pour autant impacter de manière significative le profil global de dépôt le long du micromodèle.

3.1.2 Régimes d'écoulement – Alimentation particulaire différentielle

La simulation numérique du champ de vitesse au sein du milieu poreux G1 effectuée dans le Chapitre 2 (2.2.3 Simulations champ de vitesse) a permis de mettre en évidence la présence de trois types de régions : les zones d'écoulement à vitesse faible ou nulle, les zones intermédiaires (vitesses moyennes) et les chemins d'écoulements préférentiels (zones associées à de fortes vitesses, les plus élevées au sein du milieu poreux). Cette observation est particulièrement importante dans la mesure où elle indique que la circulation du fluide peut être rapide ; l'alimentation particulaire, *i.e.* le nombre de particules arrivant dans la zone considérée, sera ainsi plus importante dans les chemins préférentiels que dans les zones annexes, et le risque de dépôt accru.

Ainsi, selon les régions d'écoulement associées aux trois différentes gammes de vitesse (faible, intermédiaire et forte), les régimes d'écoulement ont été identifiés. Ces régimes semblent dépendre à la fois de la vitesse locale et de la géométrie d'où le choix d'utilisation du nombre de Péclet comme nombre adimensionnel pour caractériser l'écoulement. Par ailleurs, en se basant sur ce nombre, il est possible de s'appuyer sur certains travaux de la littérature qui ont mis en évidence les régimes d'écoulement en fonction du nombre de Péclet noté Pe et calculé selon l'équation 1.24 présentée dans le Chapitre 1 (1.2.3.3 Régimes de dépôt). On rappelle ainsi que :

- Lorsque Pe < 1, le régime est celui de diffusion ;
- Lorsque 1 < Pe < Pe_c^{geom} (nombre de Péclet critique, limite supérieure du régime), le régime est celui de convection-diffusion ;
- Enfin, lorsque Pe > Pe_c^{geom}, le régime est hydrodynamique.

Nous utilisons l'équation 1.28 pour calculer la limite supérieure du régime de convection-diffusion notée Pe_c^{geom}. En basant le calcul sur une valeur moyenne du rayon des grains de la géométrie G1 de 146,25 µm et un rayon des particules injectées égal à 0,5 µm, on obtient $Pe_c^{geom} = 4{,}45 \times 10^6$. Plus le diamètre des colloïdes est important, plus la valeur critique du nombre de Péclet correspondant à la limite supérieure du régime de convection-diffusion diminue (Tableau 3.13).

Tableau 3.13 - Valeurs du Péclet critique calculées pour les particules utilisées dans cette étude (milieu G1).

Rayon moyen grain (µm)	Diamètre particule (µm)	Nombre de Péclet critique (-)
146,25	1	4,45E+06
	1,75	8,31E+05
	4,5	4,89E+04

Ainsi, afin de confirmer ces premières observations sur la présence de différents types de zones d'écoulement, nous avons identifié les régimes d'écoulement associés à ces zones dans le milieu poreux étudié. Etablir une cartographie du nombre de Péclet au sein du milieu poreux nécessite la reconnaissance du grain et de ses dimensions à proximité de l'écoulement local considéré (équation 1.24). Cette implémentation requiert des outils de simulation qui n'ont pu être

mis en place dans le cadre des travaux présentés ici. Cependant, ce calcul a pu être fait manuellement pour différentes régions afin d'évaluer les régimes d'écoulement au sein du milieu poreux. A partir du nombre de Péclet critique et de différents exemples (Figure 3.77(ii)), on montre que les trois régimes coexistent dans le milieu poreux G1 (Figure 3.77(a), (b) et (c)), et ce dès le début de l'injection lorsqu'aucune particule n'est arrivée dans l'espace poreux. Cette observation indique ainsi que l'alimentation particulaire, *i.e.* le nombre de particules arrivant dans chaque zone, est différent. Par conséquence, il apparait cohérent d'émettre l'hypothèse selon laquelle les dépôts subséquents à ces régimes d'écoulement auront des caractéristiques différentes.

Dans les zones de diffusion, le mouvement brownien régit le déplacement des colloïdes. Le dépôt apparait non-cohésif, relativement dispersé (Figure 3.77(a)(iii)). A plus haut nombre de Péclet, les figures de dépôt associées au régime de diffusion-convection apparaissent denses et compactes (Figure 3.77(b)(iii)). Les vitesses d'écoulement sont assez élevées pour garantir une alimentation particulaire suffisante pour la formation de dépôt. Enfin, à très haut nombre de Péclet, au-delà de la limite supérieure du régime de diffusion-convection, l'apport en colloïdes des zones concernées est très important. L'observation du dépôt montre que les figures filamenteuses précédemment observées, qui correspondent à des clusters de particules cohésives, sont majoritairement présentes dans ces zones de régime hydrodynamique, au niveau des corps poreux (Figure 3.77(c)(iii)).

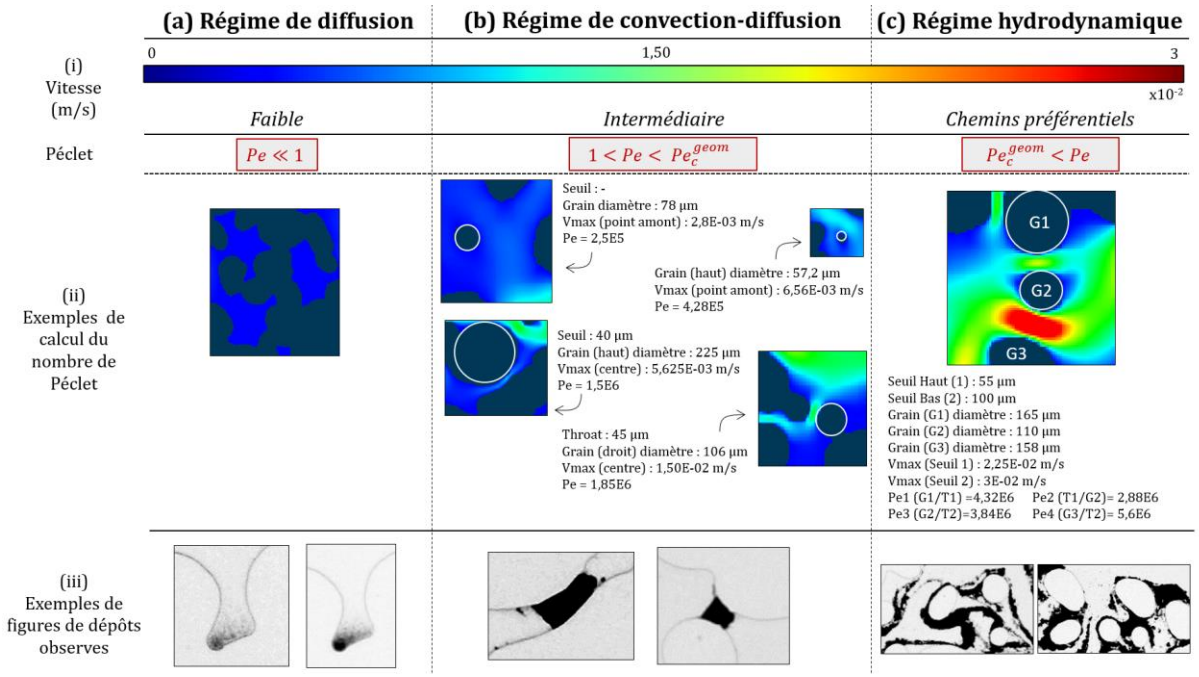


Figure 3.77 - Panorama des régimes d'écoulement et nombres de Péclet associés au sein du milieu poreux G1. Le champ de vitesse est obtenu à partir d'une simulation à débit d'injection Q = 1,5 ml/h. Les limites des régimes sont de simples indicateurs vis-à-vis de l'échelle de vitesse présentée.

La distribution du Péclet montre ainsi que plusieurs zones d'écoulement se côtoient et que ces régions sont associées à des régimes d'écoulement. Ces derniers ne sont pas mutuellement exclusifs et les transitions entre eux sont influencées par des facteurs tels que la vitesse, la viscosité, la géométrie du milieu, la présence ou non de dépôt, *i.e.* les propriétés physiques du fluide et du milieu. Grâce aux simulations du champ de vitesse initial et à l'analyse du réseau poreux, les informations nécessaires à l'obtention de la distribution du Péclet sont connues. L'examen des dépôts formés dans chacune de ces zones montre un lien important entre le régime d'écoulement et les propriétés (densité, forme, taille) des dépôts associés.

3.1.3 Mise en évidence des sites de dépôt

La disposition aléatoire des grains dans le milieu poreux entraine à une distribution complexe des lignes de courant dans leur voisinage. En effet, l'hétérogénéité d'un milieu poreux et la tortuosité qui lui est inhérente génèrent des régions de déformation dominantes ou de stagnation, dans lesquelles les particules vont pouvoir être accumulées/dispersées. Plusieurs zones de piège peuvent ainsi être définies à proximité des collecteurs, où la vitesse d'écoulement est beaucoup plus faible et où une surconcentration des particules est possible.

À l'approche d'un grain, la trajectoire d'une particule peut s'écarter des lignes de courant en raison d'un équilibre différent des forces en jeu. En effet, la traînée visqueuse et les forces d'inertie tendent à faire dévier les particules de leurs trajectoires initiales. Les trajectoires du fluide porteur, *i.e.* l'eau dans notre étude, et des particules ne sont alors pas toujours parallèles. Ainsi, en plus de l'interception, les particules peuvent se retrouver dans les pièges par diffusion brownienne, ou sédimentation gravitationnelle. Les colloïdes arrivent dans les zones de piégeage à proximité des collecteurs selon cinq configurations identifiées : dans le sillage de grains solides, aux points de stagnation, dans les régions sans écoulement, à la confluence de deux voies d'écoulement ou à l'entrée d'un seuil de pore étroit. La Figure 3.78 met en évidence ces régions, chacune associée à l'un des cinq modèles différents d'accumulation de particules.

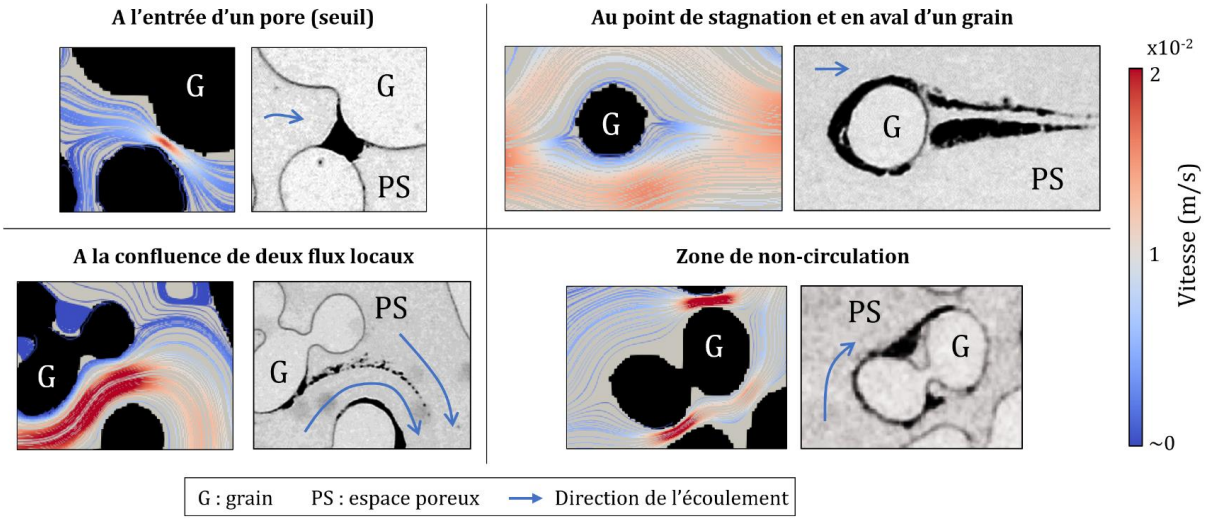


Figure 3.78 - Lignes de courant à proximité des zones de collection, établies par simulation numérique, et images en niveau de gris de ces zones où des dépôts ont pu être observés (en noir). Les lignes de courant permettent d'apprécier les variations très localisées de la vitesse à proximité des grains.

Les simulations numériques permettent ainsi de montrer très clairement comment des particules inertes transportées par un écoulement peuvent se trouver piégées à l'échelle locale par des zones situées à proximité des grains (Kokubun *et al.*, 2019). L'étude expérimentale menée dans le cadre de nos travaux permet de valider les prévisions numériques. En particulier, l'imagerie par fluorescence se révèle ici être un précieux outil pour détecter l'accumulation progressive de particules dans ces zones de piège, cette croissance ne pouvant être détectée par imagerie plus classique par manque de résolution. La figure Figure 3.79 illustre ainsi les cinq configurations mentionnées précédemment.

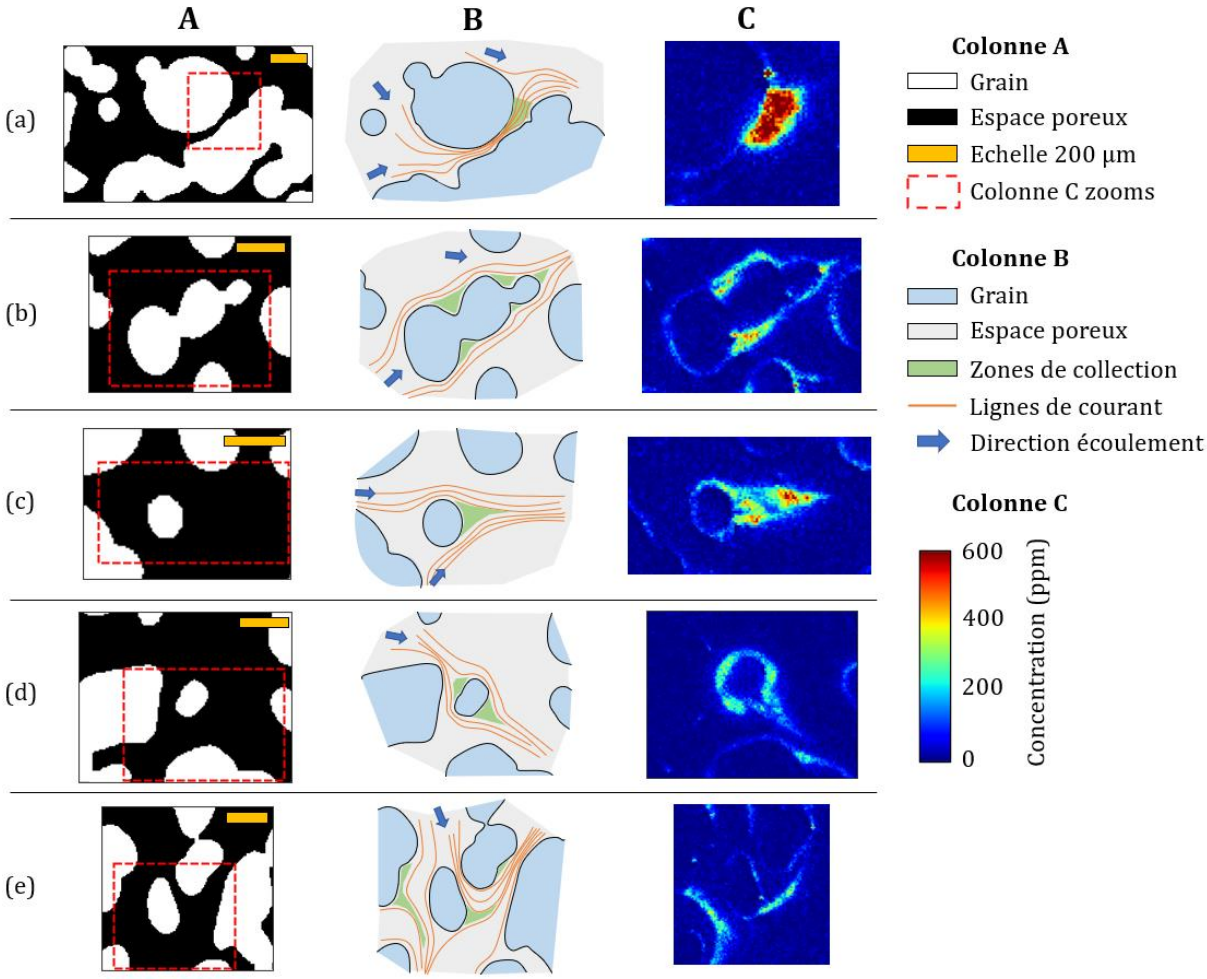


Figure 3.79 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux zones d'observations LIF considérées dans la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations du champ de concentration local au niveau des pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur (positions des grains dans l'encadré rouge de la colonne A, même ligne). Les images sont issues de l'injection PM21. (a), (b), (c), (d) et (e) correspondent respectivement aux pièges à l'entrée d'un pore étroit, dans une zone de flux faible, en aval des grains, au point de stagnation en amont d'un grain et à la confluence de deux écoulements locaux respectivement.

A l'exception de la configuration à l'entrée du pore, les particules peuvent s'accumuler dans ces régions de très faible vitesse d'écoulement sans perturber la distribution globale du flux particulaire dans le milieu poreux. Toutefois, si l'accumulation en colloïdes est suffisamment importante, les structures en croissance peuvent alors modifier les conditions d'écoulement et provoquer une redistribution locale des lignes de courant et de la pression. Ce transfert de l'écoulement dans des pores adjacents peut par conséquence diriger une nouvelle accumulation de particules et déstabiliser des régions adjacentes ; les zones de pièges, initialement de très faible vitesse d'écoulement, peuvent devenir des zones d'écoulement. Et par conséquence, les dépôts initialement accumulés dans ces zones peuvent être entrainés dans d'autres régions et passent ainsi de dépôts immobiles sans danger particulier à des dépôts mobiles avec un risque plus important de colmatage des seuils de pores situés le long de leur trajectoire.

3.1.4 Mise en évidence d'une agrégation hydrodynamique

Les résultats expérimentaux obtenus sur toutes les injections réalisées dans le cadre de cette étude mettent en évidence la présence de nombreux clusters de particules de taille importante dans des aires très précises, référés ici en tant que pièges géométriques (Figure 3.78 et Figure 3.79). Ceci a été observé quel que soit la nature de la particule en suspension (polystyrène avec groupement amidine, polystyrène avec groupement carboxyle, argile) ou les conditions opératoires (débit, concentration). La figure suivante (Figure 3.80) présente ainsi un ensemble d'images issues de différentes configurations opératoires où de nombreux agrégats cohésifs et irréversibles (une injection d'eau milli-Q ne les casse pas) ont été formés. Ce panorama permet de montrer l'importante taille de ces agrégats au sein de l'espace poreux.

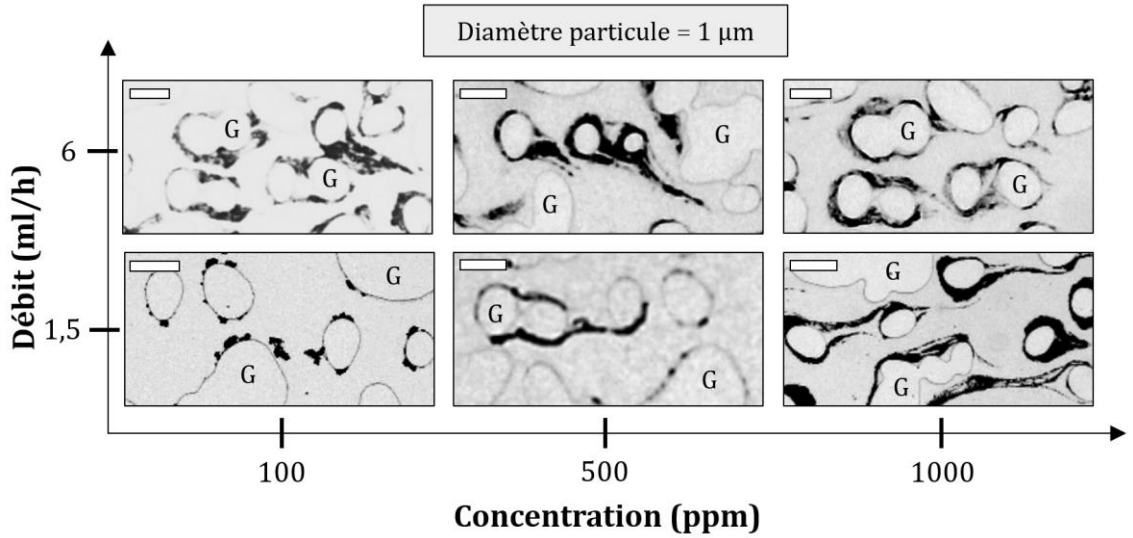


Figure 3.80 - Panorama d'agrégats formés au sein du milieu poreux G1 pour différentes conditions d'injection (débit et concentration de la suspension de polystyrène carboxylé). La barre d'échelle correspond à 200 µm. G indique un grain.

Cependant, rappelons que la formation de ces clusters cohésifs et de forme filamenteuses est très surprenante dans nos conditions d'injection. En effet, la perméabilité très élevée des milieux poreux considérés ainsi que les propriétés des suspensions injectées (relativement diluées, forte répulsion entre particules, tailles de particule négligeable devant la taille des seuils de pores) ne sont pas favorables à la formation de tels clusters. Les particules sont censées se repousser entre elles, ce qui exclut un dépôt favorisé par les forces surfaciques comme largement rapporté par la littérature, et le milieu très perméable dans lequel elles circulent n'est pas censé les retenir par filtration.

Une question s'impose alors ici : quel mécanisme provoque la formation de tels clusters ?

Le choix des conditions d'injection, et notamment le débit d'injection, est associé à des vitesses interstitielles au sein du milieu poreux qui peuvent être très élevées mais néanmoins représentatives de celles de la géothermie (2.4.3 Choix des conditions expérimentales d'injection). Associé à un champ de vitesse hétérogène dû à la géométrie complexe du milieu poreux, ce choix de débit, qui est une particularité de nos travaux, implique la présence de zones dans lesquelles le fluide est localement soumis à de très fortes contraintes de cisaillement. En effet, toute différence de vitesse au sein d'un fluide entraîne des contraintes de cisaillement qui correspondent aux contraintes mécaniques appliquées parallèlement à la section d'une particule. Cependant, au regard des faibles concentrations des suspensions injectées, un effet du cisaillement sur la viscosité du

fluide semble exclu. Nous avons néanmoins montré que l'agencement aléatoire des grains au sein de l'espace poreux permet la création de pièges pour particules qui peuvent s'y retrouver piégées si l'alimentation particulaire locale le permet. La présence de ces zones de collection montre ainsi que la concentration locale en particules peut augmenter de façon significative alors que le cisaillement local est en permanence présent.

Ainsi, progressivement, les conditions associées au système colloïdal peuvent varier localement au sein du milieu poreux et devenir celles d'un régime concentré où les concentrations en particules sont suffisantes pour avoir une incidence sur l'évolution de la viscosité lorsque le système est soumis à un cisaillement important et régulier. Finalement, l'injection de la suspension de particules au sein du milieu poreux est associée à la mise en place locale d'un environnement fortement peuplé en colloïdes et soumis à des contraintes mécaniques fortes. En effet, l'étude des différents régimes d'écoulement a permis de montrer que, localement, de très fortes vitesses d'écoulement existent ($3x10^{-2}$ m/s versus $1,2x10^{-2}$ m/s en moyenne pour la géométrie G1).

Nous nous sommes alors intéressés à l'effet du cisaillement sur les suspensions fortement concentrées. De nombreux travaux portant sur la thématique de l'agrégation réalisés avec des suspensions en bulk, *i.e.* sans injection en milieu poreux, montrent ainsi que dans le cas où une suspension à fraction volumique importante est soumise à un cisaillement fort, une cinétique d'agrégation auto-accélérée apparait (Figure 3.81). Pour chaque expérience (fraction volumique particulaire et taux de cisaillement supérieurs à des valeurs critiques données), on observe un net et rapide changement de la viscosité du fluide après une longue période où la suspension est soumise à un cisaillement important.

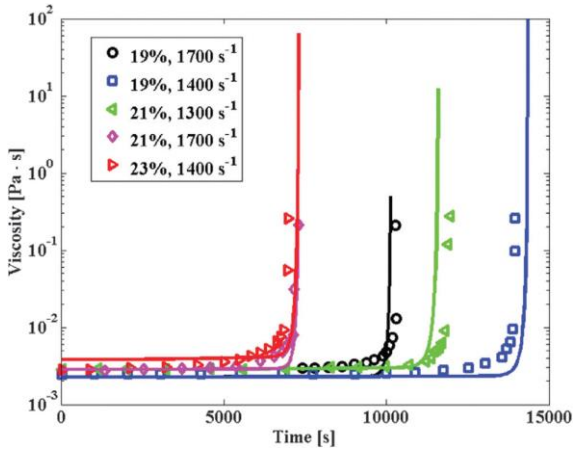


Figure 3.81 - Profils d'évolution de la viscosité de la suspension en fonction du temps, pour quatre différents taux de cisaillement et fraction volumique particulaire, tel qu'indiqué dans la légende. Les points correspondent à des données expérimentales tandis que les lignes correspondent à des prédictions de modèle (Lattuada *et al.*, 2016).

Ces travaux montrent que l'agrégation ne peut être induite qu'à la condition de réunir les trois éléments suivants : une fraction solide importante (concentration de la suspension forte en particules), un cisaillement fort et une durée sous cisaillement continu suffisante. Ce résultat est vérifié pour différents systèmes colloïdaux et protéiques stabilisés par la charge (Zaccone *et al.*, 2009, 2011 ; Lattuada *et al.*, 2016). Ces études montrent également que la cinétique d'agglomération est caractérisée par une croissance initiale très lente, contrôlée par la répulsion entre particules. Durant cette première phase, les particules s'agrègent lentement pour former des amas dont la réactivité augmente avec leur croissance en taille. Lorsque leur taille atteint un seuil critique, une croissance très rapide s'ensuit, où les forces de cisaillement sont capables de surmonter la barrière énergétique entre les particules. Cette étape se termine lorsqu'un équilibre dynamique entre l'agrégation induite par le cisaillement et la rupture des clusters est atteint.

Ce phénomène d'agrégation induit par le cisaillement a été rapporté en bulk mais également dans divers bioréacteurs et chambres de mélange à haut cisaillement (Lim *et al.*, 2019 ; Lachin *et al.*, 2017) où l'écoulement est turbulent. En revanche, en milieu poreux, les modèles de filtration classiques supposent un espace poreux homogène et ignorent largement l'agrégation des colloïdes. Il existe par conséquent très peu d'études et données qui prouvent la présence de ce phénomène à l'échelle du pore. Certains, comme Legg *et al.* (2014) supposent que les particules se pré-agrègent dans le fluide en bulk et se déposent ensuite sur les collecteurs sous forme d'agrégats épars (faible densité). Delouche *et al.* (2020) ont également montré que les agrégats sont probablement formés au début de la synthèse en bulk des particules, lorsque par exemple les particules de PMMA semi-stables croissent rapidement et rencontrent d'autres particules de ce type. De manière générale, l'opacité des milieux réels a été un frein dans la caractérisation des mécanismes locaux par lesquels ces agrégats se forment. Ceci explique le fait que la majorité des études s'intéressent principalement au comportement des agrégats une fois formés. Par exemple, une étude récente (Perez *et al.*, 2020) a permis de mesurer, grâce à des expériences en colonnes imagées par tomographie à rayons X à haute résolution, la taille des agrégats et de décrire leurs distributions morphologique et spatiale. Ces distributions sont la résultante d'un équilibre entre érosion et restructuration sous écoulement.

Dans le cas de notre étude, afin de vérifier si cette agrégation hydrodynamique est possible dans nos conditions opératoires, le bilan des forces a été déterminé et analysé. Le calcul des forces DLVO et des forces hydrodynamiques telle que la force de traînée, montre que les répulsions interparticulaires peuvent être surmontées. En effet, l'équilibre local des forces peut basculer en faveur de l'un ou de l'autre (Figure 3.82). Si l'écoulement local est lent, les répulsions entre particules sont trop fortes. Cependant, si les vitesses sont élevées, *i.e.* $3x10^{-2}$ ou $1,2x10^{-1}$ $m.s^{-1}$ (vitesse maximale selon le débit d'injection, obtenue par simulation numérique du champ de vitesse), toutes les conditions permettant une agrégation hydrodynamique sont réunies : la concentration en particules est localement très élevée et les forces répulsives interparticulaires peuvent être surmontées, le cisaillement étant important.

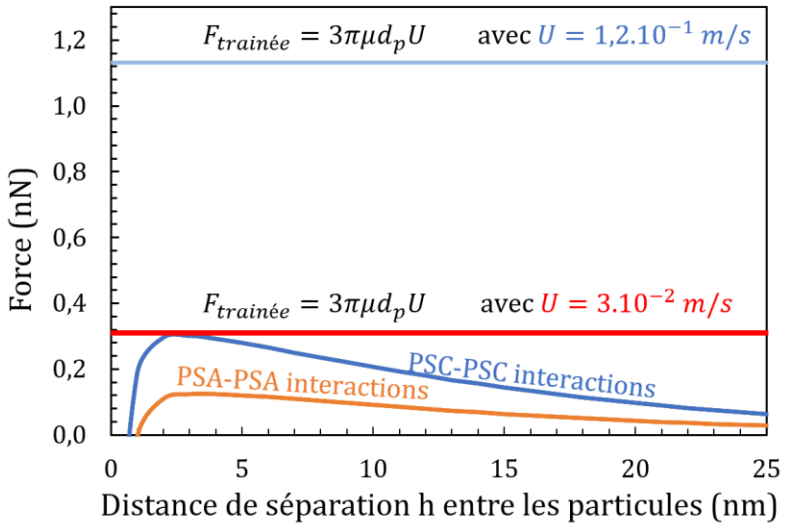


Figure 3.82 - Calcul des forces DLVO et forces de traînée associées à deux vitesses d'écoulement différentes (vitesse maximale associée à chacun des débits d'injection *i.e.* Q = 1,5 ou 6 ml/h). Le diamètre particulaire considéré est 1 µm. Ce bilan a été déterminé pour les particules de polystyrènes carboxylés (PSC, charges négatives) et amidines (PSA, charges positives).

Le calcul des forces DLVO à de plus grandes distances de séparation entre particules ne montre pas la présence d'un second puits de potentiel (minimum secondaire) dans lequel les

particules auraient pu s'agréger. Ce calcul apparait cohérent avec les mesures de potentiel zêta dans la mesure où l'augmentation de la charge de surface entraine la diminution de la profondeur de ce second puits de potentiel. Or dans le cas de notre étude, ces valeurs de charges de surface sont fortes (-60 mV pour les polystyrènes carboxylés et +40 mV pour les polystyrènes amidines). Ces calculs et mesures indiquent que l'agrégation est forte/irréversible, contrôlée par les forces de Van der Waals. Les clusters de particules ne peuvent être rompus spontanément.

Nos observations ainsi que ce bilan de force montrent alors une cohérence avec les données de la littérature disponibles sur l'évolution de la viscosité d'une suspension concentrée et citées ci-dessus. Ils confirment qu'une agrégation induite par cisaillement est à l'origine des dépôts observés lors de nos expériences d'injection.

Finalement, le milieu poreux définit des zones permettant l'augmentation locale de la fraction particulaire. Ces aires de stockage sont soumises à un cisaillement local important qui permet d'induire la formation d'agrégats. Ce phénomène d'agrégation hydrodynamique, mis en évidence par nos travaux, fortement favorisé par les conditions de la réinjection de fluides géothermiques et notamment les forts débits d'injection, présente un risque majeur qu'il faut bien anticiper et contrôler. En effet, ces agrégats irréversibles, qui peuvent se former même lorsque les fluides sont finement filtrés et très faiblement concentrés en particules, peuvent être facilement entrainés en profondeur par l'écoulement.

3.2 Mécanismes de colmatage

L'étude du milieu poreux a permis d'identifier les zones de stockage où l'augmentation locale de la fraction particulaire peut être importante. Soumises à un fort cisaillement, les particules accumulées dans ces zones de pièges peuvent subir une agrégation hydrodynamique permettant la formation de clusters cohésifs au sein du milieu poreux. Afin de poursuivre l'analyse sur les dépôts, l'identification des différentes formes qu'ils peuvent acquérir et appréhender leurs effets sur l'endommagement du milieu poreux, la compréhension des mécanismes de colmatage est essentielle. Les deux mécanismes identifiés dans le cadre de l'étude expérimentale sont présentés dans les sections suivantes :

- Mécanisme 1 : fermeture des seuils de pore par un dépôt multicouche progressif et stable ;
- Mécanisme 2 : tamisage par déplacement d'agrégats (dépôts instables).

3.2.1 Mécanisme 1 : fermeture des seuils de pore par un dépôt multicouche progressif et stable

Dans le cas d'une accumulation au seuil d'un pore, l'écoulement du fluide peut être considérablement modifié en cas de colmatage partiel ou total. L'étude de la formation des dépôts dans les seuils de pore permet d'identifier les caractéristiques principales associées à ce colmatage. Afin d'étudier ce mécanisme, nous avons analysé les profils construits le long de la direction perpendiculaire à l'écoulement. Un exemple est présenté à la figure suivante (Figure 3.83).

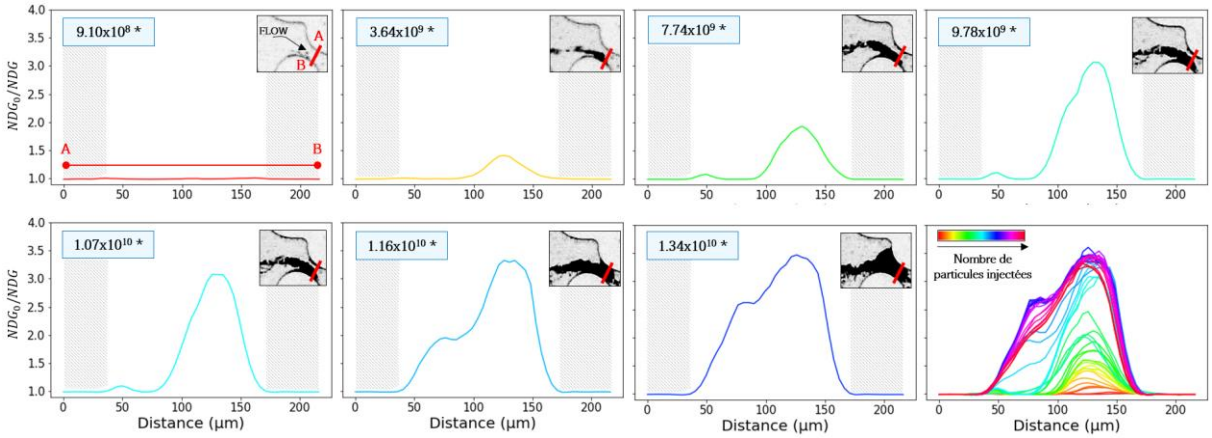


Figure 3.83 - Profils de croissance d'un dépôt au seuil d'un pore (expérience M12, concentration de la suspension égale à 1000 ppm et débit d'injection Q = 1,5 ml/h). Pour chaque profil, le nombre de particules injectées est indiqué (*) et une image correspondante du seuil de pore est affichée. La flèche noire indique la direction du flux et la marque rouge indique la localisation exacte du profil tracé. Les zones grises correspondent aux phases solides (grains). La dernière figure présente les multiples profils tout au long du processus d'injection.

Les profils, appuyés par les images correspondantes, indiquent que la croissance des dépôts se produit sur les surfaces collectrices de part et d'autre du seuil de pore et qu'elle est influencée par la direction de l'écoulement et les lignes de courant locales. En effet, lors de la phase initiale, les particules sont capturées à l'interface pore/paroi d'un seul grain (grain B). Dans un deuxième temps, la construction du dépôt se produit également sur le grain opposé. Progressivement, le seuil de pore est fermé, sans déstabilisation du dépôt.

L'imagerie par fluorescence permet également d'observer l'accumulation progressive de particules dans le seuil de pore étroit qui constitue le piège où la fraction volumique locale devient très importante (Figure 3.84). Le champ de concentration (Figure 3.84(b)) montre que celle-ci peut atteindre très localement plus de 600 ppm, soit 6 fois plus que la concentration de la suspension injectée. Les profils, appuyés par l'imagerie, indiquent que la croissance du dépôt se produit dans un premier temps sur la surface collectrice du grain supérieur et se poursuit dans un second temps de façon unidirectionnelle (Figure 3.84(c)). Progressivement, le seuil de pore est colmaté. L'allure des profils ainsi que leur croissance invariable indiquent que le développement de ce dépôt est stable dans la mesure où il n'est pas déplacé ou détruit par l'écoulement qui se poursuit. L'évolution moyenne de la concentration (Figure 3.84(d)) permet de confirmer cette caractéristique du mécanisme avec une progression claire et nette du dépôt dans ce seuil de pore au cours de l'injection. Finalement, le seuil est fermé par cet agrégat (Figure 3.84(e)), l'écoulement par ce chemin n'est plus permis et affecte ainsi directement la perméabilité du milieu poreux.

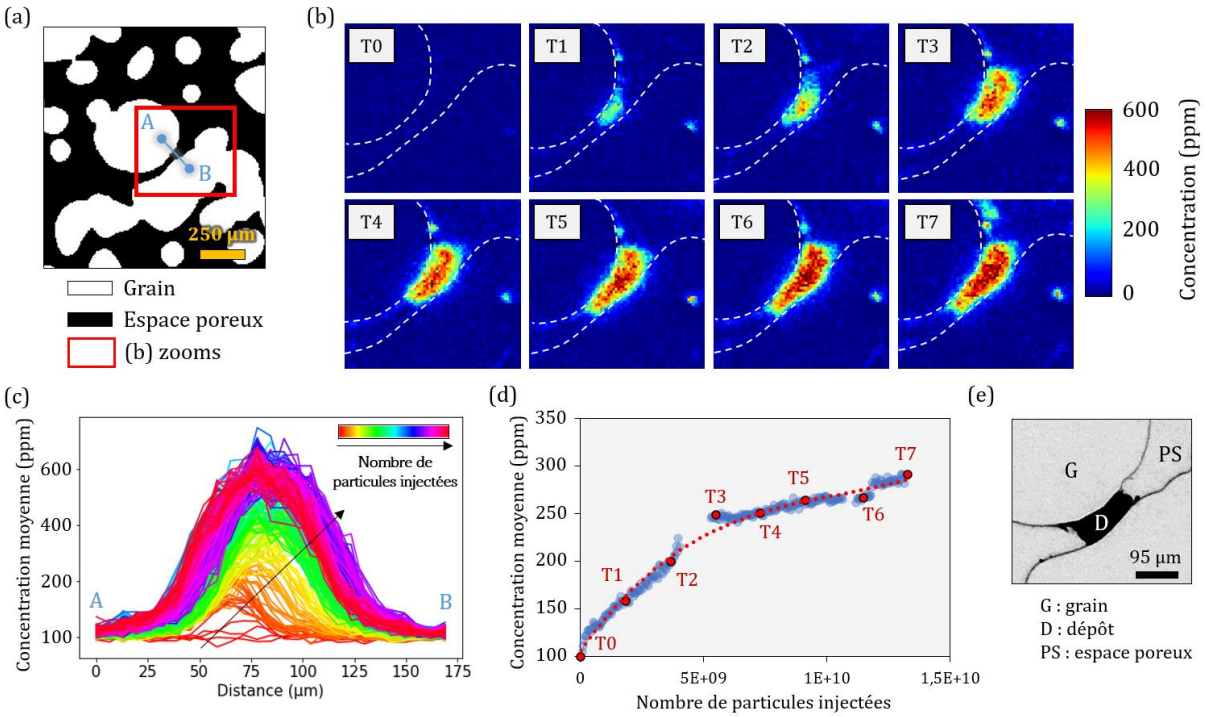


Figure 3.84 - (a) Environnement local du seuil de pore considéré avec en encadré rouge l'imagerie présentée en (b). (b) Champs de fluorescence associé à la surconcentration progressive de la zone de piège. Les contours des grains sont indiqués en blanc pointillé. (c) Profils de remplissage établis le long de la direction perpendiculaire à l'écoulement (A et B sont indiqués en (a)). (d) Evolution de la concentration moyenne au sein de la fenêtre correspond aux images présentées en (b) au cours de l'injection de la suspension de particules (expérience PM21). (e) Imagerie en NDG (expérience M9) permettant de montrer le résultat du colmatage stable du seuil par un agrégat dense et compact.

Ce mécanisme de colmatage n'est pas spécifique à un débit d'injection ou une concentration de la suspension de particles ; le développement d'un dépôt multicouche menant à la fermeture progressive mais pérenne d'une constriction a pu être observé au niveau de nombreux seuils de pores dans le cadre d'injections aux conditions opératoires différentes (Figure 3.85(a)). Chaque série permet d'observer la construction progressive d'un dépôt multicouche au niveau du seuil de pore considéré ; le développement du bouchon peut être fait sur les surfaces collectrices de part et d'autre du seuil. Un agrégat se développe progressivement alors sur les deux grains et peut, avec l'injection en continu, aboutir à la réduction complète de la constriction. Les cinétiques de croissance des dépôts pour chacune des zones présentées montrent une évolution sigmoide (Figure 3.85(b)) : une première phase de latence qui laisse place à une phase exponentielle, la période de croissance importante du dépôt, et enfin une phase stationnaire/de plateau où le seuil est fermé, le dépôt ne progresse plus. La phase exponentielle des sigmoides peut être courte, indiquant que la croissance du dépôt peut être rapide (courbe S4, $1x10^9$ particules injectées dans le milieu poreux pendant la période exponentielle) ou peut être très étalée, montrant alors que le développement du dépôt peut être lent (courbe S6, $\sim 3x10^{10}$ particules injectées dans le milieu poreux durant cette phase). La comparaison des cinétiques associées à différentes conditions expérimentales suggère que la construction du dépôt multicouche est plus rapide lorsque le débit d'injection est plus faible ; toutes les cinétiques ont atteint leur phase stationnaire dans le cas où le débit est le plus faible, *i.e.* Q = 1,5 ml/h (S1, S2 et S3). En effet, à $2x10^{10}$ particules injectées dans le milieu poreux, tous les seuils des séries S1 à S3 sont fermés de façon pérenne tandis que ce n'est pas le cas des configurations S5 et S6.

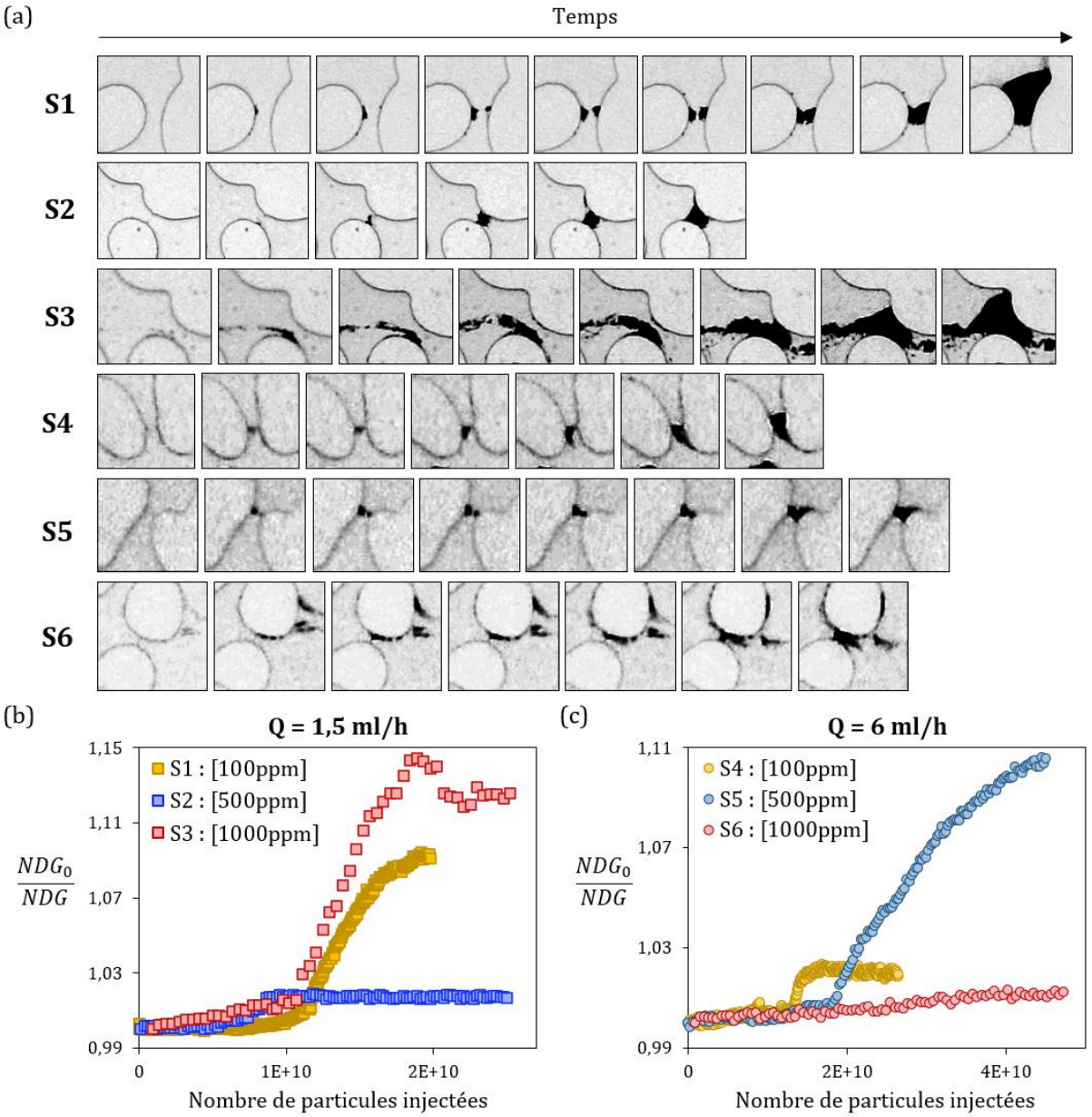


Figure 3.85 - (a) S1 à S6 présentent des séries d'images en niveau de gris de différents seuils de pore colmatés progressivement par le dépôt multicouche de particules aux parois. (b) et (c) Cinétiques du niveau de gris moyen normalisé des fenêtres d'images des séries S1 à S3 (expériences M9, M15 et M12 respectivement) et des séries S4 à S6 (expériences PM120, PM119 et PM118 respectivement).

Enfin la dernière caractéristique relevée et associée à ce mécanisme correspond à la localisation dans le milieu poreux au niveau de laquelle il occurre. En effet, ce mécanisme de construction particulaire progressif a lieu dans des espaces de vitesse d'écoulement intermédiaire. La Figure 3.86 présente les zones (en rouge) de construction particulaire progressive présentées précédemment (Figure 3.85). Les fenêtres de simulation de vitesse d'écoulement permettent de montrer que ces zones sont systématiquement situées à proximité immédiate d'une zone de chemin préférentiel, où les vitesses sont fortes, sans pour autant être directement situées dans ces « artères » principales qui constituent des voies privilégiées d'écoulement des particules au sein du milieu poreux. L'alimentation en particules est ainsi suffisante pour assurer un apport en colloïdes permettant la construction du bouchon et, dans la mesure où les vitesses sont intermédiaires, aucune déstabilisation du dépôt multicouche n'a lieu.

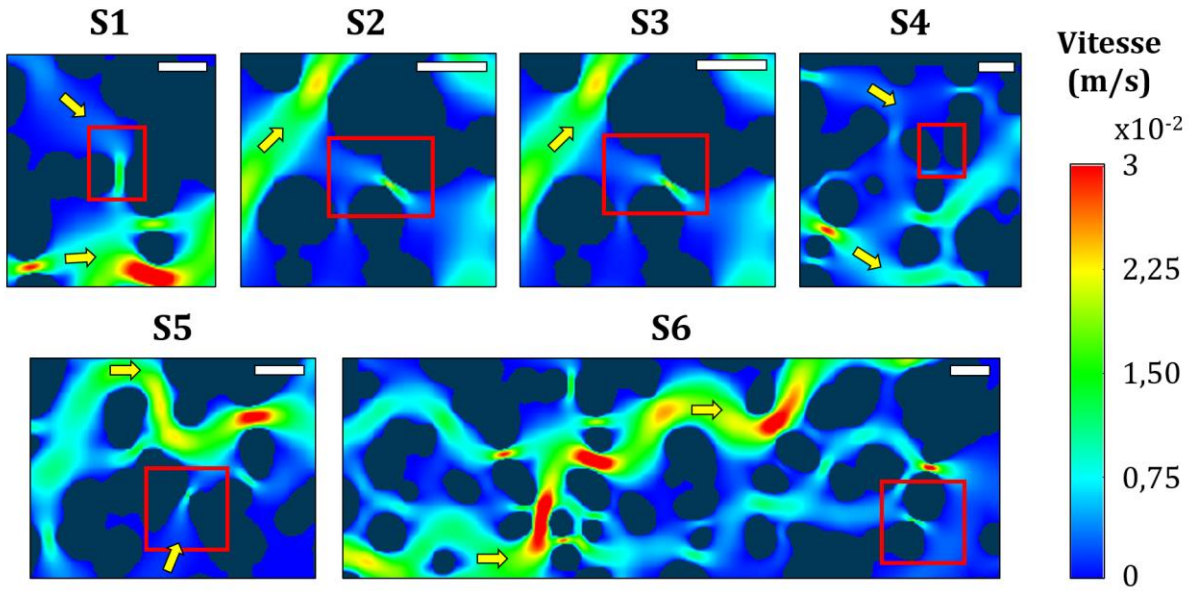


Figure 3.86 - Champ de vitesse des zones d'écoulement présentées à la figure précédemment (S1 à S6 sont indiqués par les rectangles rouges respectivement). La simulation est réalisée pour Q = 1,5 ml/h. Les flèches jaunes indiquent le sens de l'écoulement et l'échelle correspond à 200 µm pour l'ensemble des zones d'observation.

L'analyse menée sur la taille caractéristique des seuils de pores colmatés au moyen de ce premier mécanisme de fermeture progressive montre que celle-ci correspond systématiquement à la plus petite largeur de seuils rencontrée au sein du milieu poreux, soit 40 µm. Ainsi chaque image du panorama présenté en Figure 3.87 correspond à un seuil de 40 µm de largeur (2P avec P la profondeur). Par ailleurs, l'observation des seuils permet de montrer que certaines constrictions sont identiquement concernées par ce dépôt dense et compact. Les séries d'images {1, 7, 18, 23}, {8, 10, 13, 19, 26}, {11, 20, 25}, {5, 15, 24}, {22, 27} et {4, 17} correspondent ainsi aux mêmes seuils colmatés selon des conditions d'injection différentes (concentration initiale et débit) indiquées par la figure.

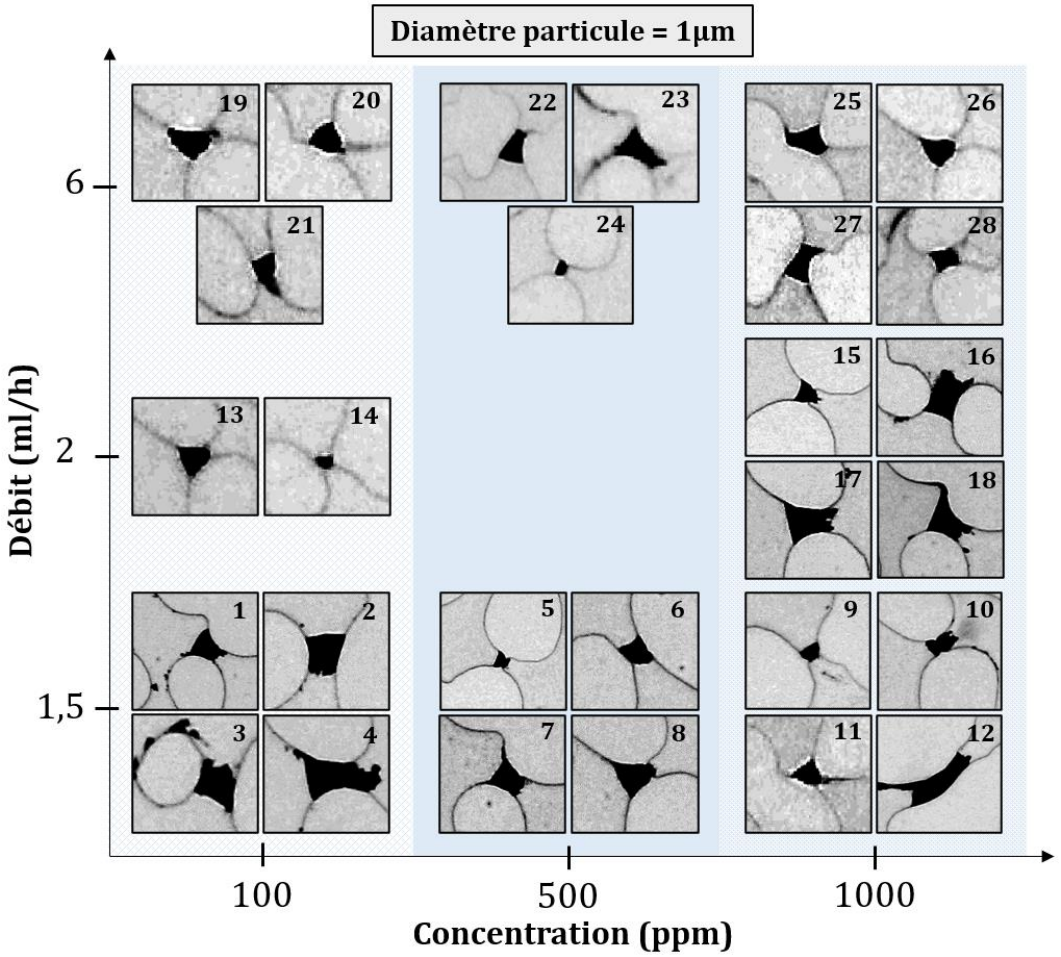


Figure 3.87 - Panorama de seuils de pores colmatés dans le cadre d'injections réalisées selon différentes conditions expérimentales (débit d'injection et concentration de la suspension).

En résumé, le premier mécanisme de colmatage présente quatre caractéristiques principales précisées ici :

- Il correspond à la fermeture progressive mais stable d'un seuil par construction d'un dépôt multicouche très dense ;
- Il se produit quel que soit le débit d'injection ou la concentration initiale de la suspension injectée ;
- Les seuils colmatés sont systématiquement situés dans des zones à vitesse d'écoulement intermédiaire où le nombre de Péclet correspond à celui d'un régime d'advection-convection ;
- Les seuils colmatés par ce premier mécanisme correspondent à ceux dont la largeur est telle que le rapport T/C est le plus faible du milieu poreux, *i.e.* 40.

3.2.2 Mécanisme 2 : tamisage par déplacement d'agrégats (dépôts instables)

Dans les cas où l'accumulation préférentielle de particules se produit dans les zones pièges à proximité des collecteurs, un examen attentif de la dynamique locale révèle l'apparition de l'arrachement (« stripping ») comme phénomène associé à l'écoulement. Il s'agit d'un phénomène qui ne concerne pas les dépôts stables décrits ci-dessus mais plutôt les agrégats formés ailleurs dans le milieu poreux.

En effet, une fois la formation d'un agrégat achevée, celui reste soumis à un cisaillement important dans la mesure où l'écoulement se poursuit au sein du milieu poreux. Le cluster de particules peut alors être entrainé par le flux, érodé de sa position initiale au niveau du piège, et transporté plus en aval. La figure suivante (Figure 3.88) illustre ce phénomène local d'érosion pouvant entrainer le déplacement d'agrégats au sein du milieu poreux. L'imagerie par fluorescence (Figure 3.88(c)) illustre la cyclicité éventuelle que peut acquérir ce processus : le piège est progressivement rempli en particules (Figure 3.88(c), T0 à T3), un cluster de taille importante se forme par agrégation hydrodynamique, celui-ci est arraché et transporté plus en aval (Figure 3.88(c), T4) puis le cycle recommence (Figure 3.88(c), T5 à T7) tant que les conditions locales de l'écoulement le permettent. En effet, si un seuil adjacent à celui considéré est colmaté de façon pérenne, le flux de tout l'environnement local peut être perturbé et l'apport particulaire de la zone de piège arrêté. Ce processus d'érosion n'est donc pas nécessairement itératif. Par ailleurs, bien que l'agrégat formé constitue un ensemble cohésif, certaines parties du dépôt ne sont pas emportées par l'écoulement. Les ruptures abruptes de pente (Figure 3.88(d)) correspondent aux périodes d'érosion (transitions T3-T4, T7-T8). Toutefois, l'observation des champs de concentration associée à la tendance nette d'augmentation de la concentration moyenne au cours de l'injection indique que certaines parties du dépôt ne sont pas déstabilisées et emportées par arrachement.

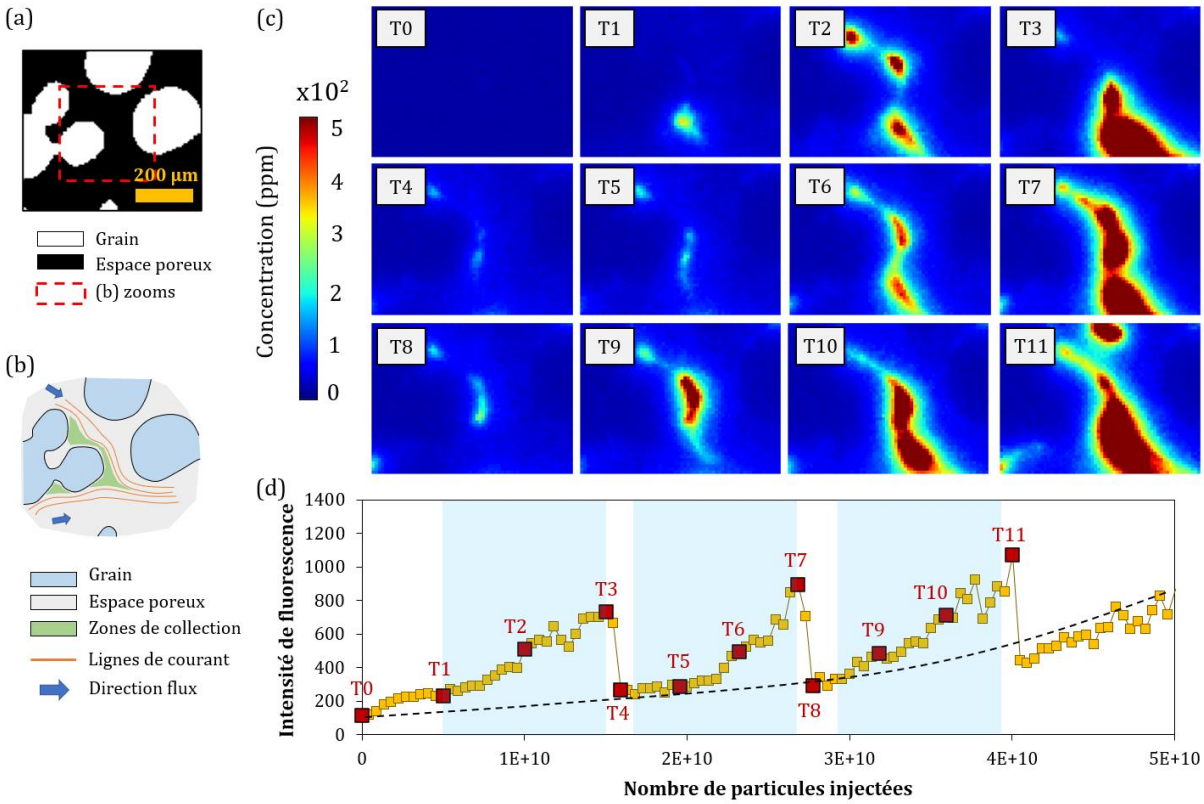


Figure 3.88 - (a) Image binarisée de l'environnement proche de la zone d'écoulement étudiée. (b) Représentation schématique de l'écoulement local et du piège considéré. (c) Champs de concentration successifs illustrant le phénomène d'arrachement après l'accumulation et l'agrégation hydrodynamique de particules dans la zone de piège (expérience PM18). (d) Evolution de la concentration moyenne au sein de la zone (c) au cours de l'injection.

Une fois la formation des agrégats achevée, et lorsque l'écoulement local induit des phénomènes hydrodynamiques d'érosion, les clusters alors transportés peuvent arriver dans certains seuils de pore. Le colmatage par tamisage, lorsqu'un agrégat filamenteux circule au sein du milieu poreux, n'est alors pas systématique. Sa forme allongée cohésive lui permet de simplement draper des collecteurs/grains situés dans la direction de l'écoulement (Figure 3.89(a)). Dans ce cas,

l'agrégat déplacé ne représente pas un élément préjudiciable à la perméabilité du milieu, mais seulement un facteur de déstabilisation du système : la zone initiale de formation de l'agrégat est dégagée, facilitant l'écoulement, mais plus en aval, l'inverse se produit avec un encombrement plus important de l'espace poreux disponible au flux.

Néanmoins, si la taille de l'agrégat est supérieure à celle de la constriction (T/C<1), le déplacement d'un agrégat peut entrainer la fermeture complète du seuil par simple exclusion de taille (Figure 3.89(b)). Dans ce deuxième cas de figure, le cluster représente un élément bien plus perturbateur pour l'écoulement de la suspension au sein du milieu poreux ; le seuil est colmaté, le fluide n'empreinte plus cette voie, entrainant ainsi une réduction de la perméabilité.

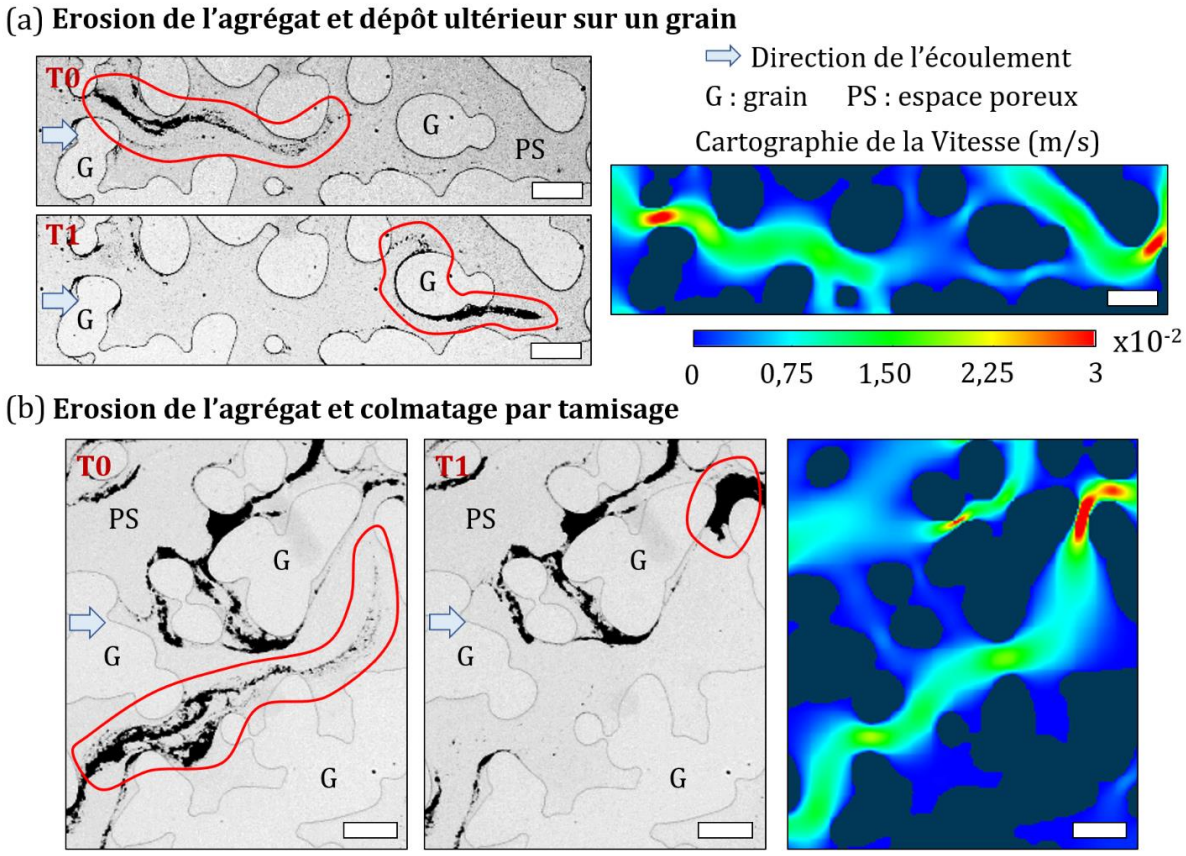


Figure 3.89 - Observations expérimentales (gauche) et simulations numériques du champ de vitesse (droite) illustrant le phénomène d'érosion : (a) dépôt plus en aval ou (b) colmatage ultérieur d'un seuil de pore (expérience M12 pour les deux cas). L'intervalle d'acquisition entre T0 et T1 est 3 min pour (a) et (b) et la barre d'échelle représente 200 µm. En rouge sont encadrés les agrégats déplacés.

De façon analogue au premier mécanisme identifié, ce processus de colmatage n'est pas spécifique à un débit d'injection ou une concentration de la suspension de particles ; dès lors qu'un agrégat est formé dans un piège à proximité immédiate d'un collecteur, celui-ci peut être soumis à un ré-entrainement hydrodynamique. Cette caractéristique appuie les travaux antérieurs sur la problématique (Bizmark *et al.*, 2020) et souligne l'importance des interactions hydrodynamiques agrégat-flux en relation avec les propriétés géométriques du milieu.

Enfin, le dernier mais néanmoins important élément associé à ce deuxième mécanisme de colmatage correspond aux zones dans lequel il a lieu. Le fonctionnement intrinsèque de ce processus nécessite la présence d'importantes forces hydrodynamiques, dans un premier temps pour assurer un apport particulaire suffisant à la construction d'agrégats et dans un second temps, pour éroder et ré-entrainer les agrégats formés. Ce mécanisme ne peut donc avoir lieu que dans les

espaces du milieu où la vitesse d'écoulement est forte. La comparaison du champ de vitesse initial et de l'imagerie expérimentale valide cette causalité (Figure 3.89, champs de vitesse à droite) ; pour les deux configurations présentées ici, la simulation indique que le mécanisme a eu lieu dans une zone correspondant initialement à un chemin préférentiel d'écoulement où l'apport particulaire est important et les forces hydrodynamiques suffisantes pour entrainer l'érosion d'un agrégat et son déplacement plus en aval.

Cette observation montre à nouveau l'influence des différents régimes dans le transport de particules, leur dépôt et les mécanismes de colmatage qui leur sont associés.

3.2.3 Conclusion sur les mécanismes de colmatage : compétition entre construction et destruction des dépôts

Les deux mécanismes de colmatage observés dans le milieu poreux sont :

- L'accumulation progressive et stable de particules aux parois formant un dépôt multicouche qui peut résulter par la fermeture définitive du seuil de pore. Ce mécanisme prend place dans les zones de vitesse intermédiaire, où l'apport hydrodynamique est suffisant pour alimenter le piège en particules mais assez modéré pour ne pas déstabiliser la construction par des effets d'arrachement ;
- Le tamisage d'agrégats préalablement formés dans les pièges à proximité immédiate des collecteurs. Ce mécanisme de colmatage nécessite la formation préalable des clusters denses de particules, de plusieurs centaines de microns en taille. Ces derniers peuvent être arrachés et transportés plus en aval dans le milieu poreux où, par simple exclusion géométrique, ils vont éventuellement entrainer la fermeture de seuils de pores situés sur leur chemin d'écoulement. Ce mécanisme apparait dès lors que l'apport particulaire est suffisant et la vitesse d'écoulement importante pour permettre la construction d'agrégats et leurs éventuels réentrainements. Il a donc lieu essentiellement dans les chemins préférentiels d'écoulement et favorise la déstabilisation des dépôts présents.

Les caractéristiques respectives des mécanismes indiquent que les deux processus participent activement à la construction du dépôt et au colmatage dans le milieu poreux dans la mesure où de nombreux seuils de pores sont fermés de façon pérenne suite au développement de ces mécanismes. Néanmoins, à mesure que l'injection de la suspension se poursuit dans le milieu poreux, la formation des agrégats est de plus en plus importante. Par conséquent, la déstabilisation du système par déplacement des clusters est également plus forte. Ce double-effet du deuxième mécanisme « ralentit » ainsi l'ampleur de l'endommagement.

La réduction de perméabilité est alors le résultat de l'équilibre entre la construction du dépôt et sa déconstruction, *i.e.* déstabilisation, au sein du milieu poreux.

Les trois mécanismes de colmatage rapportés par la littérature et précédemment identifiés dans le Chapitre 1 sont le tamisage de particules, le pontage et l'agrégation d'origine chimique (Le colmatage à l'échelle du pore). A ce jour, les travaux en microfluidique montrent que ces mécanismes résultent de la mise en place de conditions favorables à leur développement :

- Un rapport T/C petit avec des particules de grand diamètre et milieu poreux confiné (tamisage) ;
- Des concentrations en particules importantes des suspensions injectées, favorisant ainsi la probabilité de rencontre des particules au niveau d'une restriction (pontage) ;
- Des interactions particule/particule ou particule/paroi favorables (agrégation favorisée par les forces surfaciques).

Les observations réalisées au cours de nos travaux expérimentaux permettent de montrer que, dans le cas d'une injection d'une suspension de particules selon des conditions défavorables au dépôt, *i.e.* un rapport T/C grand, des concentrations faibles et des interactions répulsives, le colmatage est le résultat des deux mécanismes suivants : le tamisage et le pontage résultant de l'agrégation hydrodynamique des particules au sein du milieu poreux. Ces deux mécanismes sont donc relativement similaires à ceux identifiés historiquement mais ils se développent selon des conditions entièrement différentes de celles précédemment avancées.

Dans la suite de ce manuscrit, nous nous intéressons aux résultats obtenus lors de l'étude paramétrique où l'effet de la variation des paramètres clés (concentration, débit, taille de particules, etc.) sur l'endommagement du milieu poreux est étudié.

3.3 Etude paramétrique des facteurs d'endommagement

L'imagerie est un outil puissant pour la compréhension des phénomènes, notamment le transport de particules et le colmatage du milieu poreux. Afin d'étudier l'impact de l'apport particulaire et les dépôts qui y sont associés sur l'endommagement, l'étude des grandeurs physiques telle que la pression se révèle nécessaire. Dans cette section, nous développons les résultats obtenus lors de l'étude paramétrique des facteurs d'endommagement. Les paramètres étudiés sont la concentration de la suspension injectée, le débit, la taille ainsi que la charge portée par les particules.

3.3.1 Analyse des courbes caractéristiques d'endommagement et corrélation avec l'imagerie

Les données d'imagerie et de perte de charge sont comparées afin d'établir les relations entre mécanismes et phénomènes observés et la réduction de perméabilité engendrée par l'écoulement de la suspension colloïdale au sein du milieu poreux. La figure suivante (Figure 3.90) présente un ensemble de comparaisons entre données issues de l'imagerie par fluorescence et imagerie classique aux mesures de réduction de mobilité associées à chacune des injections.

Pour les deux configurations étudiées (C_0 et $10C_0$, débit similaire), l'analyse réalisée à partir des images en niveau de gris (Figure 3.90(a, b)) identifie une cinétique de dépôt surfacique croissante identique à l'augmentation de la réduction de mobilité. Le dépôt au sein de l'espace poreux augmente avec le nombre de particules injectées. Cette augmentation du dépôt exprime une réduction de porosité. L'allure de ces cinétiques est identique à celle acquise par la réduction de mobilité, et ce malgré des dépôts différents en termes de surface totale acquise à l'issue des injections : 2 et 30 % pour les injections à C_0 et $10C_0$, respectivement. L'excellente corrélation entre les cinétiques obtenues par imagerie et celles de réduction de mobilité indique que les mécanismes et phénomènes observés et étudiés précédemment sont directement impliqués dans l'endommagement des milieux poreux.

Cependant, l'analyse de l'imagerie par fluorescence (Figure 3.90(c, d)) révèle une dynamique différente entre les deux configurations testées et identiques à celles précédemment analysées. Malgré des cinétiques similaires prenant l'allure de lois de puissance, on observe un léger décalage entre les courbes de réduction de perméabilité et de concentration moyenne au sein du milieu poreux. Ces écarts situés peu après la phase initiale d'injection correspondent à des phases où la concentration moyenne au sein du milieu poreux augmente de façon très importante. La suspension colloïdale envahit l'espace poreux et les particules peuvent être accumulées progressivement dans les zones de pièges identifiées préalablement. Cette phase de surconcentration locale n'est pas associée à un endommagement du milieu ; les mécanismes de

colmatage sont en cours d'exécution mais l'alimentation particulaire n'est pas suffisante pour engendrer une réduction de mobilité.

Finalement, l'imagerie classique permet de détecter le dépôt seulement lorsque la surconcentration est suffisante pour identifier des clusters de particules suffisamment gros pour être considérés comme les acteurs principaux de l'endommagement du milieu poreux dans lequel ils circulent. A contrario, l'imagerie LIF permet de distinguer la première phase de collection des particules dans les zones de pièges, phase « silencieuse » en termes d'endommagement. Cette différence au niveau du seuil de détection entre les deux techniques de caractérisation explique alors les différences des allures des courbes obtenues.

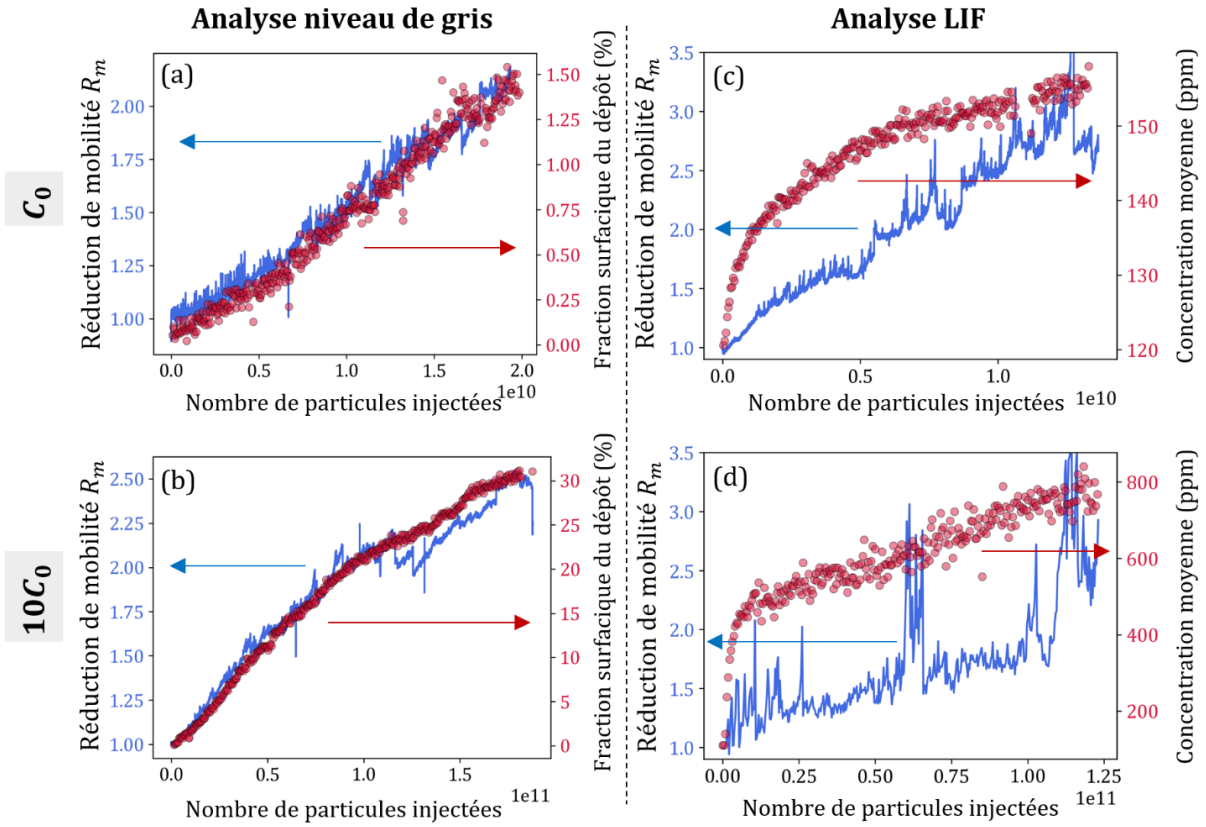


Figure 3.90 - (a) et (b) sont les comparaisons des cinétiques de réduction de mobilité avec la fraction surfacique représentée par le dépôt au cours de l'injection pour les expériences M9 et M12 (C_0 et 10 C_0 respectivement). (c) et (d) sont les comparaisons de l'imagerie LIF aux cinétiques de réduction de mobilité pour les expériences PM21 et PM18 (C_0 et 10 C_0 respectivement). Les différences observées entre les données de la LIF et celles de l'imagerie en niveau de gris sont dues aux différences au niveau des seuils de détection entre les 2 techniques.

Cette comparaison montre l'importance du couplage imagerie-mesures physiques pour la détection et la compréhension des mécanismes de colmatage ainsi que leurs effets sur la réduction de mobilité. Cette cohérence laisse suggérer que la réduction de mobilité déduite à partir des mesures de perte de charge ne peut pas être due seulement à la réduction de la perméabilité engendrée par la fermeture des seuils de pore. En effet, la courbe obtenue par analyse d'image est due principalement à la surface des dépôts qui se situent au niveau des corps des pores. La surface de dépôt fermant les seuils étant négligeable devant le reste.

Deux hypothèses sont possibles dans ce cas pour interpréter ces résultats :

1. La réduction de perméabilité est due non seulement à la fermeture des seuils de pore telle que souvent suggérée mais aussi aux dépôts accumulés dans les corps des pores.

2. La réduction de la mobilité observée est due à une réduction de perméabilité par fermeture des seuils couplée à une augmentation locale de la viscosité.

Nous détaillons ci-après une analyse des effets des différents paramètres expérimentaux mentionnés en introduction.

3.3.2 Effet de la concentration de la suspension injectée

L'état de l'art établi précédemment a permis de montrer que les études sur le transport et le dépôt des particules donnent régulièrement des résultats contradictoires.

Dans le cas des travaux expérimentaux menés pour répondre à la problématique du colmatage en milieu poreux, la description multi-échelle du dépôt a permis de montrer que l'apport particulaire avait une incidence directe sur les figures de dépôt et les mécanismes de colmatage. Ici, nous adressons la problématique à l'échelle macroscopique en comparant les cinétiques caractéristiques d'endommagement, *i.e.* de réduction de mobilité, après l'injection de trois suspensions à différentes concentrations (Figure 3.91).

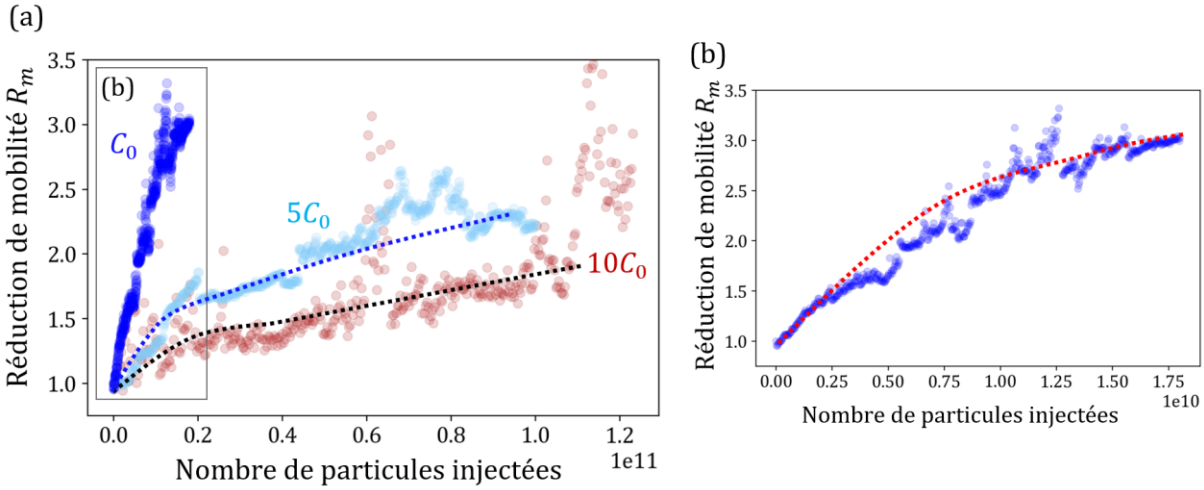


Figure 3.91 - (a) Cinétiques d'endommagement à l'issue de trois expériences menées à débit identique Q=1,5 ml/h mais à concentration de la suspension différente (expériences PM21, PM115 et PM18 pour les injections à C_0, $5C_0$ et $10C_0$ respectivement). (b) Zoom sur la cinétique d'endommagement pour l'injection à C_0.

La première observation est la suivante : pour les trois différentes concentrations injectées dans le milieu poreux, la cinétique d'endommagement semble identique et acquiert une dynamique de loi en puissance. Cependant, il semble y avoir un retard progressif au fur et à mesure que la concentration augmente. Ainsi, pour un nombre équivalent de particules injectées, l'endommagement est plus important dans le cas où la suspension initiale injectée est la moins concentrée. A 10^{10} particules injectées, le coefficient de réduction de la mobilité Rm est égal à 2,5, puis 1,3 et 1,15 pour un ordre croissant de concentration (100, 500 et 1000 ppm respectivement). L'ensemble des travaux conduit ici sur l'effet de la concentration de la suspension injectée ont abouti à une conclusion identique : à nombre équivalent de particules injectées, l'endommagement est plus important lorsque la concentration de la suspension est plus faible. Les cinétiques présentées précédemment (Figure 3.90(a) et (b)) montrent que, à $2x10^{10}$ particules injectées, le coefficient Rm est supérieur à 2 lorsque la concentration est C_0 (100ppm) et seulement égal à 1,25 lorsque la concentration est $10C_0$ (1000ppm).

Ce résultat contre-intuitif, néanmoins relevé par de précédents travaux, repose sur la dynamique à l'échelle du pore. Nous analysons en effet la cinétique d'endommagement comme le résultat de deux phases ; la première est associée à la formation d'agrégats cohésifs de particules et

au colmatage des seuils de pores, tandis que la seconde est associée à la déstabilisation du dépôt par des clusters de colloïdes érodés. Lors de la première phase, la formation des agrégats développée dans les zones de piégeage affecte et perturbe l'écoulement, mais ces derniers ne sont pas encore déstabilisés par l'érosion. L'ampleur de l'endommagement est maximale, avec un colmatage permanent des seuils de pores dans les zones d'écoulement intermédiaire.

Au fur et à mesure que la concentration de la suspension augmente, l'alimentation en particules des zones de collection est amplifiée et les phénomènes d'érosion et d'entrainement des agrégats apparaissent alors plus rapidement. La transition vers cette deuxième phase d'endommagement, au cours de laquelle le système est déstabilisé, se produit plus tôt.

3.3.3 Effet du débit d'injection

A l'échelle du milieu poreux, l'apport particulaire dépend des deux facteurs suivants : la concentration de la suspension et du débit d'injection. La précédente section a permis de montrer que de plus fortes concentrations tendent à diminuer l'amplitude de l'endommagement, ce qui est contre intuitif. Sur la base des observations de la dynamique à l'échelle du pore, une augmentation du débit d'injection semble provoquer un effet similaire, *i.e.* diminuer l'ampleur de la réduction de mobilité en diminuant la quantité des dépôts retenue. Cette conclusion, en accord avec les travaux antérieurs menés sur la problématique et dont les résultats montrent qu'à forte vitesse, la rétention des colloïdes est moins importante au sein du milieu poreux, est confirmée aussi par les données de la Figure 3.92. En effet, ces résultats montrent que, systématiquement, quelle que soit la concentration de la suspension injectée, les plus faibles débits (courbes rouges) sont associés aux endommagements les plus importants.

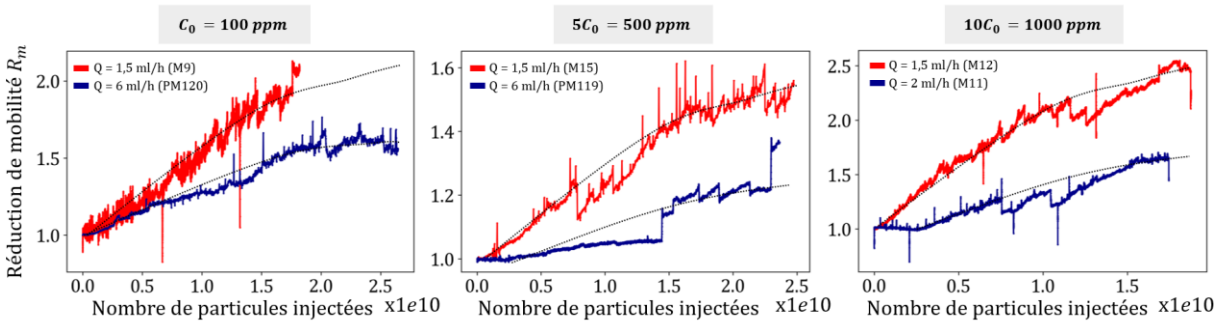


Figure 3.92 - Comparaison des cinétiques de réduction de mobilité pour différentes conditions expérimentales (débit d'injection identique mais différentes concentrations de la suspension). Les références aux expériences sont indiquées dans les légendes.

Cependant, une interrogation subsiste sur cette claire tendance et ces observations dans la mesure où un fort débit est également censé augmenter l'apport en particules et donc favoriser la croissance des dépôts.

La quantité de dépôt retenue par le milieu dépend à la fois de la surface des pièges (dictée par les lignes de courant) et de l'alimentation particulaire. Or plus le débit est important, plus la surface des pièges est réduite ; la comparaison des lignes de courant à différents débits permet d'appréhender cet aspect géométrique (Figure 3.93). Ainsi, localement, là où la vitesse peut atteindre 2.10^{-2} m/s lorsque le débit d'injection est Q = 6 ml/h, celle-ci peut être presque nulle lorsque le débit est Q = 1,5 ml/h. Or si l'écoulement est faible, les particules peuvent être accumulées et stockées dans ces zones qui ne seraient pas des pièges à plus fort débit.

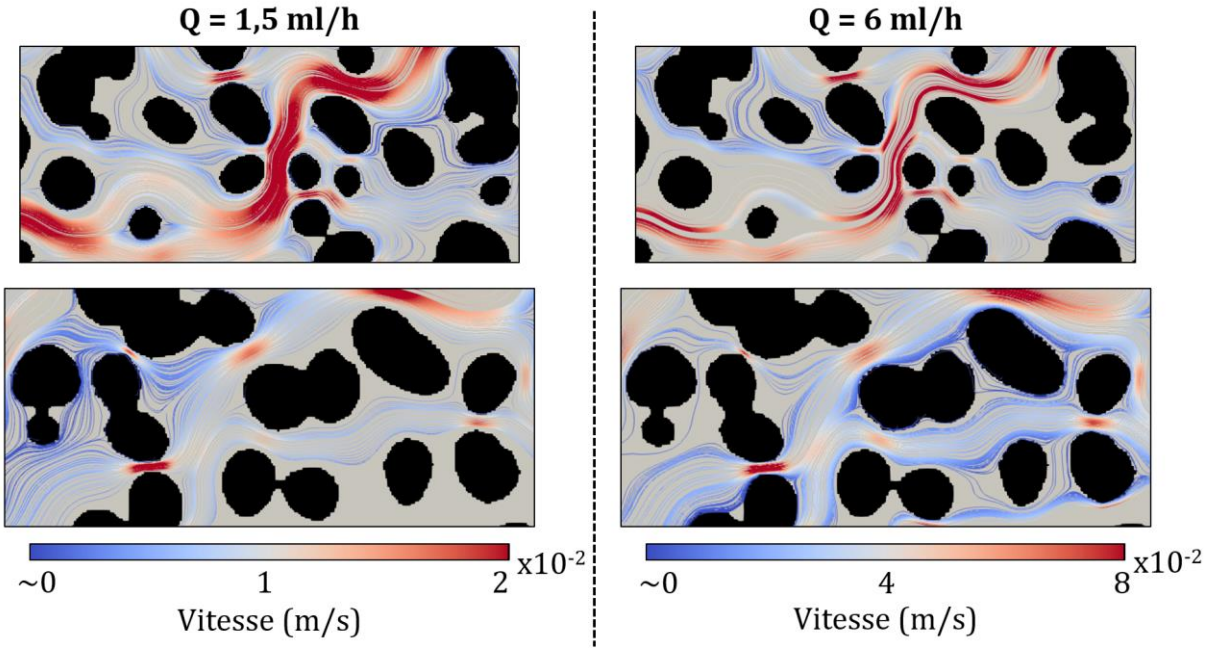


Figure 3.93 - Lignes de courant de deux zones du milieu poreux à 2 débits d'injection différents. Attention, les échelles sont différentes.

L'alimentation particulaire elle, augmente avec le débit, ce qui accélère le remplissage des pièges. Néanmoins ce paramètre cesse de jouer un rôle dès que le piège est rempli, dans la mesure où tout excès par rapport à la surface initiale du piège est arraché. Ceci est confirmé à nouveau par l'allure de la réduction de mobilité qui acquiert une dynamique en loi de puissance avec deux phases d'endommagement. La transition entre les deux phases s'effectue à partir d'un nombre critique de particules injectées relativement équivalent entre les débits d'injection à une concentration donnée. Ceci indique que le temps de transition est plus court entre les deux phases lorsque le débit augmente.

Les données de la Figure 3.92 montrent également qu'à débit plus fort, l'amplitude de la première phase de colmatage est plus faible, or celle-ci détermine considérablement l'intensité finale de la réduction de mobilité. En effet, les vitesses d'écoulement locales sont plus élevées et les effets hydrodynamiques plus forts : la déstabilisation du système {milieu poreux + dépôt} est beaucoup plus importante. La transition du régime de diffusion-convection vers le régime hydrodynamique est beaucoup plus rapide. La collection des particules en suspension dans les zones de pièges à proximité immédiate des grains se fait sur une période réduite et les agrégats formés puis éventuellement arrachés contribuent à ralentir l'endommagement global du milieu poreux.

En résumé, d'après les résultats et l'analyse exposés ci-dessus, le débit d'injection est l'un des paramètres majeurs contrôlant le transport et le dépôt des particules dans le milieu poreux. Il joue un rôle clé dans le colmatage. Plus particulièrement, une augmentation du débit d'injection (dans la gamme étudiée ici) est susceptible d'entrainer les conséquences suivantes :

- Favoriser l'agrégation des particules ; l'augmentation du débit entraine l'augmentation des forces hydrodynamiques qui, une fois supérieures aux forces interparticulaires, provoquent l'agrégation des particules.
- Réduire la fraction volumique de dépôt accumulé dans le milieu et ainsi l'ampleur de l'endommagement. Ceci est principalement dû à la limitation de la surface des pièges qui est dictée par les lignes de courant.

- Accélérer le remplissage des pièges, ce qui accélère la cinétique de dépôt et également la transition vers la deuxième phase du colmatage pendant laquelle les agrégats arrachés et mobiles atténuent l'endommagement en libérant certains seuils fermés.

Ces résultats sont relatifs à la gamme de débit utilisée dans le cadre des travaux expérimentaux menés ici. A des débits beaucoup plus faibles, les régimes d'écoulement en place sont ceux de diffusion et diffusion-advection. Les mécanismes responsables de la formation des dépôts sont alors différents.

3.3.4 Effet de la taille de particules

L'effet de la taille des particules injectées sur l'endommagement du milieu poreux est particulièrement intéressant à évaluer, notamment pour la réalisation de procédés de filtration les plus efficaces possibles. Historiquement, les travaux effectués sur le colmatage à l'aide de particules de taille différente montrent que plus le diamètre de la particule est grand, plus l'efficacité de collection est importante.

3.3.4.1 Dépôts et mécanismes de colmatage

L'observation des milieux poreux lors du transport et de l'écoulement de suspensions de particules de taille plus importante permet de montrer que les dépôts et les mécanismes de colmatage restent identiques à ceux précédemment identifiés. Ainsi, la Figure 3.94 illustre différents seuils de pore colmatés à l'issue d'une construction progressive, stable et pérenne d'un dépôt multicouche. Une observation attentive de ces seuils permet de voir qu'il peut s'agir de constrictions identiques concernées par ce dépôt ; les séries d'images {7, 11, 17}, {13, 21}, {3, 8, 12, 23} et {5, 10, 14, 20} correspondent ainsi aux différents seuils soumis à un colmatage progressif malgré des conditions d'injection différentes (concentration initiale et débit).

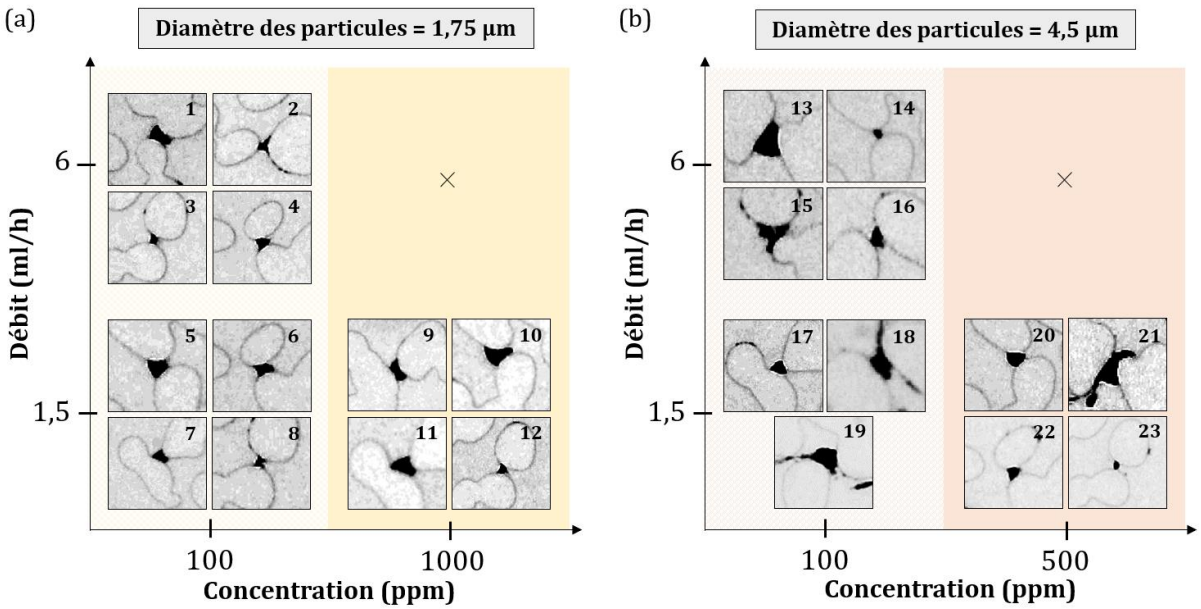


Figure 3.94 - Panorama présentant différents seuils de pores colmatés pour des conditions opératoires identiques avec des particules de diamètre (a) 1,75 µm ou (b) 4,5 µm.

Tel que pour les particules de diamètre 1 µm, la construction d'agrégats au sein du milieu poreux a lieu parallèlement au mécanisme précédent (Figure 3.95). Ces clusters de particules

résultent de l'agrégation hydrodynamique. Une fois formés, ces objets de plusieurs centaines de microns en taille peuvent être arrachés et transportés plus en aval du milieu poreux.

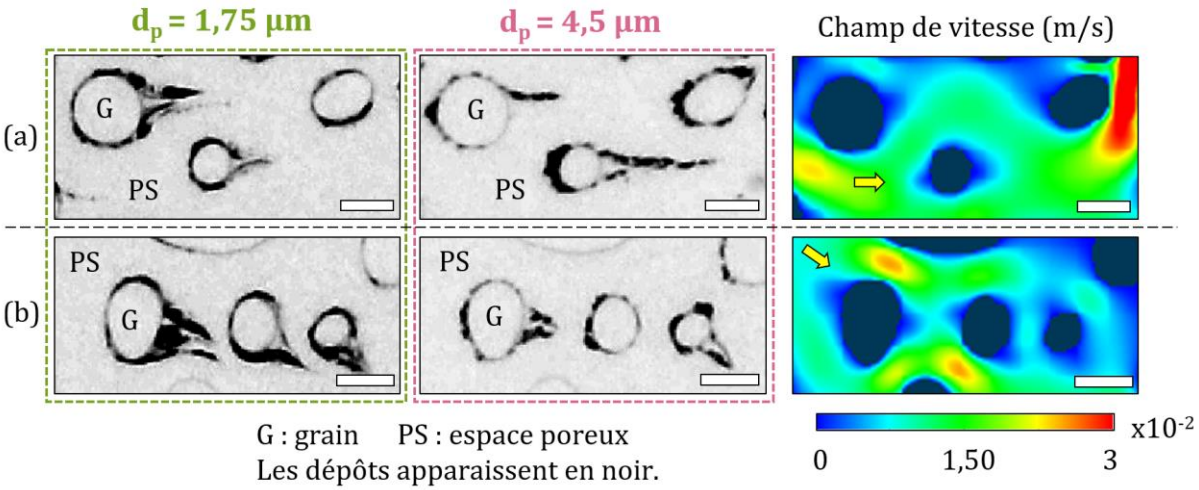


Figure 3.95 - Illustration par l'imagerie en niveau de gris de la formation d'agrégats dans les zones de pièges à proximité des collecteurs dans deux zones différentes notées (a) et (b). Ces zones sont étudiées dans le cas de l'injection d'une suspension de particules de 1,75 µm de diamètre (expérience PM122) et de 4,5 µm de diamètre (expérience M5) réalisées à concentration identique (100 ppm). La barre d'échelle correspond à 150 µm.

La comparaison des zones de formation de ces agrégats avec la cartographie locale du champ de vitesse permet de montrer que ces agrégats sont préférentiellement formés dans les zones d'écoulement où la vitesse est intermédiaire à forte ; l'apport particulaire est suffisant pour alimenter les pièges et le cisaillement important tel qu'il induit l'agrégation hydrodynamique de ces particules.

L'observation des figures de dépôt à l'échelle du pore montre ainsi que le diamètre des particules n'induit aucun changement dans les mécanismes de colmatage.

3.3.4.2 Endommagement du milieu poreux

L'analyse des données de pression permet d'appréhender l'effet de la taille des particules injectées dans le milieu poreux sur la réduction de mobilité. La Figure 3.96 présente les cinétiques de réductions de mobilité pour des injections réalisées dans le milieu poreux G1 avec des conditions opératoires analogues ; le débit est ajusté à 1,5 ml/h ou 6 ml/h et la concentration initiale d'injection est 100 ppm.

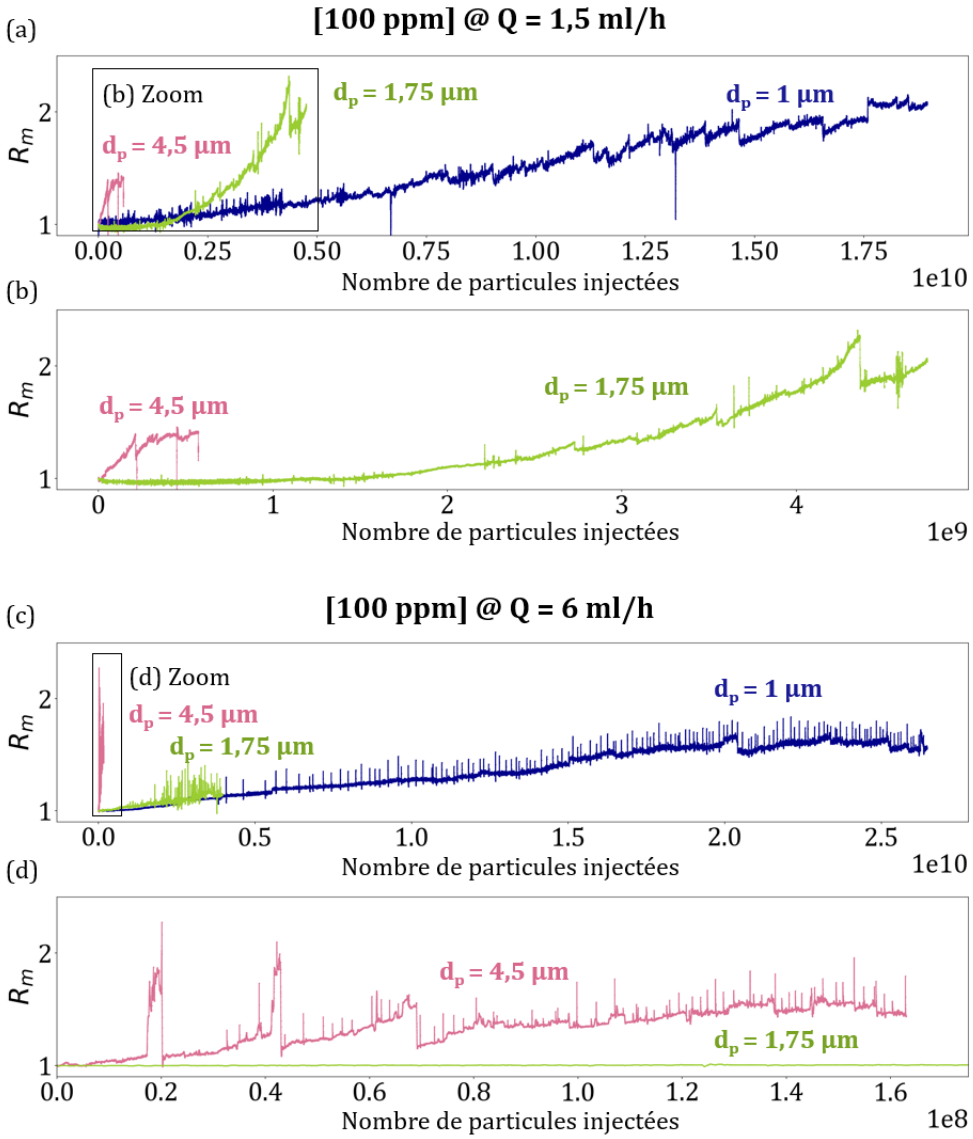


Figure 3.96 - (a) et (b) : réductions de mobilité associées aux injections d'une suspension de particules de diamètre 1, 1,75 ou 4,5 µm à une concentration de 100 ppm et un débit Q=1,5 ml/h. (c) et (d) : réductions de mobilité associées aux injections d'une suspension de particules de diamètre 1, 1,75 ou 4,5 µm à une concentration de 100 ppm et un débit Q = 6 ml/h.

L'amplitude de l'endommagement n'est pas très importante : les valeurs de Rm sont comprises entre 1 et 2 pour les six configurations opératoires présentées. Cependant, plus les particules ont une taille importante, plus l'endommagement intervient rapidement *i.e.* moins de particules sont nécessaires pour initier la réduction de perméabilité au sein du milieu poreux considéré. Cette cinétique rapide est attribuée à deux facteurs :

- Le rapport T/C qui diminue à mesure que le diamètre des colloïdes injectés augmente selon une loi inverse. Ainsi, pour un seuil de pore de 40 µm de longueur (longueur transverse à l'écoulement), ce rapport vaut 40, ~23 et ~8,9 pour des particules de diamètre 1, 1,75 et 4,5 µm, respectivement. Ce ratio reste très élevé et moins favorable à un dépôt par tamisage de particules. Néanmoins, géométriquement, moins de particules sont nécessaires pour induire la fermeture d'un seuil de pore et ainsi la réduction de la perméabilité du milieu ;

- Une efficacité de collection des grains bien plus importante lorsque les particules sont plus grosses ; selon Auset & Keller (2006), celle-ci augmente d'un facteur 10 entre une particule de 1 µm et une particule de 4,5 µm de diamètre.

La Figure 3.97 présente les cinétiques d'endommagement (Rm) pour l'ensemble des différentes injections présentées précédemment (Figure 3.96) en considérant non plus le nombre total de particules injecté au sein du milieu poreux mais la fraction du volume cumulé de particules injectées par rapport au volume de fluide porteur, qui augmente au cours du temps. Cette analyse revient à évaluer la réduction de mobilité selon le volume de particules injectée.

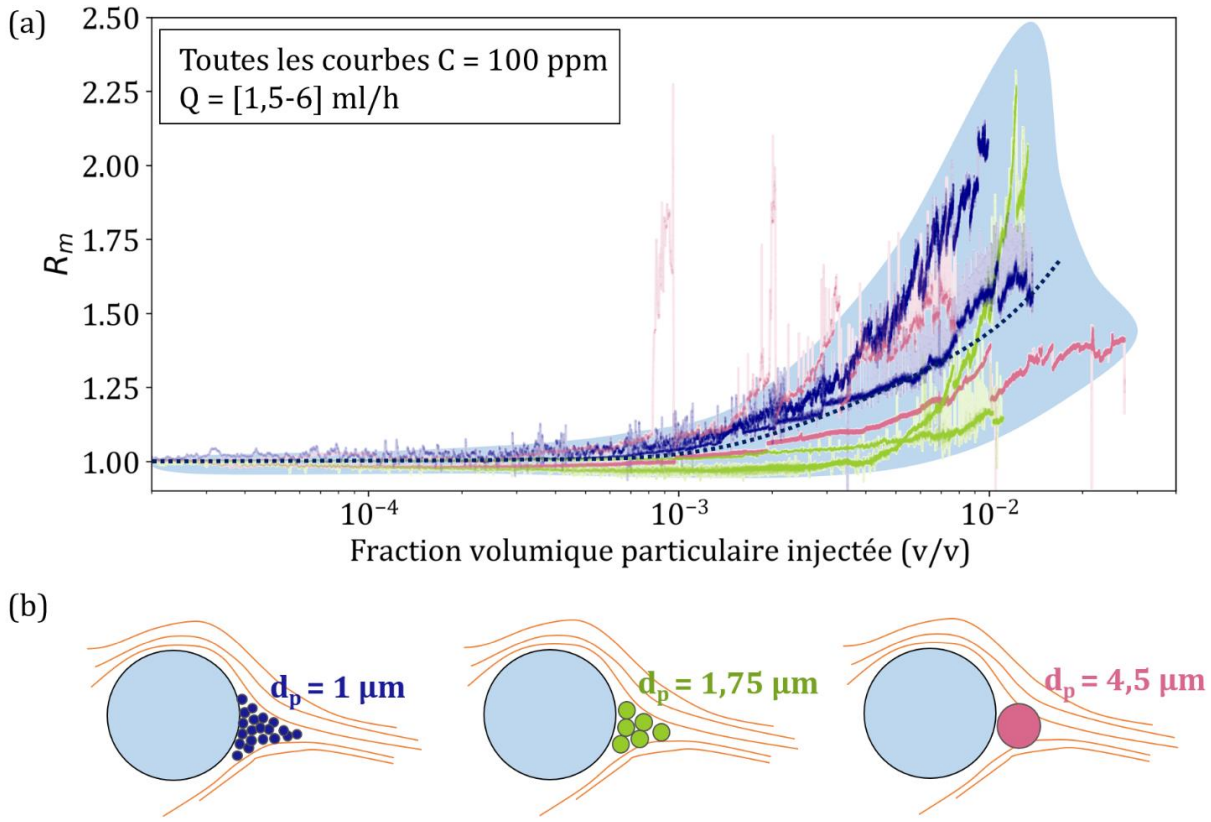


Figure 3.97 - (a) Evolution du coefficient de réduction de mobilité en fonction de la fraction volumique de particules injectées. Les courbes présentées sont identiques à celles de la figure précédente. Attention, pour une meilleure lisibilité, l'axe des abscisses est en échelle logarithmique. (b) Représentations schématiques de la collection de particules de diamètre différent dans une zone de piège.

Cette comparaison suggère que l'endommagement est initié après l'injection d'un volume identique de particules dans le milieu poreux, et ce peu importe le diamètre des particules injectées. Géométriquement, il apparait en effet cohérent que moins de particules soient nécessaires pour remplir les pièges formés à proximité des collecteurs lorsque celles-ci ont un diamètre plus important ; néanmoins, si l'on considère le volume total de matière particulaire afin que ces zones de collection soient remplies, il semble compréhensible qu'une quantité équivalente soit requise pour induire le colmatage du milieu poreux. Bien que cette observation nécessite une validation et des analyses complémentaires, elle contribue à affiner l'étude sur l'effet de la taille de la particule. En termes de fraction volumique injectée, la variation de diamètre des colloïdes injectés ne semble pas avoir d'incidence sur l'endommagement en termes de cinétique. La dynamique de réduction de mobilité apparait similaire. En termes de nombre de particules, le diamètre des colloïdes est un

paramètre à considérer avec attention dans la mesure où son augmentation induit un endommagement plus rapide du milieu poreux.

Ces résultats sur l'impact de la taille des particules sur l'endommagement sont à mettre en perspective par rapport aux applications d'ingénierie requérant une filtration. Généralement, la filtration permet d'exclure toute particule trop grande qui pourrait induire un colmatage plus rapide. Cependant, la géométrie du milieu poreux associée à un écoulement permet la formation naturelle et non contrôlable d'agrégats, soit des objets particulaires de taille beaucoup plus importante que les particules initialement en suspension. Finalement, malgré une filtration amont, l'injection d'une suspension de particules monodisperses revient à étudier le transport d'une suspension de particules disperses dont la mobilité n'est pas équivalente.

3.3.5 Charges de surface différentes : particules de polystyrène amidines

Afin de comprendre si l'agrégation hydrodynamique observée au sein du milieu poreux est uniquement associée aux charges carboxyles (négatives) portées par les microsphères de polystyrène, il apparait particulièrement intéressant de travailler avec des particules identiques en termes de propriétés mais portant des charges amidines (positives). Ces particules de polystyrène dont les caractéristiques ont été présentées précédemment (2.1.2.1 Caractéristiques principales) sont supposées se repousser, les interactions particule-particule étant répulsives. Cependant, les interactions particule-paroi sont ici attractives ; le dépôt pourrait être donc différent au sein du milieu poreux.

3.3.5.1 Dépôt à l'échelle macroscopique

L'observation du dépôt au cours de l'injection permet d'identifier les éléments de dépôt différents entre l'utilisation de particules carboxylées et les microsphères amidines. En effet, bien que les caractéristiques majeures du dépôt soient identiques, on note quelques changements. Ainsi, l'arrachement des agrégats formés dans les zones de pièges n'a pas pu être identifié par imagerie. Bien que les forces hydrodynamiques soient toujours présentes puisque l'écoulement est continu, les agrégats formés dans les zones de pièges n'en sont pas déplacés par érosion. Ceci est probablement dû aux interactions favorables entre les particules et la matrice solide qui rendent l'attachement plus fort des clusters cohésifs aux grains. En effet, le calcul des forces DLVO entre les particules amidines et la matrice solide du micromodèle sont purement attractives (Figure 2.52). Cette observation est importante puisqu'elle indique que le colmatage par déplacement d'agrégats préalablement formés n'est pas un mécanisme de réduction de mobilité observé dans le cadre de l'injection de colloïdes dont les interactions avec la matrice sont favorables (dans la gamme de débits explorés dans nos travaux).

Parallèlement, l'imagerie indique que de nombreux petits dépôts remplissent l'espace poreux. Ces derniers prennent la forme d'amas à la surface réduite mais néanmoins présents en grand nombre. Ils sont de plus en plus abondants à mesure que l'injection se poursuit (Figure 3.98).

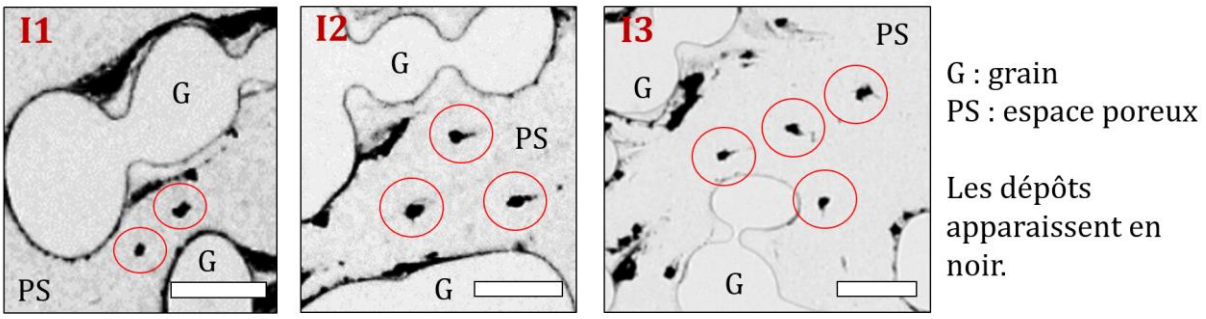


Figure 3.98 - Séries d'images issues de l'injection M8. La barre d'échelle correspond à 200 µm pour l'ensemble. En rouge sont entourés les dépôts de particules résultants de l'éventuelle présence d'aspérités dans le micromodèle (microrugosité). I1, I2 et I3 correspondent à l'injection de $8{,}54x10^{8}$, $1{,}82x10^{9}$ et $1{,}95x10^{9}$ particules, respectivement, dans le milieu poreux.

Bien que cela n'ait pu être vérifié par une technique d'imagerie 3D, la microrugosité de surface du micromodèle pourrait fournir des supports propices au dépôt irréversible puisque les interactions des particules amidines avec la matrice sont favorables. Cependant, bien que nous avancions cette hypothèse, l'origine de ces dépôts peut être différente. La présence d'impuretés ou une hétérogénéité locale de mouillabilité due à une altération de la surface du verre pourraient causer la formation de ces clusters de particules dans les espaces poreux.

Ces dépôts contribuent fortement à augmenter la surface totale du dépôt au cours de l'injection au sein du milieu poreux. En effet, celle-ci atteint des valeurs importantes pour l'ensemble des injections réalisées avec les particules amidines. Ainsi, à $1{,}2x10^{10}$ particules injectées dans le milieu poreux, le dépôt atteint environ 6,5% et 20% de la surface poreuse disponible (Figure 3.99) pour les injections d'une suspension concentrée à 100 ppm et 50 ppm en particules respectivement. Ces pourcentages sont particulièrement élevés lorsque mis en comparaison avec les injections de colloïdes portant une charge carboxyle. A titre de comparaison, lorsque $1{,}2x10^{10}$ particules ont été injectées dans le milieu poreux, le dépôt atteint 0,7% lorsque la concentration de la suspension est 100 ppm (injection M9) et 2,5% lorsque la concentration de la suspension est 1000 ppm (injection M11).

Pour les particules amidines, plus la concentration de la suspension injectée dans le milieu poreux est faible, plus le dépôt est important (Figure 3.99(b)).

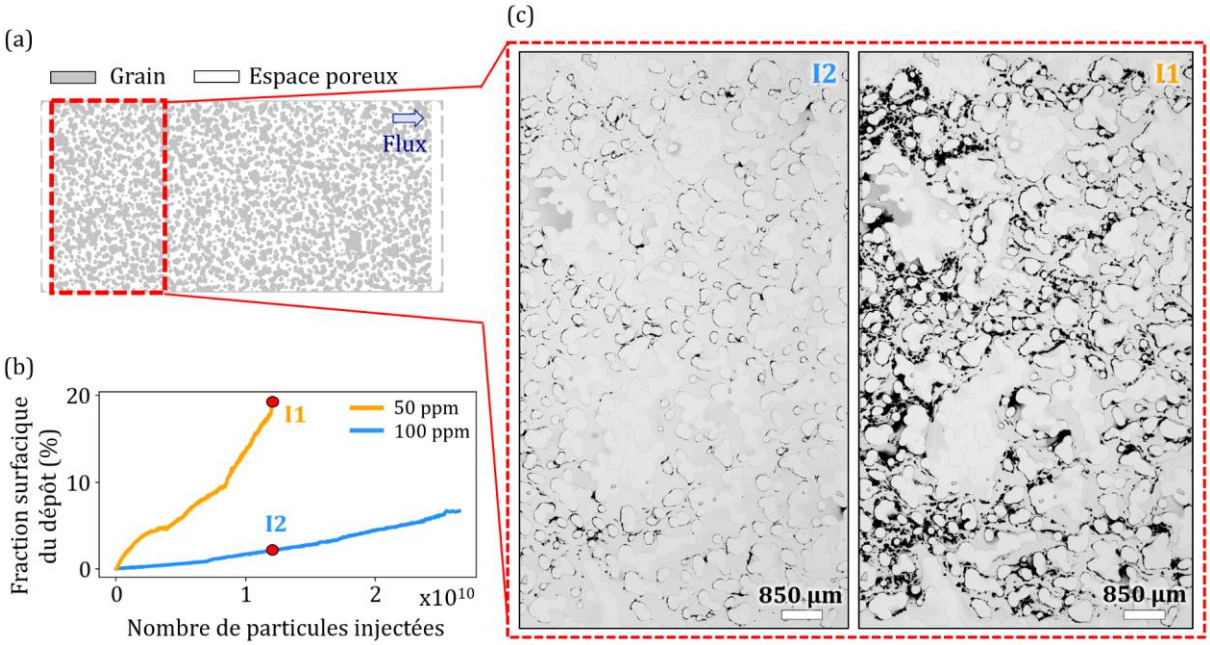


Figure 3.99 - (a) Image binarisée du micromodèle (grains en gris et espace poreux en blanc). L'encadré rouge indique la zone correspondant aux images présentées en (c). (b) Evolution de fraction surfacique du dépôt au cours de l'injection pour les expériences M7 et M8 à débit Q = 1,8 ml/h et dont les concentrations sont 50 et 100 ppm respectivement. La surface de dépôt évaluée correspond à celle dans la zone rouge indiquée en (a). Les points rouges notés I1 et I2 correspondent aux images du milieu poreux et des dépôts présentées en (c), prises après l'injection de $1{,}2 \times 10^{10}$ particules dans le milieu poreux.

3.3.5.2 Dépôt à l'échelle du pore

Les observations à l'échelle du pore révèlent des mécanismes de dépôt similaires à ceux précédemment identifiés ; les particules arrivent au sein du milieu poreux et dans les zones de piège à proximité immédiate des grains. Les configurations de collection où les particules peuvent être accumulées sont identiques : dans le sillage de grains solides, aux points de stagnation, dans les régions sans écoulement, à la confluence de deux voies d'écoulement ou à l'entrée d'un seuil de pore étroit. Ainsi, la concentration locale est plus importante que celle de la suspension injectée.

Il est cohérent de retrouver des schémas d'accumulation identiques bien que les particules soient différentes en termes de charges dans la mesure où ces régions sont générées par la géométrie du milieu poreux ainsi que le débit d'injection (pièges délimités par les lignes de courant). Etant donné que le milieu utilisé pour la réalisation de ces injections avec des particules différentes est le même (géométrie G1), il apparait raisonnable que les zones de pièges soient semblables.

Une fois accumulées dans ces régions de collection, les particules de polystyrène amidine subissent une agrégation hydrodynamique. Localement, la fraction volumique en particules est particulièrement importante et le cisaillement est fort. Bien que les interactions entre particules soient répulsives, l'alliance des deux éléments aboutit à la formation d'agrégats au sein du milieu poreux et dont la forme est liée à la configuration du piège. La figure suivante (Figure 3.100) présente ainsi le résultat de l'agrégation hydrodynamique pour les cinq configurations associées à la géométrie G1.

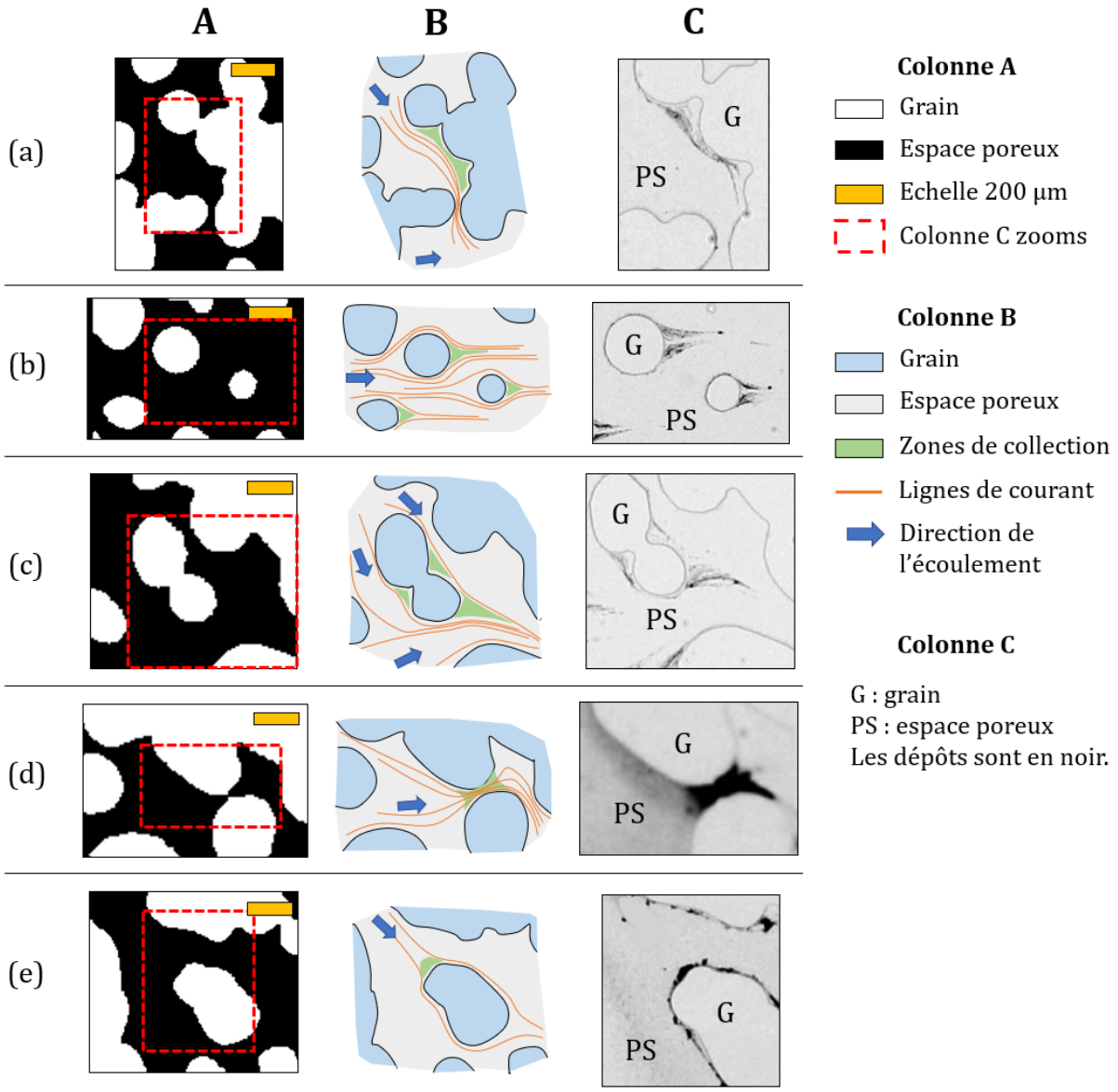


Figure 3.100 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur. Les images sont issues de l'injection M8. (a), (b), (c), (d) et (e) correspondent aux pièges dans une zone de flux faible, en aval des grains, à la confluence de deux écoulements locaux, à l'entrée d'un pore étroit et au point de stagnation en amont d'un grain, respectivement.

Malgré des groupements de surface différents (interactions identiques néanmoins), les figures de dépôt apparaissent identiques. Cette observation montre le rôle fondamental de la géométrie du milieu poreux considéré et dont la complexité génère naturellement des zones de piège.

Certains seuils sont colmatés par un dépôt dense et compact selon le mécanisme de croissance stable d'un dépôt multicouche aboutissant au colmatage pérenne et la formation d'agrégats dans les zones de forte vitesse d'écoulement, *i.e.* où l'apport particulaire est plus important, est prépondérante.

3.3.5.3 Endommagement du milieu poreux

Les figures de dépôt présentent de nombreuses similarités avec celles identifiées précédemment avec l'utilisation des microsphères de polystyrène carboxylées. Ainsi, l'endommagement, *i.e.* la réduction de mobilité, doit présenter des caractéristiques similaires à celles précédemment identifiées, notamment en termes d'évolution de la cinétique et d'effet de la concentration de la suspension injectée. La Figure 3.101 permet de confirmer ces deux points. L'encadré (a) permet de montrer qu'à nombre de particules injectées équivalent, l'endommagement est plus important lorsque la concentration de la suspension est plus faible. Ainsi, à $1x10^{10}$ particules injectées, la réduction de mobilité est ~ 5 pour l'injection de la suspension à 50 ppm tandis qu'elle atteint seulement ~ 1,4 pour les injections M6 et M7 où la concentration est 100 ppm. Bien que les particules injectées ne portent pas des charges similaires (carboxyles vs amidines), l'effet de la concentration reste identique sur l'endommagement. L'encadré (b) permet d'évaluer l'effet éventuel de la charge portée par les microsphères de polystyrène. Bien que le débit d'injection soit modérément différent (1,5 vs 1,8 ml/h), l'évolution de la réduction de la mobilité au cours des injections apparait similaire pour les trois configurations présentées ; les courbes se recouvrent. L'évolution des signaux associés à l'injection des particules amidines (courbe tons bleus) apparait légèrement moins bruitée lorsque celle-ci est comparée avec celle des particules carboxylées. Ceci pourrait être dû à une déstabilisation du milieu poreux moins importante, conséquence d'un attachement des agrégats plus fort à la matrice solide et ainsi à des phénomènes d'érosion moins présents lors de l'écoulement.

On notera également que malgré un dépôt plus important en termes de surface lorsque des particules amidines sont injectées, celui-ci ne semble exercer qu'une influence minime sur la réduction de mobilité.

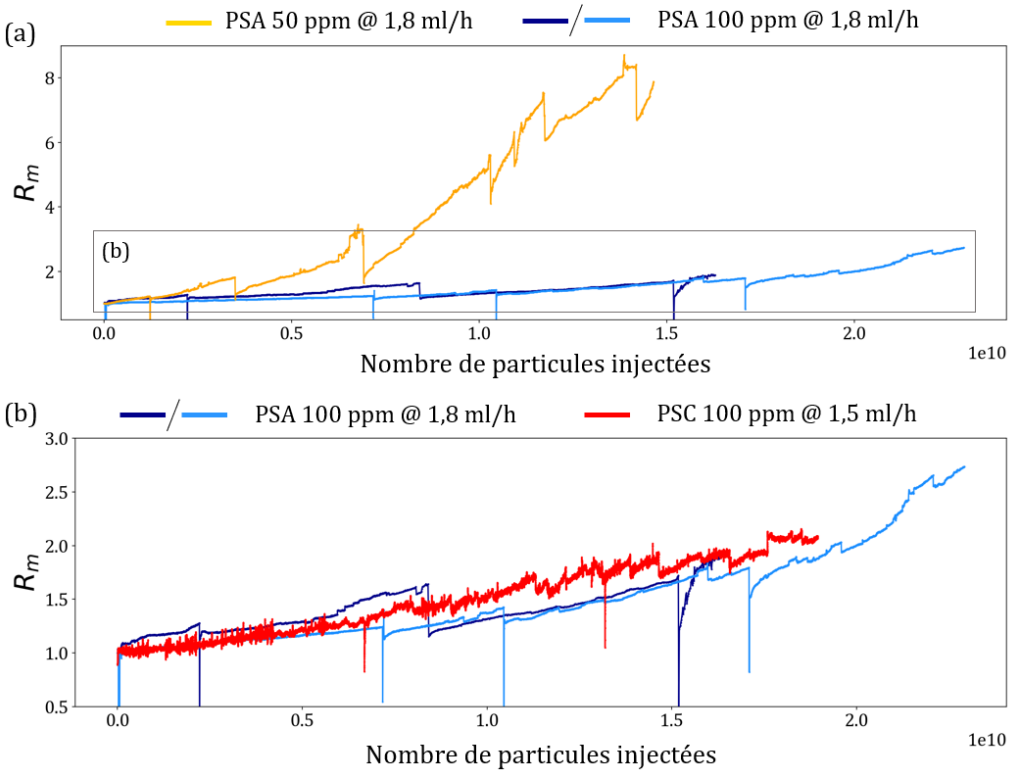


Figure 3.101 - (a) et (b) : Réductions de mobilité associées aux injections des suspensions de particules PSA et PSC, de diamètre 1 µm à une concentration de 100 ppm et un débit Q = 1,5 ml/h.

Les expériences menées avec les particules portant des charges amidines montrent deux éléments. Bien que les interactions particule-particule soient non favorables, les figures de dépôt restent identiques à celles identifiées avec les particules carboxylées, montrant ainsi l'importance de la géométrie du milieu poreux dans lequel les suspensions s'écoulent (agrégation hydrodynamique). Néanmoins, les interactions favorables particule-paroi induisent une efficacité d'attachement beaucoup plus importante : de nombreux petits amas additionnels essentiellement situés dans les pores sont formés probablement au niveau des micro-aspérités de la surface du milieu poreux. Ces dépôts ne semblent néanmoins pas générer une réduction de mobilité plus importante.

Le calcul des forces DLVO a permis de montrer que les interactions répulsives entre particules amidines présentent une intensité plus faible, par comparaison avec celles entre particules carboxyles. Ce résultat indique que l'agrégation peut se produire à de plus faibles valeurs de cisaillement et ainsi de vitesses d'écoulement. La formation nombreuse des petits agrégats au sein du milieu poreux pourrait être également expliquée par les relations interparticulaires.

Finalement, l'endommagement apparait similaire en dépit des particules injectées dont les propriétés de surface sont différentes.

3.3.6 Conclusion étude paramétrique sur l'endommagement

Cette étude paramétrique a permis d'apporter les conclusions suivantes :

- Une agrégation hydrodynamique, initiée par des conditions très locales : les particules accumulées progressivement dans les nombreux pièges créés par la géométrie, s'associent grâce à la présence de fortes forces visqueuses locales pour former des agrégats irréversibles dont la taille peut atteindre plusieurs centaines de microns.

- Lorsque les zones de formation de ces agrégats sont situées dans les chemins préférentiels, là où la vitesse d'écoulement et l'apport en particules sont les plus importants, ces clusters de particules peuvent être arrachés et être transportés plus en aval dans le milieu poreux. Ces clusters peuvent alors colmater de nouveaux seuils par simple exclusion de taille ou également libérer des seuils présents dans leurs chemins, en apportant la force nécessaire pour casser le pont éventuellement formé. La taille de ces clusters mobiles est fortement dépendante du débit ; plus le débit est élevé, plus les clusters sont petits (pièges plus petits et agrégats éventuellement fragmentés lors de leur transport dans le milieu).

- Dans les zones de vitesse intermédiaire, la formation d'un dépôt multicouche progressif et stable aboutit à la fermeture complète et pérenne des seuils de pore.

- Les seuils concernés par le dépôt stable correspondent à une caractéristique géométrique spécifique : il s'agit des plus petites tailles de seuils rencontrées dans le milieu poreux.

- A nombre équivalent de particules injectées, une augmentation de la concentration ou du débit d'injection réduit l'ampleur de l'endommagement du milieu poreux mais accélère sa cinétique. En effet, une augmentation de l'un de ces paramètres tend à la déstabilisation plus rapide du système {milieu poreux et dépôt}. Les agrégats sont formés plus rapidement lorsque le débit ou la concentration sont plus importants et peuvent ainsi perturber le dépôt à l'échelle du milieu poreux, ce qui tend à amoindrir les effets du colmatage sur la réduction de perméabilité.

- Les injections de suspensions monodisperses de particules de tailles différentes ont montré qu'à concentration constante, plus le diamètre des colloïdes est important, plus

l'endommagement est rapide. L'efficacité de collection est en effet plus forte, et le rapport T/C également plus favorable. Par ailleurs, en comparant les différentes expériences menées selon des conditions expérimentales identiques mais à différents diamètres de particules, la fraction volumique totale de « polystyrène » injectée avant le début de l'endommagement du milieu poreux semble équivalente. Selon ces premiers résultats, la fraction volumique en particules apparait comme l'un des paramètres clés dont dépend l'endommagement. En particulier, une fraction volumique critique semble nécessaire pour déclencher l'endommagement. Cependant, cette partie de l'étude nécessite d'être consolidée avec des expériences supplémentaires pour être en mesure de confirmer ou infirmer ces conclusions.

- Lorsque des particules portant des charges positives sont mises en suspension puis en écoulement dans le milieu poreux, les interactions attractives avec la matrice solide favorisent le dépôt localisé de particules au niveau de la surface. Dans les conditions expérimentales mises en place dans ce travail, ce dépôt n'a pas particulièrement d'impact sur l'endommagement, *i.e.* n'entraine pas une réduction de perméabilité plus importante. Ainsi, tant que les forces visqueuses sont dominantes par rapport aux autres forces impliquées, l'impact de la nature des charges ou des interactions particules-surface reste négligeable.

A la lumière de toutes ces observations, une courbe caractéristique d'endommagement dont la dynamique acquiert l'allure d'une loi de puissance peut être interprétée comme le résultat de la coexistence des phénomènes de construction (colmatage irréversible) et de déconstruction (déstabilisation par arrachement ou déplacements d'agrégats). Ainsi, la réduction de perméabilité est le résultat d'un équilibre ou plutôt d'une compétition entre ces deux mécanismes qui aboutit à deux phases de colmatage, caractérisées individuellement par une dominance de l'un des deux mécanismes (Figure 3.102) :

- La première phase correspond à la phase la plus critique dans la mesure où dans un espace de temps réduit, l'endommagement est très important. Durant cette phase, le mécanisme dominant est la « construction ».
- Après cette première période, les pièges ont été suffisamment alimentés en particules pour que la formation d'agrégats ait lieu. Ces derniers peuvent ensuite être remobilisés dans le milieu ce qui change de manière importante la dynamique du colmatage. Bien que ces agrégats aient un effet de « construction » dans la mesure où ils peuvent fermer de nouveaux seuils par tamisage, leur effet destructeur est plus marqué (érosion, déplacement dans le milieu, ré-entrainement de dépôts existants). Ce dernier est d'autant plus important que la concentration ou le débit sont élevés. Ainsi, dans cette phase le mécanisme dominant est la « déconstruction ».

La concentration de la suspension, le débit ou encore la taille de particules ne correspondent finalement qu'à des facteurs accélérateurs ou retardateurs de cette cinétique d'endommagement.

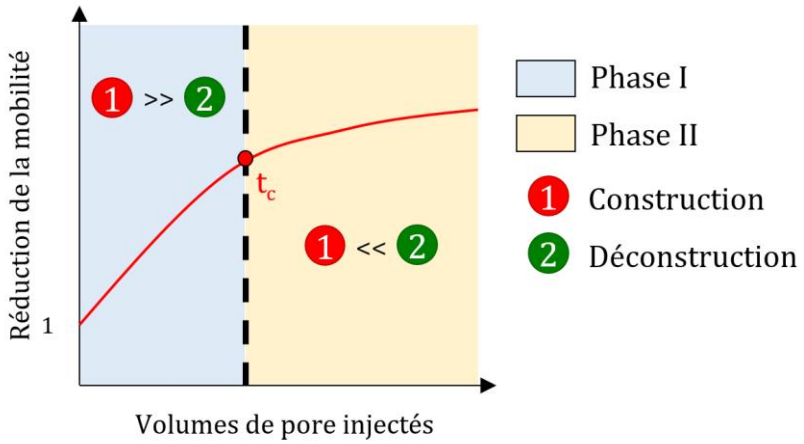


Figure 3.102 - Courbe caractéristique de réduction de mobilité au cours d'une injection et mécanismes de colmatage associés.

3.3.7 Proposition d'un modèle empirique pour évaluer la réduction de perméabilité lors de l'injection d'une suspension de colloïdes au sein d'un milieu poreux.

De nombreux modèles ont été proposées pour évaluer la réduction de perméabilité lors de l'injection d'une suspension de particules ; essentiellement, ces modèles se distinguent selon leur approche, appartenant à l'un des quatre types suivants : phénoménologique, stochastique, les modèles d'analyse de trajectoire ou réseaux.

Les modèles phénoménologiques (Herzig *et al.*, 1970) reposent sur le principe de conservation de masse et sont donc construits à l'aide de courbes de percée. La modélisation physique des mécanismes de dépôts des particules n'est ainsi pas réalisée.

Les modèles stochastiques utilisent une approche probabiliste dans laquelle le milieu poreux correspond à un ensemble de pores initialement ouverts avec deux types d'évènements pouvant se produire (Rege & Fogler, 1988); l'évènement « naissance » qui correspond au blocage d'un pore initialement ouvert, et l'évènement « mort » qui représente la réouverture d'un pore initialement bloqué. Chacun de ces évènements se produisent selon une probabilité déterminée expérimentalement.

Les modèles d'analyse de trajectoire évaluent le champ de vitesse autour de chaque collecteur constituant le milieu poreux et étudient le mouvement des particules en fonction des forces associées au transport des colloïdes dans le fluide. Ces modèles ont permis d'améliorer la compréhension des mécanismes de rétention mais ils reposent sur la modélisation fortement simplifiée des grains (formes sphériques ou cylindriques généralement).

Enfin, les modèles de réseaux sont associés à la représentation simplifiée du milieu poreux par une ensemble de tubes parallèles.

Les modèles existants sont donc nombreux mais reposent généralement sur un nombre important d'hypothèses ou simplifications. Ils sont ainsi difficilement généralisables et nous ont ainsi incité à formuler un modèle reposant sur l'ensemble des observations réalisées et conclusions menées sur nos travaux expérimentaux.

Ainsi, à partir de l'ensemble des informations collectées sur le dépôt, les mécanismes de colmatage et l'étude paramétrique des facteurs d'endommagement, une proposition de modèle empirique pour évaluer la réduction de perméabilité lors de la première phase, *i.e.* le colmatage des seuils de pores par un dépôt stable et irréversible dans les zones d'écoulement intermédiaire, a pu être formulée.

Ce modèle repose sur l'équation suivante :

$$Rm(t) = \frac{QP}{aW^3}t + 1 \tag{3.1}$$

Avec Q le débit en $m^3.s^{-1}$, P la profondeur du milieu poreux en mètres, t le temps en secondes, W la fraction particulaire (sans unité) et a (m^4) un facteur déterminé expérimentalement.

En effet, la description multi-échelle du dépôt au sein du milieu poreux a permis de montrer que l'ensemble de ces éléments représentait un facteur clé dans la réduction de perméabilité du milieu. La figure suivante (Figure 3.103) présente le résultat de la modélisation de cette première phase d'endommagement pour quelques expériences d'injection réalisées dans le cadre de ces travaux. On observe une excellente cohérence entre modélisation et données expérimentales bien que des configurations très différentes en termes de taille de particules, débit et concentration sont présentées.

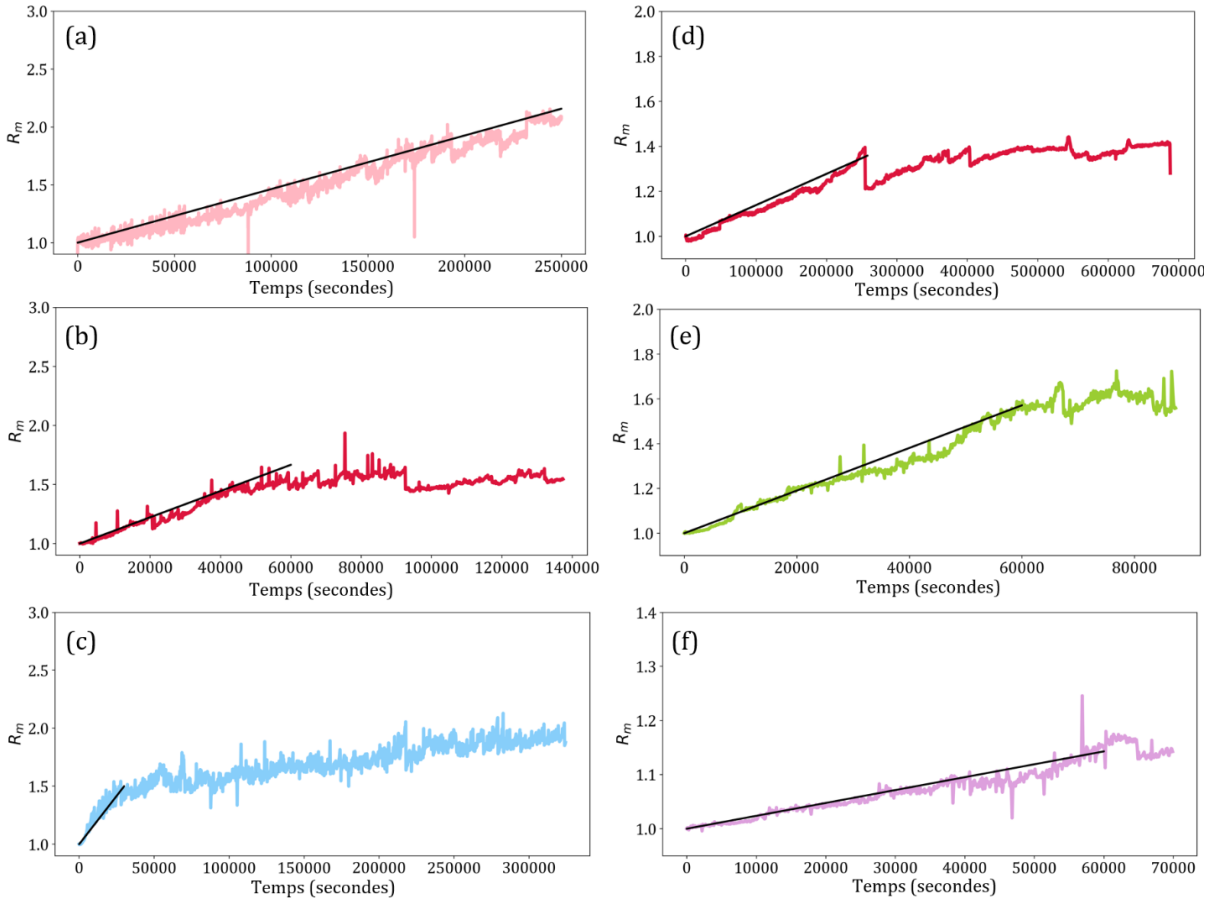


Figure 3.103 - En couleur apparaissent les courbes de réduction de mobilité associées aux expériences (a) M9, (b) M15, (c) M13, (d) PM1, (e) PM120 et (f) PM124 tandis que les courbes en noir correspondent à la modélisation de la première phase d'endommagement par l'équation 3.1. Se reporter au tableau 2.5 pour la correspondance des conditions expérimentales aux expériences.

Par ailleurs, on remarque une relation nette de loi en puissance entre la concentration de la suspension injectée et le facteur a (Figure 3.104) avec un coefficient de corrélation égal à 1.

Cette relation entre l'endommagement, facteurs géométriques et conditions opératoires semble être une première approche correcte de modélisation de la première phase de réduction de perméabilité au sein du milieu poreux. Néanmoins, elle nécessite des développements additionnels afin de mieux définir le facteur a et évaluer l'impact éventuel d'autres paramètres expérimentaux

qui jusqu'ici ne seraient pas pris en compte. Il serait également intéressant de proposer un modèle pour la deuxième phase d'endommagement, plus réduite en termes d'amplitude car associée à des phénomènes physiques additionnels (arrachement, rupture et entrainement des agrégats, …).

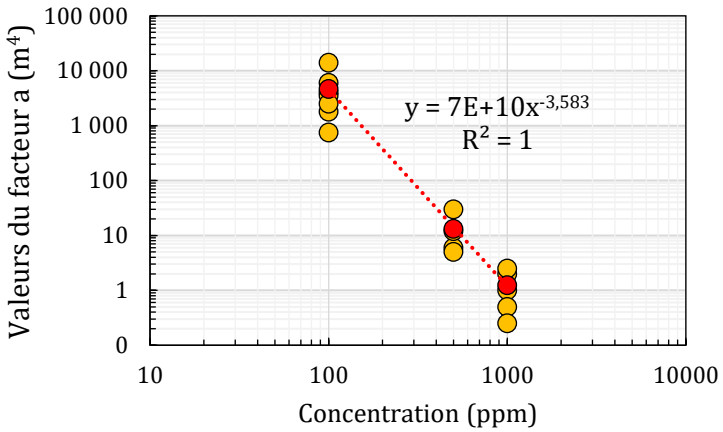


Figure 3.104 - Valeurs du facteur a en fonction de la concentration, obtenu pour différentes expériences menées avec la géométrie G1. En rouge apparaissent les points moyennés et la courbe de tendance associée.

3.4 Géométries différentes : conséquences sur le dépôt et l'endommagement

L'ensemble des observations réalisées précédemment sont associées à la géométrie G1. Afin de confirmer nos analyses sur les mécanismes de dépôt et leurs conséquences sur l'endommagement, des injections ont été réalisées dans des milieux poreux aux géométries différentes (G2 et G3). Parallèlement, l'observation des figures de dépôts au sein de chacune des structures poreuses permet d'appréhender l'impact de la géométrie sur les caractéristiques de l'écoulement et les mécanismes de colmatage et d'examiner ainsi s'ils restent identiques d'une géométrie à une autre.

3.4.1 Géométrie G3

Le milieu poreux associé à la géométrie G3 présente une angularité des grains beaucoup plus importante que celle de la géométrie G1. La tortuosité est relativement élevée (Figure 2.62).

3.4.1.1 Description du dépôt à l'échelle du pore

Bien que la géométrie apparaisse bien différente de celle utilisée précédemment (géométrie G1), l'observation des figures de dépôt à l'échelle du pore révèle des similarités associées aux zones de piège naturellement formées à proximité immédiate des grains. En effet, les grains sont disposés de façon aléatoire et ainsi associés à une distribution complexe des lignes de courant à leur voisinage. La tortuosité qui est inhérente au milieu poreux génère des régions de stagnation dominantes dans lesquelles les particules vont pouvoir être accumulées. Des configurations analogues à celles identifiées dans la géométrie G1 ont pu être observées : à l'entrée d'un pore étroit, dans la zone de traînée en aval d'un grain, au point de stagnation en amont d'un grain ou dans une zone de non-circulation.

Lorsqu'un piège est rempli de particules, la concentration locale est bien plus importante que celle de la suspension injectée. La fraction volumique en particules est haute et le cisaillement

est fort ; les particules de polystyrène subissent alors une agrégation hydrodynamique qui aboutit à la formation de clusters cohésifs de plusieurs dizaines de microns en taille. La figure suivante (Figure 3.105) présente le résultat de cette agrégation pour l'ensemble des configurations rencontrées au sein du milieu poreux G3. La différence importante du niveau de gris permet d'apprécier la densité et compacité des agrégats formés au niveau des zones de collection.

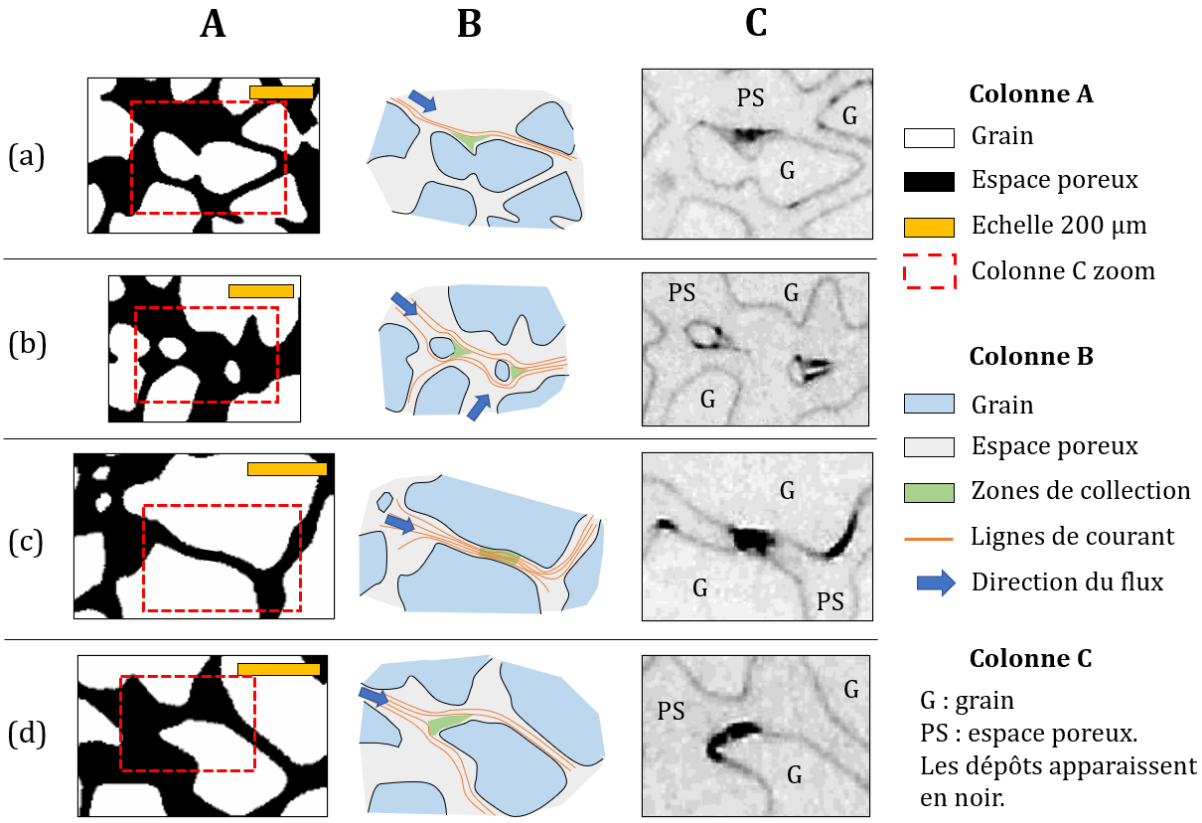


Figure 3.105 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux G3 et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur. Les images sont issues de l'injection K1. (a), (b), (c) et (d) correspondent aux pièges dans une zone de flux faible, en aval des grains, à l'entrée d'un pore étroit et au point de stagnation en amont d'un grain respectivement.

Dans la mesure où les figures de dépôt à l'échelle locale sont analogues à ceux de la géométrie G1, il apparait cohérent d'estimer que les mécanismes de colmatage, *i.e.* la fermeture complète d'un seuil de pore par dépôt multicouche ou par déplacement d'un agrégat préalablement formé, seront également les mécanismes responsables de l'endommagement du milieu poreux ici considéré.

3.4.1.2 Mécanismes de colmatage : dépôts stables et instables

Dans le cas d'une accumulation au seuil d'un pore, la construction progressive d'une multicouche de particules à la paroi peut aboutir au colmatage total de la constriction et ainsi modifier l'écoulement du fluide au voisinage immédiat du seuil.

La série d'injections réalisée avec le milieu poreux G3 permet de montrer que certains seuils de pores sont colmatés par un dépôt compact qui résulte de la formation progressive d'un dépôt de colloïdes à la paroi. Ce mécanisme de colmatage est présent pour l'ensemble des conditions d'injection réalisées, *i.e.* concentration en particules et débit différents (Figure 3.106). Cette

formation sans déstabilisation aboutit à la formation de bouchons permanents qui contribuent fortement à la réduction de mobilité dans la mesure où les chemins d'écoulement initiaux sont perturbés et modifiés. Après l'obturation complète de la constriction par la formation de l'agrégat multicouche, l'écoulement est rendu impossible dans le chemin local considéré.

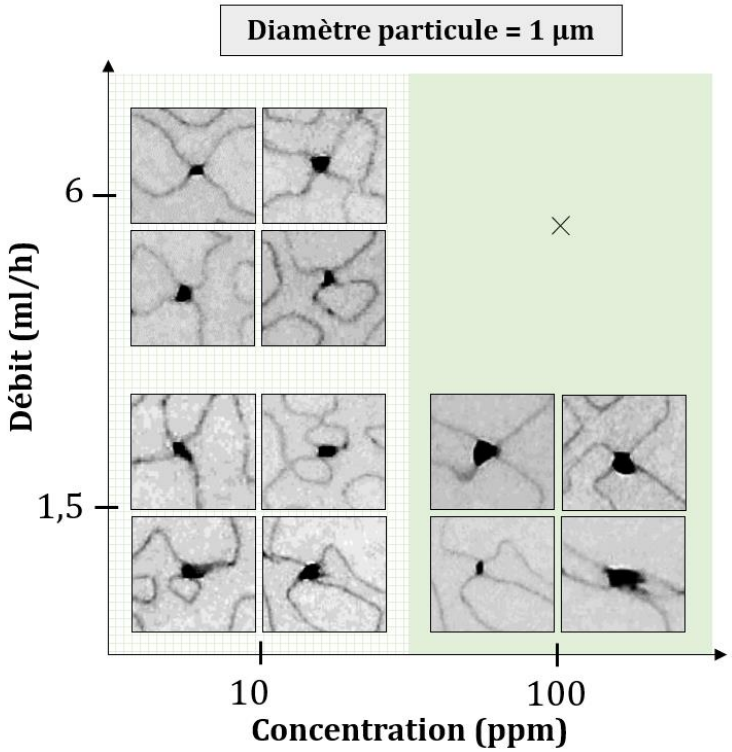


Figure 3.106 - Panorama de seuils de pores colmatés par un mécanisme stable de construction progressive d'un dépôt multicouche.

Le second mécanisme de colmatage des seuils de pore précédemment identifié est le tamisage des agrégats qui résulte de leur formation préalable dans les pièges à proximité des collecteurs puis de leur érosion. De fait, l'observation de la dynamique locale au sein de la géométrie G3 confirme la présence des mécanismes d'arrachement (Figure 3.107) et de tamisage des clusters de particules.

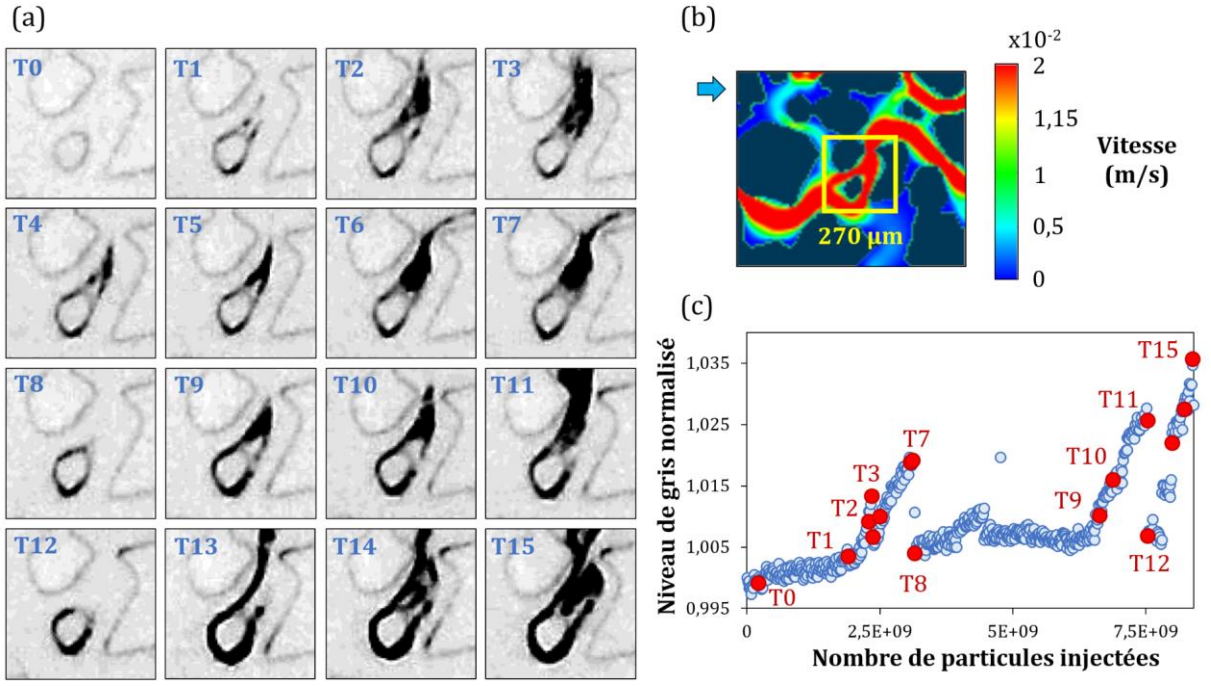


Figure 3.107 - (a) Images en niveau des gris d'une fenêtre de 270 µm x 270 µm de large lors de l'injection à Q = 1,5 ml/h d'une suspension concentrée à 100 ppm (injection K1). Le dépôt apparait en noir. (b) Champ de vitesse simulé de la zone d'intérêt. L'encadré jaune correspond aux images de (a) et la flèche bleue indique le sens de l'écoulement. (c) Evolution du niveau de gris moyen normalisé dans la fenêtre d'observation (a) au cours de l'injection de particules. Toutes les images de (a) ne sont pas indiquées pour une meilleure lisibilité.

Tel qu'observé pour la géométrie G1, l'érosion d'un agrégat formé dans une zone de piège (ici dans la zone de traînée en aval d'un grain) est un phénomène essentiellement présent dans les zones de forte vitesse d'écoulement (Figure 3.107(b)), où l'hydrodynamisme est le régime principal. Une fois le cluster de particules arraché, le piège peut à nouveau être rempli, et le second agrégat à nouveau érodé et emporté par le flux. Cette éventuelle cyclicité est illustrée par la série d'images de la Figure 3.107(a) et (c) où les ruptures abruptes de pente correspondent aux périodes d'érosion de l'agrégat. Bien que l'agrégat constitue un ensemble cohésif, certaines parties du dépôt peuvent ne pas être emportées par l'hydrodynamique locale ; ici, les images T0, T4, T8 et T12 illustrent la croissance du dépôt au point de stagnation en amont du collecteur, celui-ci n'étant pas déstabilisé au cours de l'injection. L'augmentation très rapide du niveau de gris entre T12 et T13 est due à l'arrivée d'un agrégat filamenteux formé préalablement, lui-même arraché et transporté plus en aval dans le milieu poreux.

Eventuellement, les agrégats arrachés peuvent arriver dans certains seuils de pore où ils induisent leur fermeture complète par simple exclusion de taille (Figure 3.108). Le chemin d'écoulement initial est alors perturbé, le flux dévié de sa trajectoire et la perméabilité du milieu réduite par la fermeture de ce seuil.

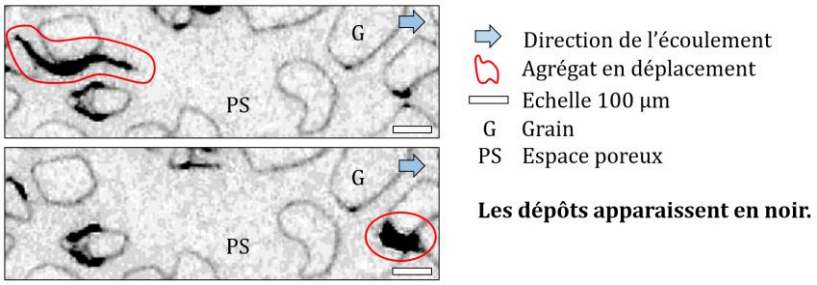


Figure 3.108 - Illustration du mécanisme d'arrachement et de colmatage d'un seuil par le déplacement de l'agrégat érodé lors de l'injection à Q = 1,5 ml/h d'une suspension concentrée à 10 ppm (injection K3).

Ces déplacements d'agrégats au sein du milieu poreux contribuent à déstabiliser le système. Dans le cas où ils participent à la fermeture d'un seuil de pore par tamisage, ils contribuent à réduire la perméabilité du milieu poreux. Le double-rôle des agrégats est à nouveau illustré par les expériences conduites avec le milieu poreux G3.

3.4.1.3 Dépôt à l'échelle macroscopique

La description du dépôt à l'échelle du pore et l'identification des mécanismes réalisés dans les sections précédentes ont permis de montrer que ces derniers étaient analogues à ceux observés dans le cadre des injections avec la géométrie G1. Cependant, afin d'évaluer les potentielles différences avec cette précédente géométrie, il semble approprié d'étudier le dépôt à l'échelle macroscopique.

La figure suivante (Figure 3.109) présente l'évolution de la fraction surfacique du dépôt en fonction du nombre de particules injecté dans le milieu poreux pour trois configurations différentes (débit et concentration initiale d'injection). L'évolution est présentée pour l'ensemble du milieu poreux et les différentes sections associées aux prises de pression intermédiaires (Figure 2.60 pour la correspondance exacte des sections).

Pour les trois configurations, la fraction surfacique du dépôt des différentes sections considérées évolue de façon similaire. Seuls les pourcentages acquis par ce dépôt sont différents. Logiquement, le dépôt est plus important dans la première section que dans celles plus en aval. On remarque que la dernière section (section 5, cercles violets) tend de façon systématique à excéder les valeurs atteintes par les sections intermédiaires au cours de l'injection. Ceci peut être dû aux déplacements d'agrégats formés dans les zones de pièges, arrachés et déplacés dans les zones plus en aval du milieu poreux, *i.e.* la section 5. De plus, l'observation des milieux poreux et des dépôts associés à nombre identique de particules injectés (Figure 3.109(b)) semble indiquer que ces derniers sont plus importants dans la moitié inférieure, ce qui apparait étonnant lorsque l'on considère le champ de vitesse initial associé à cette géométrie (Figure 2.63). En effet, malgré des chemins préférentiels plus marqués, la moitié supérieure du milieu poreux ne présente pas de singularités particulières qui pourraient être associées à des dépôts moindres.

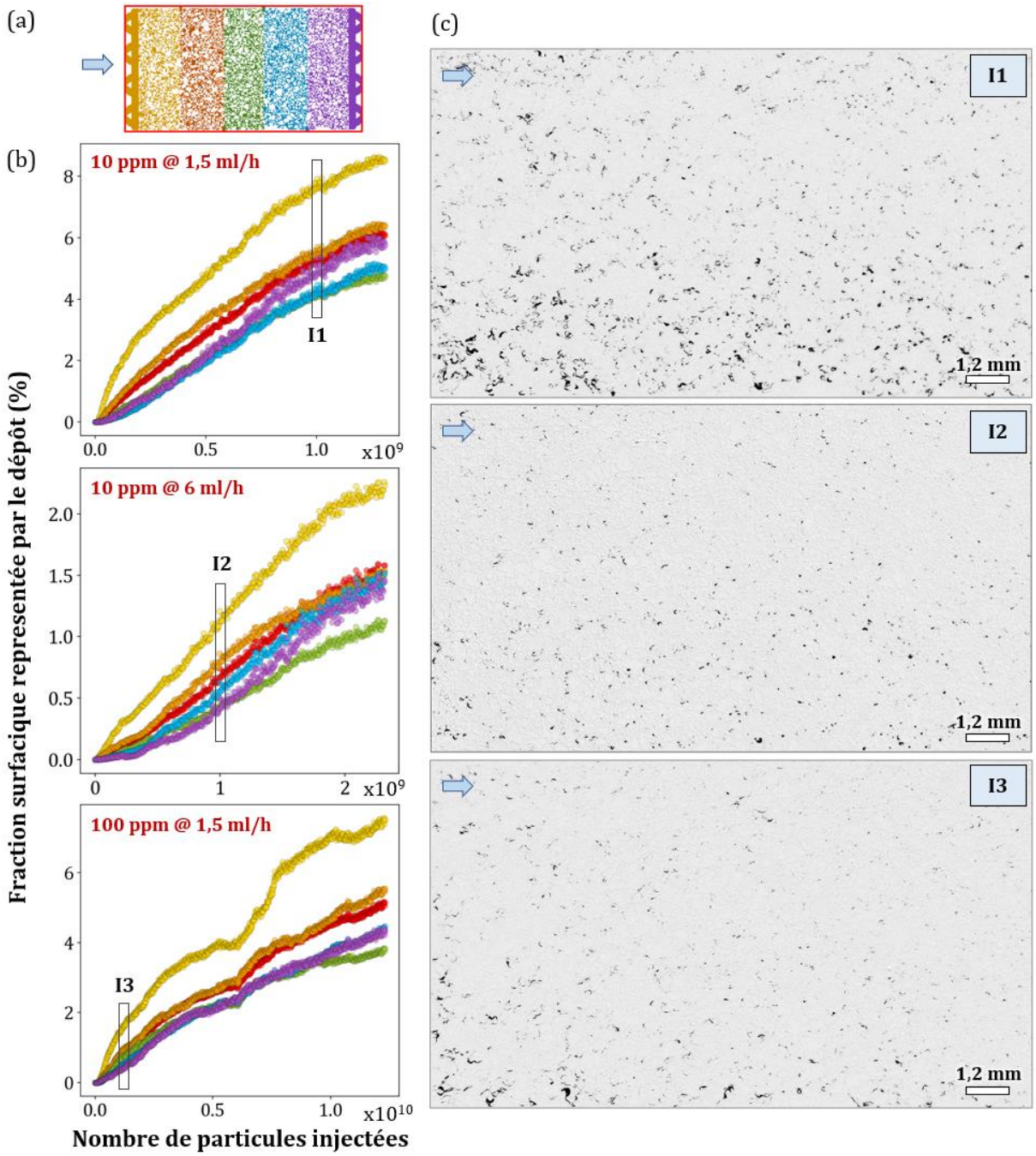


Figure 3.109 – (a) Schéma des différentes sections de mesure de la perte de charge pour le milieu G3. (b) Evolution de la fraction surfacique du dépôt le long du milieu poreux G3 en fonction du nombre de particules injectées pour différentes conditions opératoires spécifiées dans chacun des graphiques (diamètre des particules égal à 1 µm). Les courbes rouges correspondent à la perte de charge globale le long du micromodèle et les autres courbes sont associées aux différentes sections du milieu poreux. (c) Images du milieu poreux pour les trois injections considérées lorsque $1x10^9$ particules ont été injectées. La flèche bleue indique le sens de l'écoulement.

La comparaison des trois configurations indique que le dépôt est plus étendu lorsque la concentration de la suspension et le débit d'injection sont les plus faibles, comme constaté pour les expériences avec le milieu G1. Ainsi, à $1x10^9$ particules injectées dans le milieu, le dépôt représente :

- ~1,2% de l'espace poreux lorsque la concentration est 100 ppm (Q = 1,5 ml/h) ;
- ~2% lorsque la concentration est 10 ppm (Q = 6 ml/h) ;
- ~8% lorsque la concentration est 10 ppm (Q = 1,5 ml/h).

3.4.1.4 Effets de la concentration et du débit sur l'endommagement

La Figure 3.110 présente la réduction de mobilité associée à l'injection d'une suspension colloidale pour les trois configurations présentées précédemment. Pour l'ensemble, la comparaison entre l'allure des courbes de l'endommagement entre la première section (courbes teintes jaunes) et l'ensemble du milieux poreux (courbes teintes rouges) montre une dynamique identique. Ce parallélisme indique que la réduction de mobilité mesurée aux bornes du milieu poreux est principalement due au colmatage sur la première section de ce dernier. Les valeurs atteintes par le coefficient Rm lorque le milieu poreux dans son ensemble est considéré sont altérées par la prise en compte des sections connexes qui ont un effet tampon sur l'amplitude de l'endommagement mesuré.

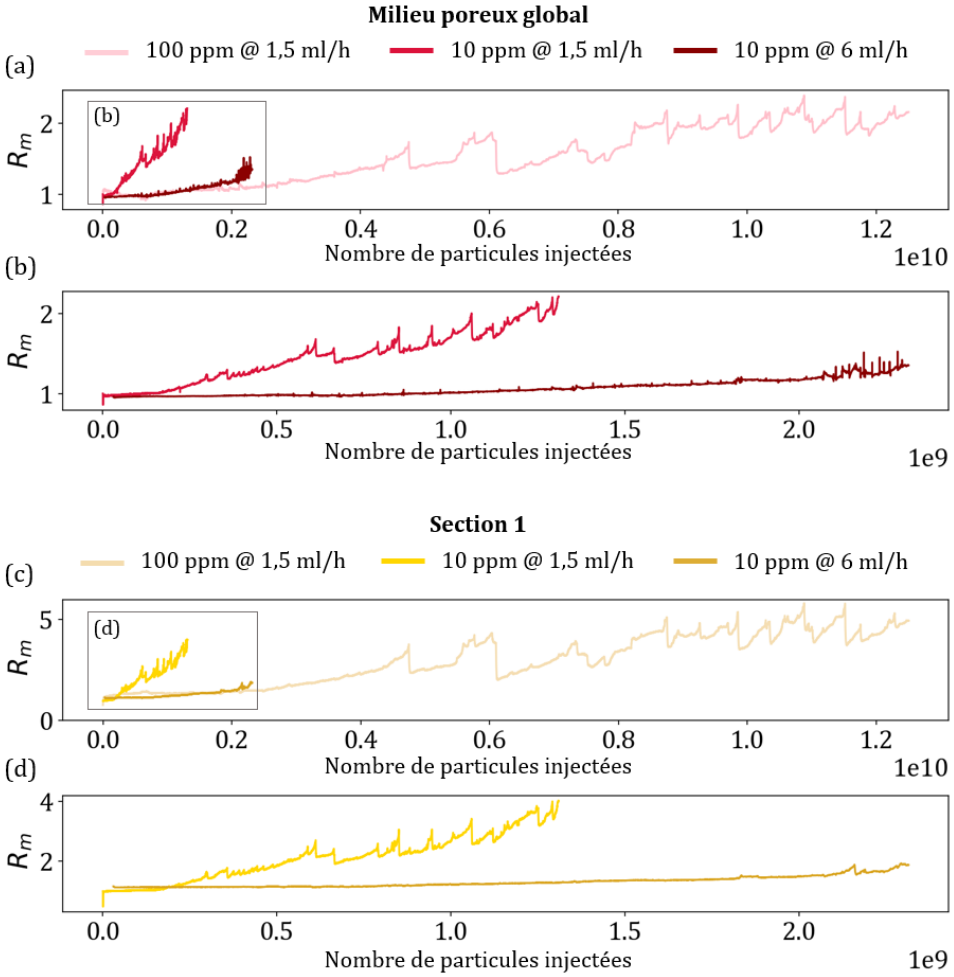


Figure 3.110 - Cinétique des réductions de mobilité observées sur : (a) et (b) l'ensemble du milieu poreux et (c) et (d) la première section du milieu qui correspond à la zone la plus en amont de l'écoulement. (b) et (d) correspondent à un aperçu des encadrés signalés en (a) et (c) respectivement (seules les concentrations à 10 ppm sont représentées).

Lorsque seule la première section est considérée, les valeurs de Rm sont plus hautes. A la fin des injections, le coefficient de mobilité est tel que :

- Rm = 5 lorsque la concentration est 100 ppm (Q = 1,5 ml/h) ;
- Rm = 1,5 lorsque la concentration est 10 ppm (Q = 6 ml/h) ;
- Rm = 4 lorsque la concentration est 10 ppm (Q = 1,5 ml/h).

Toutefois, à nombre équivalent de particules injectées dans le milieu poreux, l'endommagement, *i.e.* la réduction de mobilité, est plus important à concentration de la suspension et débit plus faibles. A $1x10^9$ particules injectées dans le milieu, Rm = 1,12 pour les injections K1 et K4 et Rm = 2,7 pour l'injection K3. Cette distribution est identique à celle observée pour la fraction surfacique du dépôt au sein du milieu poreux.

Ainsi, bien que la géométrie du milieu poreux soit différente, les conclusions sur l'endommagement restent identiques à celles établies pour la géométrie G1. A débit similaire, l'endommagement est plus important à concentration initiale d'injection plus faible. A concentration équivalente mais débit différent, on observe que l'endommagement a lieu plus tard et l'amplitude de cet endommagement est moins important (Rm plus faible).

3.4.2 Géométrie G2

Les deux précédentes géométries présentaient des caractéristiques d'hétérogénéité relativement similaires avec de grands chemins préférentiels et des zones très peu balayées par l'écoulement. La géométrie G2 est différente dans la mesure où la porosité est plus importante ce qui résulte en un champ de vitesse simulé initialement plus homogène, avec une tortuosité moins importante malgré l'angularité des grains toujours présente.

3.4.2.1 Dépôt à l'échelle du pore

A nouveau, l'observation de la géométrie à l'échelle du pore révèle la présence de pièges naturellement présents du fait de l'agencement désordonné des grains. Lorsqu'un écoulement a lieu, la matrice solide génère une distribution complexe des lignes de courant qui induit la création des zones de collection dans lesquelles les particules vont pouvoir être accumulées : à l'entrée d'un pore étroit, dans la zone de traînée en aval d'un grain, au point de stagnation en amont d'un grain ou dans une zone de non-circulation.

Ces zones de collection des colloïdes en écoulement sont analogues à celles identifiées pour les géométries G1 et G3. Lorsque la fraction volumique locale est suffisante, le cisaillement entraine une agrégation hydrodynamique qui aboutit à la formation d'agrégats dont la taille peut atteindre plusieurs dizaines de microns. La Figure 3.111 présente des exemples de clusters de particules formés dans les zones de pièges associés à la géométrie G2 à la suite d'une agrégation hydrodynamique.

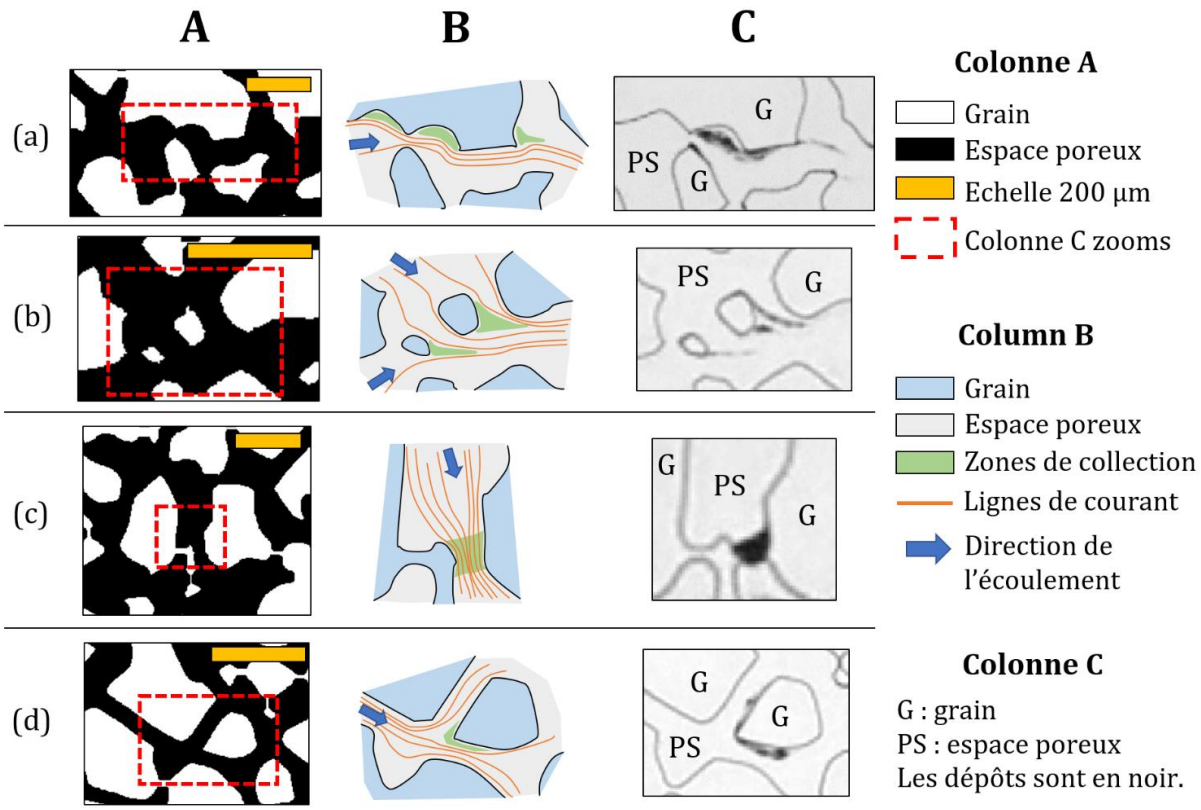


Figure 3.111 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux G2 et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur. Les images sont issues de l'injection L1. (a), (b), (c) et (d) correspondent aux pièges dans une zone de flux faible, en aval des grains, à l'entrée d'un pore étroit et au point de stagnation en amont d'un grain respectivement.

La différence principale avec les autres géométries réside dans la croissance nette d'un gâteau/cake de filtration interne, à proximité de la zone dite « piscine » en amont du milieu poreux (Figure 3.112). Le colmatage de l'espace poreux se poursuit avec l'accumulation progressive d'un très grand nombre de particules en amont des seuils préalablement fermés selon l'un des deux mécanismes précédemment identifiés. Cette accumulation peut être très importante ; dans le cas des expériences L1 et L2, le dépôt associé à ces cakes de filtration atteint plus de 60% et presque 90%, respectivement (Figure 3.112(b)). La croissance de ces figures spécifiques de dépôt indique que l'agencement local des particules dans les seuils initialement colmatés est tel que l'écoulement peut toujours se faire par ce chemin. Le flux est réduit mais se poursuit, permettant au fluide porteur de s'écouler au travers de la nouvelle porosité créée à travers le dépôt tandis que les particules sont retenues en amont par simple exclusion de taille. Un filtre est mis en place de façon interne au milieu poreux ; il possède des propriétés physiques (porosité et perméabilité) qui lui sont propres et différentes de celles du milieu poreux dans lequel la suspension s'écoule. Néanmoins, les moyens expérimentaux mis en place dans le cadre de ces travaux ne permettent pas d'obtenir des informations quantitatives sur les propriétés de ces cakes de filtration.

L'évolution de la fraction surfacique au cours de l'injection appuyée par l'imagerie montre que la construction d'un cake de filtration se fait en deux temps ; la première est relative à la construction du bouchon « socle ». Les particules sont piégées puis sont agrégées par hydrodynamisme, induisant localement la fermeture locale non pérenne de certains seuils. Cette première phase est relativement rapide et correspond ici à l'injection d'environ 2 et $6x10^9$ particules

pour les injections L1 et L2, respectivement. La deuxième phase correspond à l'accumulation progressive des particules en amont des seuils partiellement fermés. Dans la mesure où le fluide est fortement ralenti dans sa progression au sein de ce cake, l'augmentation de la fraction surfacique est plus faible lors de cette phase.

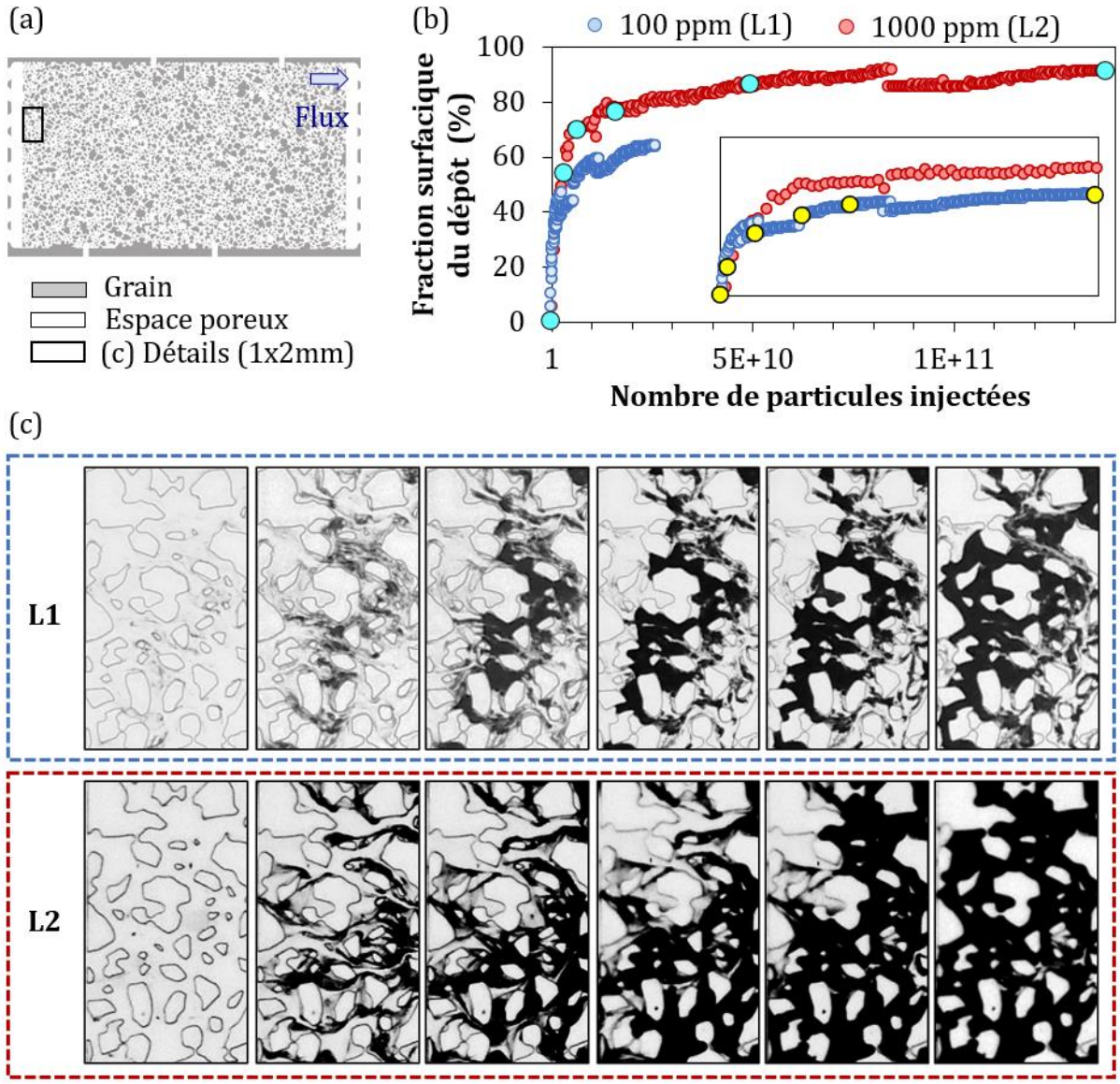


Figure 3.112 - (a) Image binarisée du milieu poreux G2 indiquant la zone de construction d'un cake de filtration interne. (b) Evolution de la fraction surfacique du dépôt au cours de l'injection pour les expériences L1 et L2 menées à Q = 1,5 ml/h, 100 et 1000 ppm respectivement. Les points jaune fluo et bleu fluo correspondent aux séries d'images présentées en (c) où le dépôt apparait en noir.

Le rôle de ces cakes de filtration dans l'endommagement du milieu poreux est complexe. Généralement, on distingue deux cas de figure ; si le cake se développe dans certaines zones du milieu poreux qui sont spatialement séparées, l'écoulement des particules reste possible grâce notamment à la présence de chemins restant libres entre les cakes. Si le cake se forme sur une section complète du milieu (qui peut être la zone d'entrée, au niveau du point d'injection), toutes les particules sont alors filtrées, un cake externe finit par être formé et la perte de charge devient trop importante. Il n'est alors plus possible d'injecter.

Dans le cas des injections réalisées avec la géométrie G2, les cakes internes formés ne représentent pas un danger aussi important que celui d'une fermeture totale et pérenne d'un seuil de pore dans la mesure où ils sont séparés spatialement. La fermeture d'un seuil entraine une redistribution complète des chemins d'écoulement au voisinage local de ce pore tandis qu'un cake de filtration permet un écoulement au sein de la microporosité nouvellement formée. Cependant, l'accumulation de particules est réelle et la vitesse locale du flux est drastiquement réduite au sein de la matrice du cake, entrainant une réduction de la perméabilité importante qui sera étudiée dans une prochaine section.

3.4.2.2 Dépôt à l'échelle macroscopique

La présence d'un cake de filtration participe à l'augmentation importante de la surface du dépôt au sein du milieu poreux. Cet effet est d'autant plus marqué lorsque de multiples cakes de filtration interne au milieu croissent, ces figures ayant été observées lors des injections réalisées avec la géométrie G2. L'étude macroscopique du milieu poreux et les profils de distribution (Figure 3.113) permettent d'identifier clairement les zones de croissance de ces cakes.

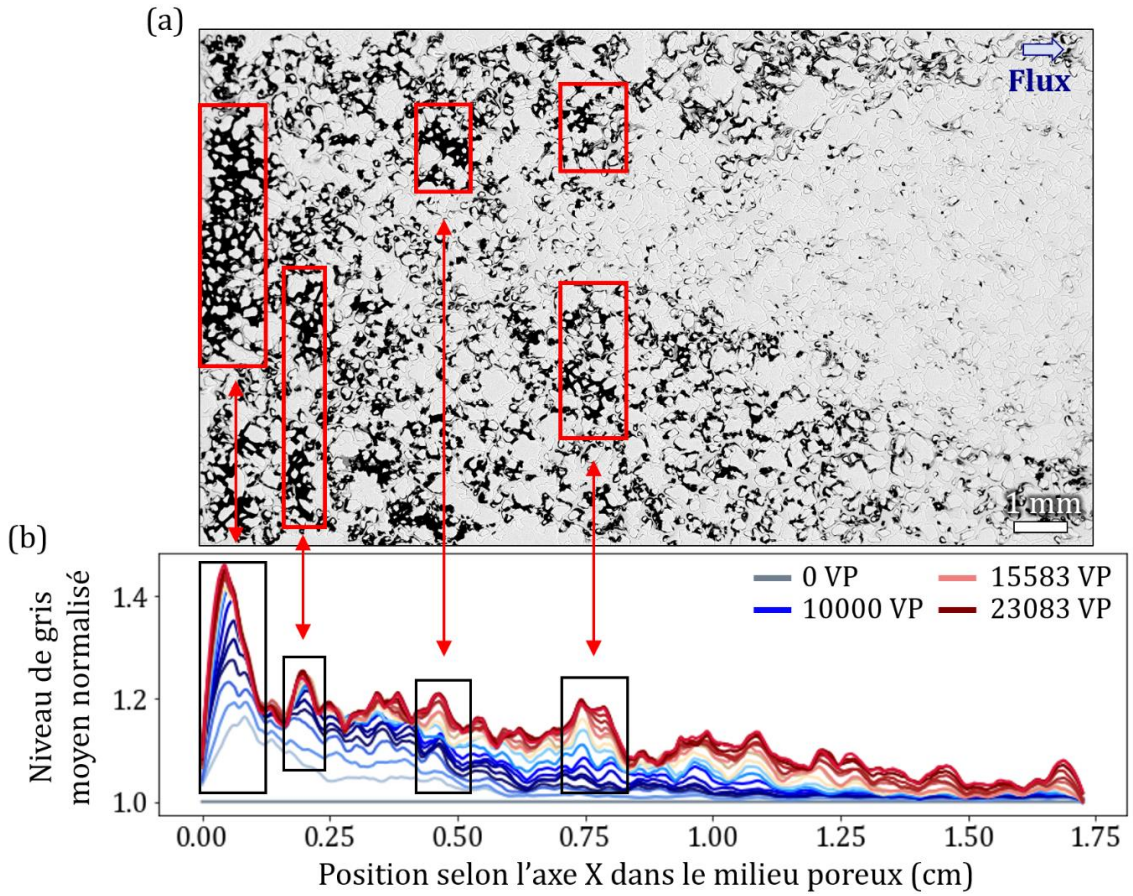


Figure 3.113 - (a) Image en niveau de gris du milieu poreux après 19333 volumes de pore (VP) injectés lors de l'injection à Q = 1,5 ml/h d'une suspension concentrée à 1000 ppm (L2). (b) Profils de distribution des dépôts au sein du milieu poreux selon l'axe perpendiculaire à l'écoulement. L'intervalle entre chaque profil tracé correspond à l'injection de 1250 VP soit ~$6{,}8 \times 10^9$ particules.

La dynamique associée à la croissance de chacun des pics relatifs à un cake identifié dans le milieu poreux est différente de celle identifiée précédemment (section 3.1). Certains pics montraient un déplacement progressif unidirectionnel vers l'extrémité aval du milieu poreux associé

à l'accumulation de particules dans les zones de pièges. Ici, l'observation des profils de distribution permet d'identifier la période d'accumulation des colloïdes en amont du bouchon « socle » qui n'est pas colmaté de façon pérenne mais permet plutôt l'écoulement ralenti du fluide. Ainsi, le pic entre 0 et 0,13 cm correspond à la formation d'un cake avec une accumulation clairement marquée par le décalage et croissance du pic vers la gauche, soit l'amont du milieu poreux. L'étendue de ces constructions particulaires étant moins importante, la dynamique n'est pas aussi bien marquée pour les cakes formés dans le milieu poreux.

La forme des profils de dépôt reste essentiellement constante au cours de l'injection, indiquant ainsi que les effets hydrodynamismes d'arrachement des agrégats et de transport de ces derniers au sein du milieu poreux restent minimes à l'échelle macroscopique.

3.4.2.3 Effet de la concentration sur l'endommagement

L'observation locale et macroscopique du milieu poreux G2 lors de l'injection L2 a permis de montrer que le dépôt est important, avec la construction locale de cakes de filtration où les particules sont accumulées en nombre. L'étude des mesures de pression permet d'évaluer l'influence de ce dépôt sur l'endommagement du milieu, *i.e.* la réduction de mobilité (Figure 3.114).

L'amplitude de l'endommagement est très importante ; dans le cas des deux expériences réalisées avec cette géométrie, le coefficient Rm est égal à approximativement 10, 5 et 4 pour les sections 1, 2 et 3, respectivement, à la fin des injections. Ces valeurs sont élevées, bien plus que celles mesurées dans le cadre des injections réalisées avec les milieux poreux associés aux géométries G1 et G3. A l'échelle macroscopique, la simulation du champ de vitesse initial indique que l'écoulement se fait globalement en tout lieu du milieu poreux (Figure 2.63) ; il est plus difficile de distinguer de grandes zones différentes en termes d'alimentation particulaire tel que cela peut l'être pour les géométries G1 et G3. Les particules sont amenées par le flux dans l'ensemble du milieu poreux et le dépôt est alors très important dans la mesure où tous les pièges locaux (échelle du pore) sont amenés à être remplis par des particules. L'imagerie appuie cet aspect, le dépôt étant très important. Cette relative « homogénéité » du milieu poreux permet donc indirectement d'étendre l'ampleur de l'endommagement.

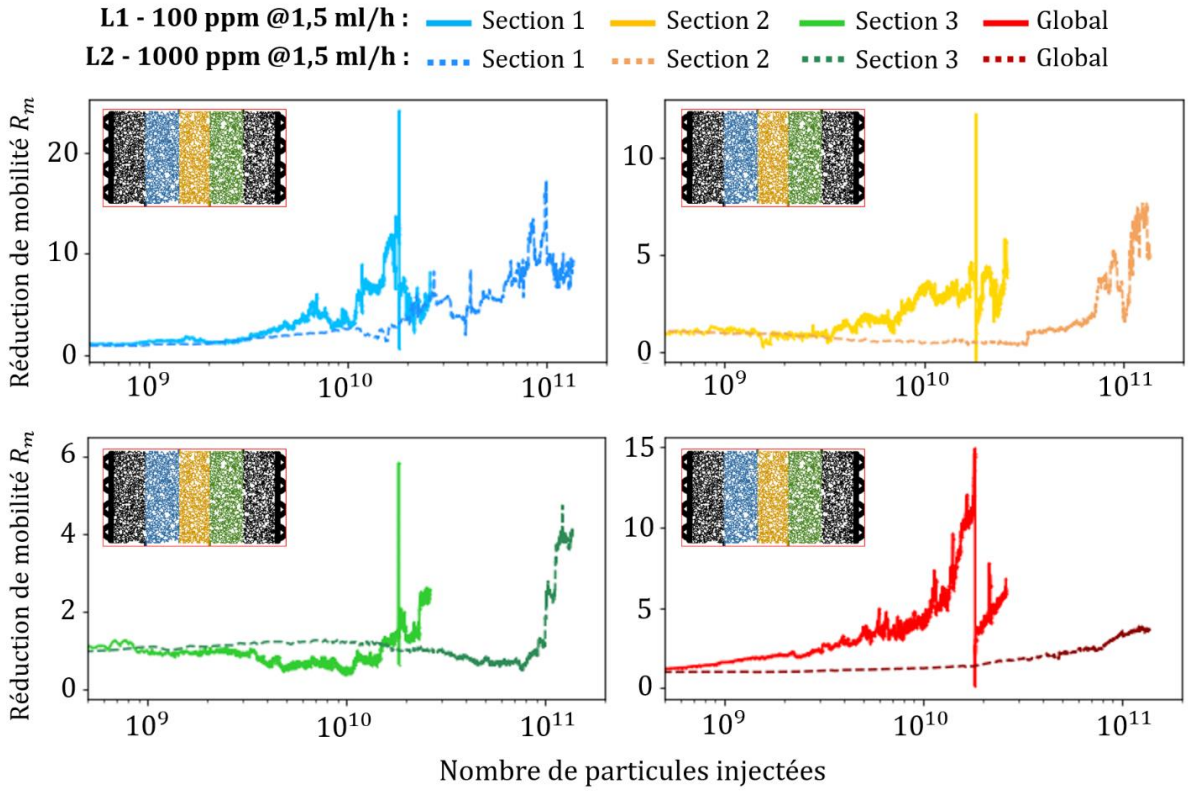


Figure 3.114 - Cinétique des réductions de mobilité pour l'ensemble des sections (se référer à la section Matériels et méthodes pour la correspondance) et le milieu poreux global. Attention, l'axe des abscisses est présenté ici en échelle logarithmique pour une meilleure lisibilité.

La comparaison des cinétiques permet d'observer une succession cohérente et identique à celle observée dans le cadre des injections dans le milieu G3. L'endommagement se propage de la zone amont (section 1) à la zone aval (sections 2 puis 3) de façon progressive, à mesure que l'injection de la suspension de particules se poursuit. A nouveau, les valeurs atteintes par le coefficient Rm lorque le milieu poreux dans son ensemble est considéré sont altérées par la prise en compte des sections correspondant à l'aval qui ont un effet tampon sur l'amplitude de l'endommagement mesuré. Par ailleurs, on remarque l'allure bien plus chaotique du Rm mesuré pour chacune des sections que celle mesurée aux bornes du milieu poreux. Ceci reflète notamment les phénomènes plus locaux d'arrachement et déplacement des dépôts tel que les agrégats.

Finalement, il est intéressant de montrer que l'endommagement est plus important lorsque la concentration de la suspension injectée est plus faible. Cet effet est identique à celui observé pour les expériences réalisées avec les géométries G1 et G3. Ainsi, à $1x10^{10}$ particules injectées dans le milieu poreux, le coefficient de réduction de mobilité est tel que :

- Rm ~ 5 lorsque la concentration est 100 ppm (Q = 1,5 ml/h) ;
- Rm = 1,25 lorsque la concentration est 1000 ppm (Q = 1,5 ml/h).

3.4.3 Comparaison des résultats obtenus avec les différentes géométries

L'analyse du réseau poreux associé à chacune des géométries utilisées dans cette étude a permis de montrer que les caractéristiques de transport des particules et d'écoulement sont relativement différentes (champ de vitesse, tortuosité, rapport T/C). Pour rappel :

- La tortuosité est relativement équivalente pour G1 et G2 mais plus élevée pour G3 (2.2.2 Cartographie de la tortuosité) ;

- La vitesse moyenne d'écoulement est plus élevée pour G1 et G2 tandis qu'elle est plus faible pour G3 ;
- Le champ de vitesse est plus homogène pour G2, indiquant que l'apport particulaire est distribué plus uniformément sur l'ensemble du milieu poreux. La distinction entre chemins préférentiels d'écoulement, zones de vitesse intermédiaire et espaces d'écoulement quasi-nul est plus nette pour les géométries G1 et G3 (2.2.3 Simulations champ de vitesse).
- Les seuils de pores sont en moyenne bien plus grands pour la géométrie G1 que pour les géométries G2 et G3 ce qui indique que les rapports T/C tendent vers des valeurs plus basses pour ces deux dernières géométries (Tableau 2.10).

La comparaison des endommagements mesurés pour les trois géométries selon des conditions expérimentales identiques permet d'évaluer l'impact des variations géométriques (Figure 3.115). Lorsque la concentration de la suspension injectée est égale à 100 ppm, l'endommagement est plus important avec la géométrie G2. A nombre de particules injectées équivalent, 1.10^{10} particules par exemple, le coefficient de réduction de mobilité atteint 4 pour G2 tandis qu'il est inférieur à 2 pour les géométries G1 et G3. Notons que le Rm est sensiblement équivalent entre G1 et G3. De façon identique, lorsque la concentration est égale à 1000 ppm, l'endommagement est plus important pour G2 que G1. Bien qu'un nombre plus important de mesures serait nécessaire pour confirmer ces observations, il semble que la géométrie plus uniforme du réseau poreux de G2 conduise à une réduction sévère des capacités d'écoulement d'un fluide en son sein lorsque celui-ci est chargé en colloïdes.

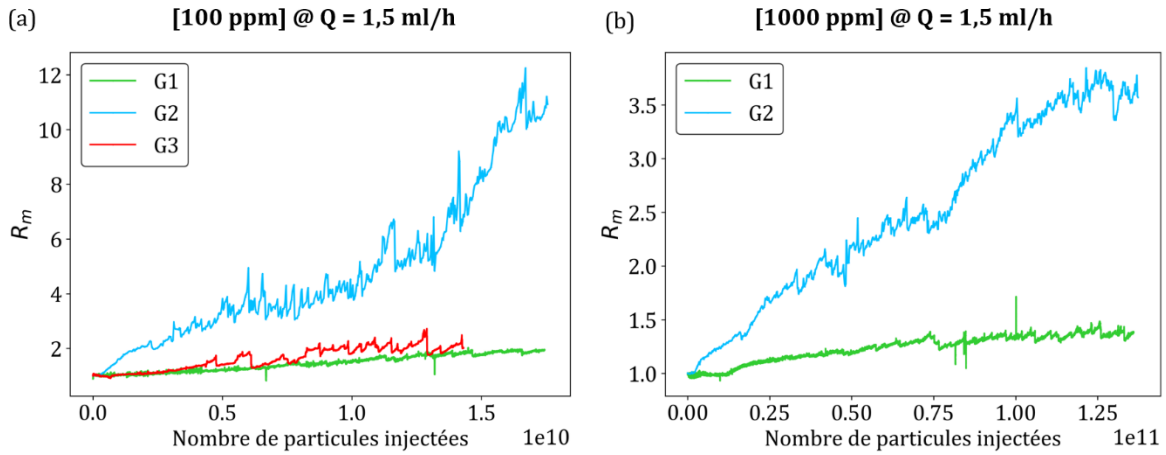


Figure 3.115 - Evolution des réductions de mobilité au cours du temps pour les injections réalisées avec des particules de polystyrène carboxylé de diamètre 1µm à concentration de (a) 100ppm (expériences M9, L1 et K1 pour les géométries G1, G2 et G3 respectivement) et (b) 1000 ppm (expériences PM17 et L2 pour les géométries G1 et G2 respectivement). Le débit d'injection est Q = 1,5 ml/h.

Les observations réalisées à l'aide de cette comparaison des géométries permettent de souligner à nouveau l'importance de considérer différentes échelles ; à l'échelle du pore, il existe différents types de pièges géométriques permettant l'accumulation préférentielle de particules qui peuvent ensuite être agrégées et mener à un colmatage. Cependant, l'alimentation de ces pièges reposent sur la géométrie plus globale du milieu poreux : une distribution uniforme des pores, grains et seuils conduit le fluide à être uniformément réparti sur l'ensemble. Tous les pièges sont alors concernés par l'apport de particules et deviennent finalement la source d'un colmatage qui perturbe l'écoulement. Dans le cas où il existe des régions de différentes vitesses d'écoulement, cette alimentation particulaire est initialement dirigée vers les zones de plus grande perméabilité,

i.e. là où l'écoulement est le plus facile. Les zones de flux plus faible sont relativement épargnées par le colmatage même si celui est bien présent (fermeture de seuils de pore de façon stable et pérenne) et induit une forte réduction de perméabilité. Ultérieurement, les zones de flux nul peuvent être concernées par ce colmatage ; une fois les zones préférentielles colmatées, le flux est redirigé vers les espaces poreux initialement épargnés qui sont devenus avec le temps à nouveau des zones d'écoulement plus important.

3.5 Conclusion

A l'issue de ce chapitre, de nombreux éléments de réponse ont été obtenus sur la problématique de dépôt/colmatage au sein d'un milieu poreux et les mécanismes qui y sont associés. Dans un premier temps, l'analyse du réseau poreux associé à chacune des géométries utilisées dans cette étude ainsi que la simulation numérique du champ de vitesse et des lignes de courant ont permis d'identifier les différents régimes d'écoulement (diffusion, convection, hydrodynamique) au sein du milieu poreux et les zones de pièges dans lesquelles les particules pouvaient être accumulées. L'imagerie a ensuite permis d'identifier et décrire les deux processus d'endommagement principaux d'un milieu poreux perméable (Figure 3.116).

Lorsqu'une particule arrive dans une zone d'écoulement, elle peut être stockée dans un piège géométrique, dont l'existence est due à la disposition aléatoire des grains au sein de l'espace poreux. Ceci induit au fur et à mesure de l'injection une surconcentration locale en particules. Selon le régime d'écoulement local, le cisaillement peut être suffisamment important pour provoquer l'agrégation de ces particules accumulées. Si l'agrégat est formé dans une zone de l'espace poreux où l'écoulement est intermédiaire, le résultat de cette agrégation peut mener à la réduction progressive d'un seuil et au pontage définitif et stable de ce dernier. L'impact sur la réduction de perméabilité est alors majeur. Lorsque l'agrégat est formé dans une zone d'écoulement préférentiel, il peut éventuellement être arraché et transporté plus en aval. Le colmatage d'un seuil de pore peut alors avoir lieu sous la forme de tamisage simple (un objet de taille important se retrouve bloqué par exclusion géométrique). Enfin, dans les zones de diffusion, aucun colmatage majeur n'a pu être observé, les particules sont éventuellement accumulées dans les zones de piège mais sans être agrégées. Le déplacement des colloïdes est alors régi par le mouvement Brownien associé à leur nature, et d'autres effets éventuels telle que la sédimentation si ces colloïdes résident longtemps dans ces zones de collection.

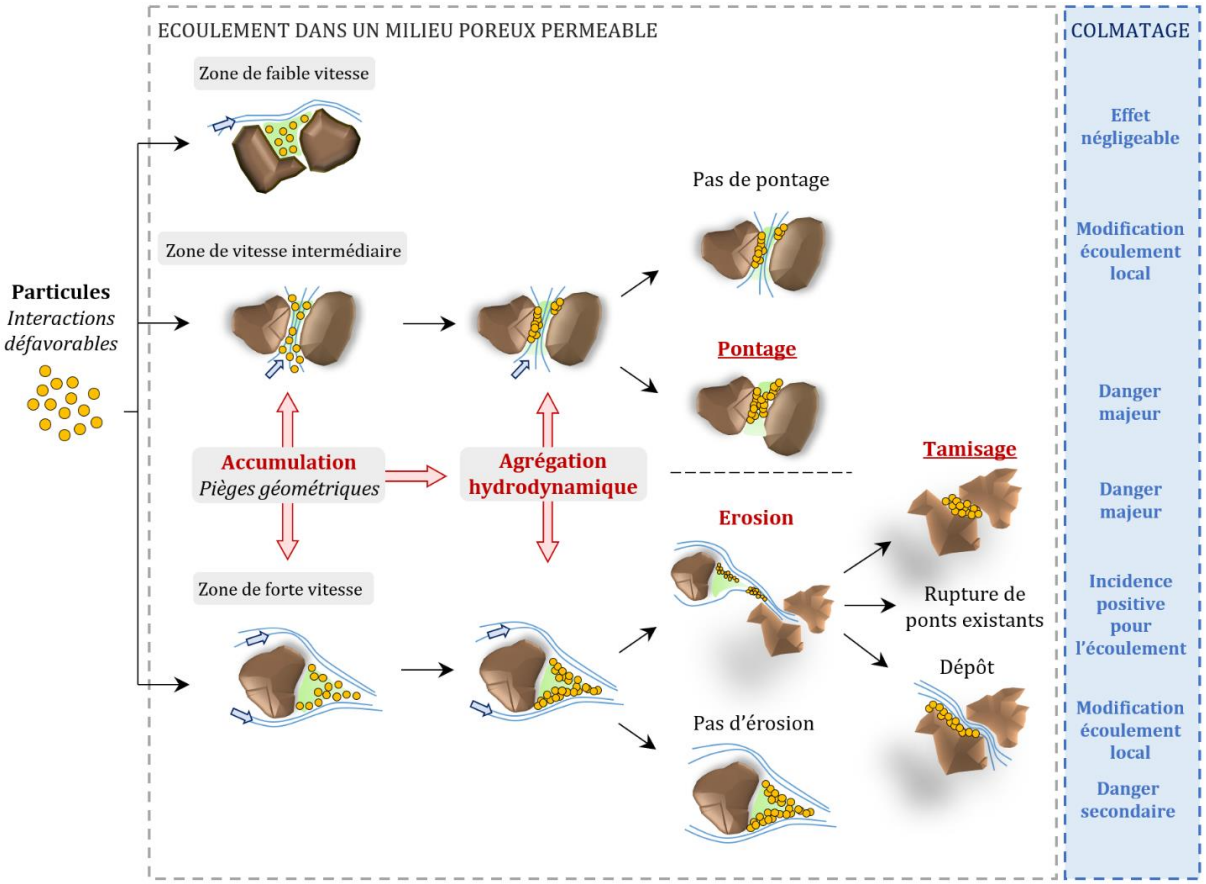


Figure 3.116 - Descriptif schématique des étapes menant au colmatage éventuel d'un milieu poreux lorsqu'une suspension de particules s'y écoule. Les deux mécanismes finaux sont soulignés.

Il apparait ainsi que l'agrégation hydrodynamique des particules est le phénomène majeur responsable du colmatage dans les conditions de cette étude. Ce phénomène provoque le colmatage du milieu selon deux mécanismes principaux : le tamisage de clusters mobiles et le pontage progressif de seuils par formation in situ d'agrégats. Sans cette agrégation favorisée par les conditions de l'injection, aucun autre facteur n'est susceptible de provoquer un tel colmatage. Il est aussi important de noter que les mécanismes identifiés ont lieu dans le cadre de conditions de mise en place entièrement différentes de celles avancées dans des études antérieures. Ils résultent principalement d'un couplage entre fort débit d'injection et une géométrie complexe favorisant une augmentation locale de la fraction solide en particules et non pas d'un rapport T/C favorable au dépôt, d'une concentration élevée ou d'interactions chimiques favorables au développement d'un agrégat.

Cette étude permet ainsi d'apporter de très nombreux éléments de caractérisation des mécanismes de colmatage dans un milieu poreux 2D hétérogène.

Le couplage entre imagerie et mesures de pression nous a permis dans un second temps d'évaluer les effets de ce colmatage sur la réduction de perméabilité conduisant à l'endommagement du milieu poreux. L'allure de réduction de mobilité correspond à celle d'une loi en puissance avec une première phase où le mécanisme principal est celui de la fermeture des seuils de pores par construction progressive d'un agrégat aux parois tandis que la deuxième phase correspond à une période d'instabilité du système plus forte dans la mesure où les agrégats sont formés et peuvent être déplacés dans le milieu.

Pour les trois géométries utilisées dans cette étude, l'amplitude finale de cet endommagement est la plus importante lorsque le débit et la concentration de la suspension sont les plus faibles. En effet, plus ces deux paramètres sont élevés, plus rapidement se forment les agrégats mobiles qui accélèrent la transition de la première phase d'endommagement, qui est la plus sévère, vers la deuxième phase, qui a un effet plutôt atténuateur.

Cette étude a également souligné la nécessité de considérer différentes échelles d'observation afin de comprendre l'influence de chacun des paramètres sur la dynamique locale et globale. Les phénomènes à l'échelle du pore, du réseau de pores ou bien du milieu poreux peuvent avoir un impact majeur ou mineur, ce dernier pouvant évoluer avec la temporalité. Il apparait ainsi nécessaire de poursuivre les investigations à l'aide d'outils différents afin d'assurer le continuum des échelles d'observations (Figure 3.117).

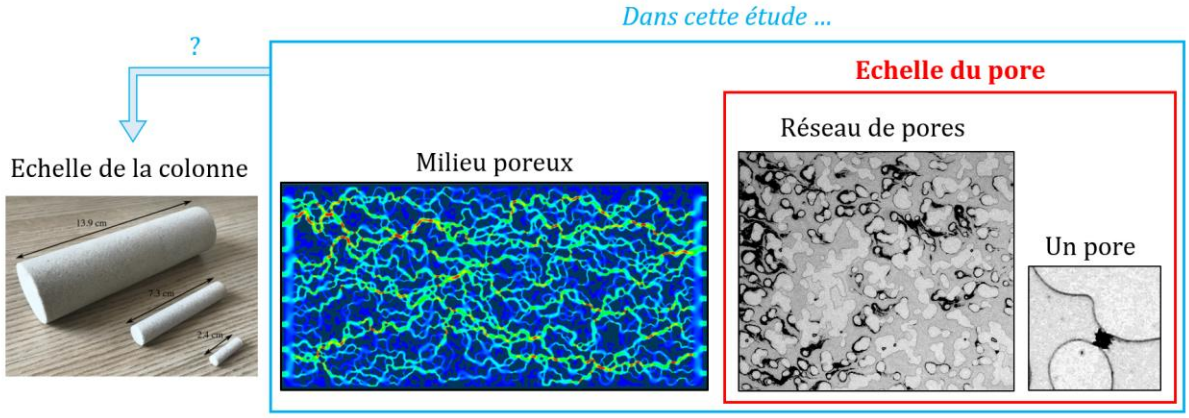


Figure 3.117 - Schéma représentatif de différentes échelles études.

Le chapitre suivant fait ainsi l'objet d'expériences supplémentaires permettant d'apporter des éléments de réponse additionnels à la problématique de colmatage en milieu poreux.

Chapitre 4 : Validation sur des systèmes réalistes et apports pour la géothermie

Sommaire

4.1 Vers un fluide réel et un milieu poreux plus représentatif 167
4.1.1 Injection d'une suspension d'illites 167
4.1.1.1 Observation à l'échelle du pore : pièges et agrégation hydrodynamique 167
4.1.1.2 Mécanismes de colmatage : pontage progressif et tamisage éventuel des seuils de pore 168
4.1.1.3 Endommagement du milieu poreux G3 par une suspension d'illites 171
4.1.2 Injection d'une suspension de tensioactif 172
4.1.3 Injection d'une suspension de polystyrène dans un milieu reconstitué 173

4.2 Réflexion sur les solutions de remédiation 176
4.2.1 Etat des lieux sur les moyens de remédiation 176
4.2.2 Injection à fort débit continue ou alternative 177
4.2.4 Co-injection avec une suspension d'éléments biodégradables 178
4.2.5 Injection alternée de fluides filtrés et non filtrés 178
4.2.6 Conclusion sur les propositions de procédés de remédiation 179

Lever les verrous scientifiques et techniques associés au colmatage est un élément clé pour développer et pérenniser les installations en géothermie. L'étude expérimentale menée dans ces travaux sur des milieux poreux 2D ont permis d'identifier les facteurs prédominants dans les processus de colmatage menant à l'endommagement. Ici, nous nous intéressons aux résultats obtenus lors de la phase expérimentale associée à des systèmes plus réalistes, *i.e.* le fluide avec des particules d'illites et le milieu poreux constitué de sable. L'analyse ainsi réalisée permet d'extrapoler et de valider les précédentes conclusions obtenues à partir des travaux en microfluidique avec des colloïdes modèles. Dans un second temps, nous développons une réflexion sur des solutions potentielles de remédiation et recommandations quant aux mesures qui pourraient être prises afin d'anticiper ce phénomène délétère pour les opérations de géothermie.

4.1 Vers un fluide réel et un milieu poreux plus représentatif

Dans cette section, nous présentons les résultats obtenus lors de l'injection d'une suspension d'illites dans le milieu poreux G3 ainsi que ceux obtenus lors de l'injection d'une suspension de polystyrène dans un massif sableux reconstitué. Nous présentons également quelques éléments issus de travaux IFPEN sur l'injection de tensioactifs dans le milieu poreux G1.

4.1.1 Injection d'une suspension d'illites

Tel que pour les particules de polystyrène, les interactions interparticulaires entre illites et avec la matrice solide sont négatives (2.1.3 Particules d'argiles) ; dans les conditions physico-chimiques associées à notre étude, les colloïdes se repoussent entre eux et une barrière énergétique s'oppose à l'agrégation naturelle des particules d'argiles. Cependant, bien que la nature des particules en suspension soit différente, l'observation du milieu poreux conforte les conclusions précédemment apportées sur la vie d'une suspension particulaire lorsque celle-ci s'écoule à forte vitesse à travers une matrice constituée de nombreux obstacles.

4.1.1.1 Observation à l'échelle du pore : pièges et agrégation hydrodynamique

Les observations à l'échelle du pore révèlent des mécanismes de dépôt similaires à ceux précédemment identifiés ; les particules d'illites arrivent au sein du milieu poreux et peuvent être accumulées dans les zones de pièges géométriques définies par la disposition aléatoire des grains. Ainsi, la figure suivante (Figure 4.118) présente les différentes configurations dans lesquelles les particules sont piégées : dans le sillage de grains solides, aux points de stagnation, dans les régions sans écoulement, à la confluence de deux voies d'écoulement ou à l'entrée d'un seuil de pore étroit. A nouveau, il est cohérent de retrouver ces schémas d'accumulation dans la mesure où ces régions sont générées par la géométrie du milieu poreux. Une fois accumulées, et si les forces hydrodynamiques locales sont suffisamment importantes pour surmonter la barrière électrostatique associée à la nature des particules d'illites, une agrégation hydrodynamique a lieu. Ainsi, bien que les interactions soient répulsives entre particules d'argiles lorsque celles-ci sont en suspension, la combinaison d'une forte fraction locale à un cisaillement fort aboutit à la formation d'agrégats au sein du milieu poreux et dont la forme est liée à la configuration du piège (colonne C de la Figure 4.118).

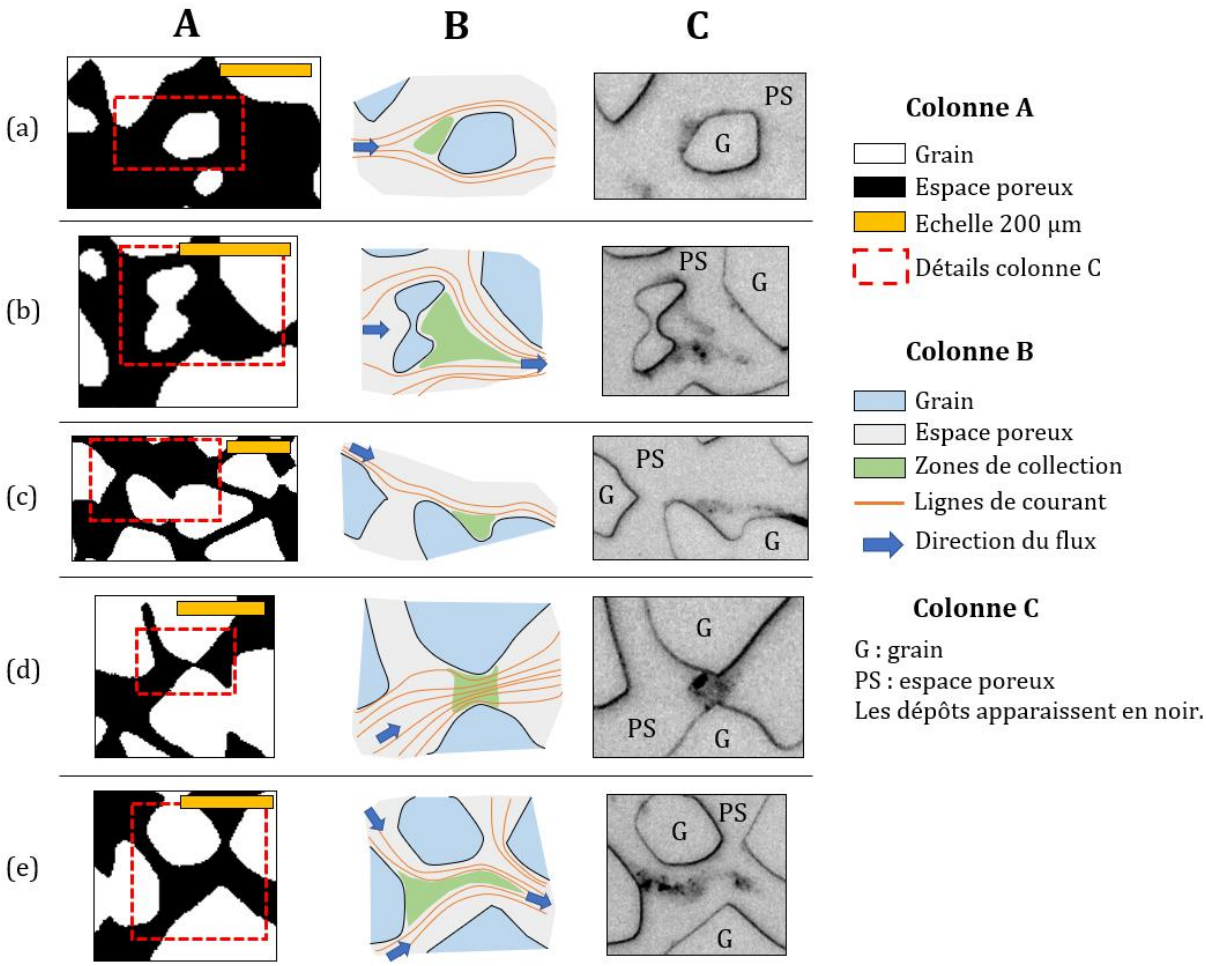


Figure 4.118 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges. Les images sont issues de l'injection K5. (a), (b), (c), (d) et (e) correspondent aux pièges au point de stagnation en amont d'un grain, en aval d'un grain, dans une zone de flux faible, à l'entrée d'un pore étroit et à la confluence de deux écoulements locaux, respectivement.

Dans la mesure où les schémas d'accumulation apparaissent identiques et que la formation d'agrégats a lieu au sein du milieu poreux, il semble cohérent d'émettre l'hypothèse selon laquelle les mécanismes de colmatage soient similaires à ceux précédemment observés malgré la nature différente des particules en suspension. Ces mécanismes sont en effet dépendant principalement de l'hydrodynamique.

4.1.1.2 Mécanismes de colmatage : pontage progressif et tamisage éventuel des seuils de pore

L'observation des mécanismes valide la précédente hypothèse. En effet, dans les zones de vitesse intermédiaire, la formation d'un dépôt multicouche progressif et stable peut aboutir à la fermeture complète d'un seuil de pore (Figure 4.119(a)). L'évolution du niveau de gris moyen au sein de la fenêtre d'observation est progressive selon trois phases :

- Dans un premier temps, le seuil n'est pas affecté par un dépôt (image T0). Les illites circulent dans l'espace poreux sans accumulation visible. Dans le cas de l'exemple présenté dans ce manuscrit, cette phase est relativement longue (366 ml de suspension ont été injectés soit $3{,}78.10^{14}$ particules dans le milieu poreux avant T0) ;

- La phase de construction du dépôt aux parois du seuil de pore a lieu entre T1 et T7 (Figure 4.119(a)) avec une pente ascendante pour l'évolution du niveau de gris (Figure 4.119(b)). Pendant cette seconde phase, 1.10^{14} particules sont injectées dans le milieu poreux ce qui apparait comme un nombre très important de particules mais qui reste cohérent par rapport à la très faible taille (50-200 nm) des particules d'illites. L'imagerie permet de montrer que la croissance des dépôts se produit de part et d'autre du seuil avec une réduction progressive du seuil qui finit par être colmaté ;

- Enfin, une fois fermé, l'écoulement par ce seuil de pore n'est plus permis et affecte directement la perméabilité du milieu poreux. L'évolution du niveau de gris est nulle, avec un plateau qui indique que les particules ne sont plus accumulées. Le dépôt ne progresse plus.

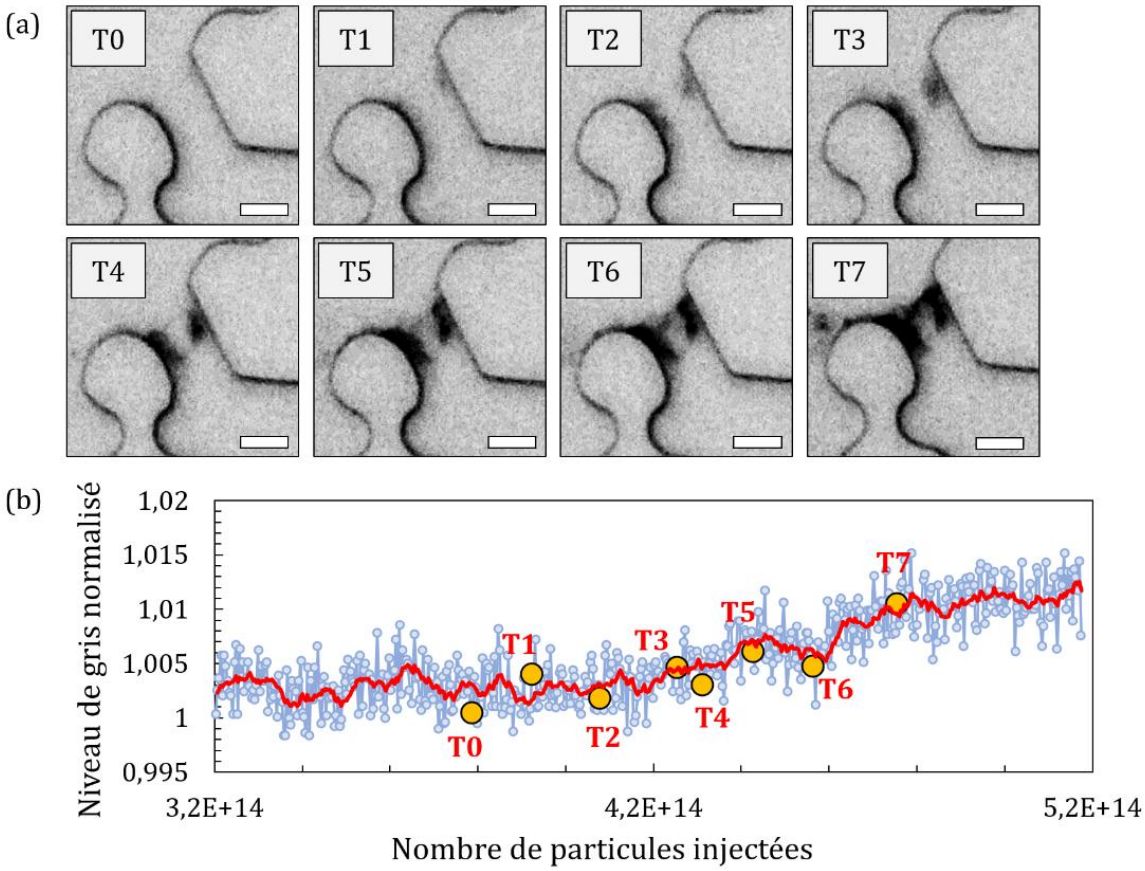


Figure 4.119 - (a) Illustration du phénomène de colmatage par fermeture progressive et stable d'un seuil de pore (expérience K5). La barre d'échelle correspond à 40 µm. (b) Evolution du niveau de gris dans la fenêtre d'observation présentée en (a) au cours de l'injection de la suspension de particules.

L'observation du champ de vitesse montre qu'il s'agit d'une zone de vitesse d'écoulement intermédiaire, à proximité d'un chemin préférentiel mais la zone n'est pas directement située dans ce dernier. L'alimentation en particules est ainsi à la fois suffisante pour assurer un apport en colloïdes permettant la construction du bouchon mais aussi tel qu'aucune déstabilisation de la zone n'a lieu, permettant la fermeture pérenne du seuil.

Parallèlement à ce premier mécanisme, lorsque l'accumulation préférentielle de particules d'illites se produit dans les zones de pièges à proximité des collecteurs dans des zones de forte vitesse d'écoulement, l'observation de la dynamique locale révèle l'apparition du phénomène

d'érosion. Une fois la formation d'agrégats achevée, ces derniers restent soumis à un cisaillement important si l'écoulement se poursuit dans le milieu poreux. Ils peuvent alors être érodés et déplacés de leur position initiale puis transportés plus en aval dans le milieu poreux. Cette érosion et transport d'agrégats peut aboutir au colmatage d'un seuil. En effet, le cluster de particules peut atteindre plusieurs centaines de microns et, par simple exclusion géométrique, obstruer une restriction comme illustré entre les images à T0 et T1 (Figure 4.120).

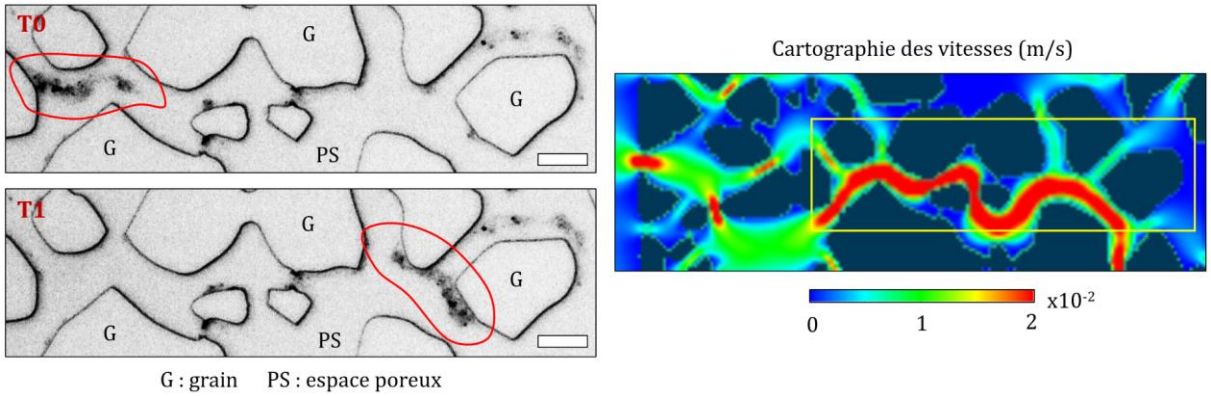


Figure 4.120 - Illustration du mécanisme de colmatage par déplacement d'un agrégat puis tamisage. La barre d'échelle correspond à 100 µm. Le champ de vitesse initial de la zone de formation de l'agrégat et de l'environnement proche figure également à droite des images en niveau de gris. T0 et T1 sont séparées par 15 min.

La simulation du champ de vitesse initial dans le milieu poreux indique que ce mécanisme de colmatage par tamisage a eu lieu dans une zone correspondant initialement à un chemin préférentiel d'écoulement. Cette observation apparait cohérente avec le processus même de construction et ensuite d'arrachement dans la mesure où les forces hydrodynamiques sont localement suffisantes pour entrainer l'érosion d'un agrégat et son déplacement plus en aval. Ce transport d'agrégat n'aboutit pas nécessairement au colmatage d'un seuil situé plus loin dans le milieu poreux ; le cluster peut draper un grain sans conséquence majeure pour la réduction de mobilité, ou bien simplement être évacué du milieu poreux.

Les travaux menés par Raies *et al.* (2023), utilisant cette même suspension d'argiles, ont permis de montrer le dépôt en surface des argiles autour des grains de quartz (Figure 4.121, droite) et l'orientation préférentielle dans le sens de l'écoulement des rubans d'illites (agrégation des feuillets d'argiles entre eux) (Figure 4.121, gauche). Ces résultats valident nos observations effectuées à l'échelle du pore lors de l'injection de la suspension d'illites au sein du milieu G3 (accumulation préférentielle dans des pièges, formation d'agrégats dont la forme est associée à la direction de l'écoulement).

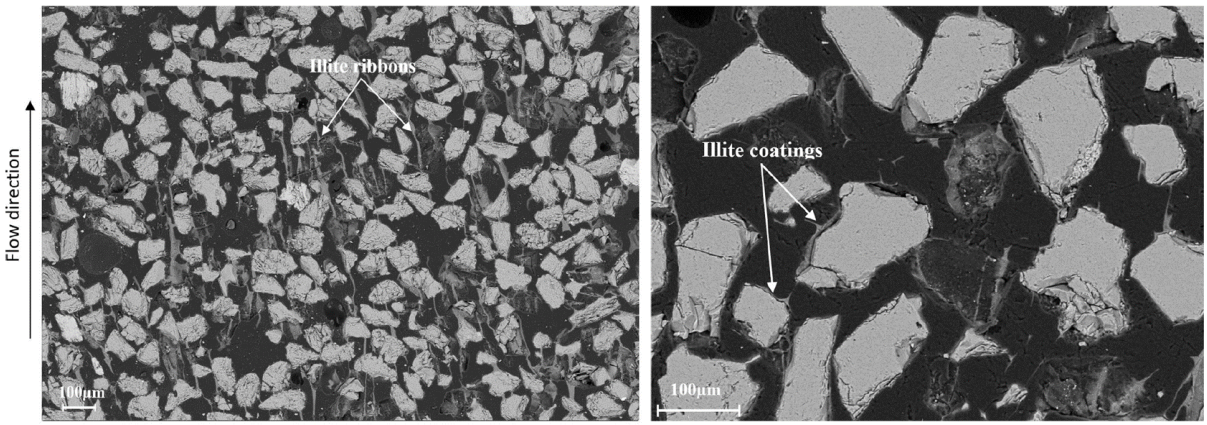


Figure 4.121 - Images MEB du milieu poreux faiblement endommagé après 1 heure (à droite) et après 20h (à gauche) d'injection d'illites (Raies *et al.*, 2023).

4.1.1.3 Endommagement du milieu poreux G3 par une suspension d'illites

L'imagerie associée à la simulation du champ de vitesse a permis de montrer que les zones de dépôt et les mécanismes de colmatage associés à l'injection d'une suspension de particules d'illites sont identiques à ceux identifiés avec les particules de polystyrène.

Dans le cadre des travaux menés précédemment avec les particules de polystyrène, et notamment l'influence de la taille de particules sur la cinétique de colmatage, nous avons montré que plus celle-ci était petite (diamètre de plus en plus petit), plus le nombre de particules nécessaire pour induire la dynamique de réduction de perméabilité était important. Ainsi, les particules d'illites ayant un diamètre compris entre 50 et 200 nm, nous émettons l'hypothèse selon laquelle l'endommagement nécessite un nombre très important de particules avant que celui-ci ne soit effectif en termes de réduction de mobilité. Par ailleurs, bien que non vérifié, les particules d'illites ne sont pas sphériques mais se présentent plutôt sous la forme de feuillets. Cet aspect de forme pourrait exercer une influence sur la cinétique de réduction de perméabilité, *i.e.* l'accélérer ou la ralentir.

Les mesures de perte de charge permettent d'appréhender l'impact du transport et dépôt de ces particules d'illites sur la réduction de mobilité (Figure 4.122).

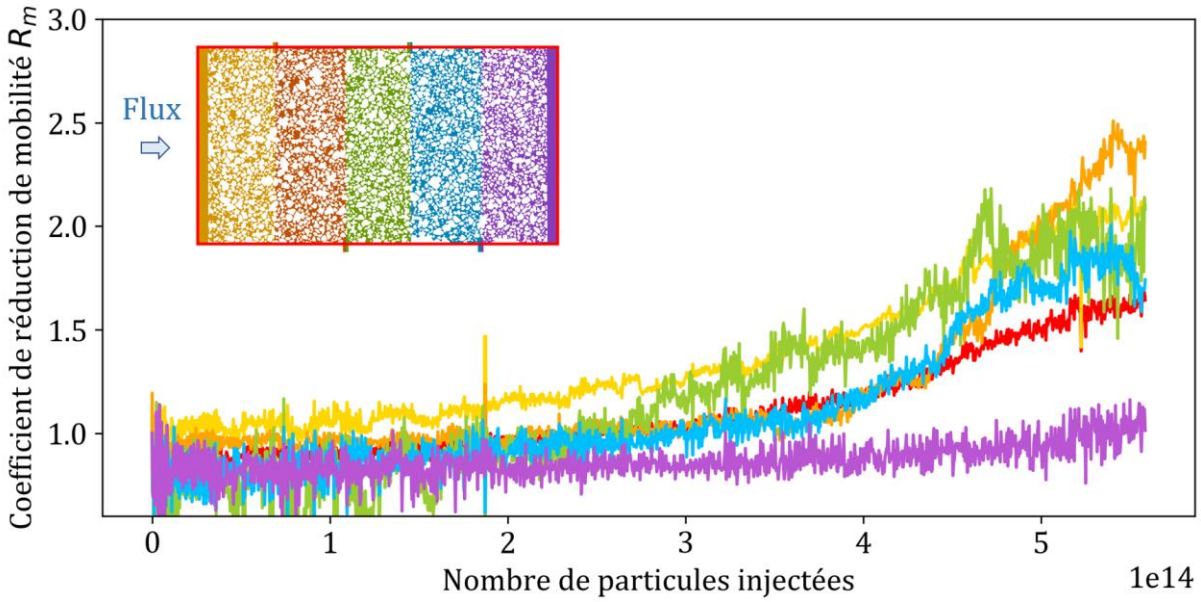


Figure 4.122 - Cinétiques de réduction de mobilité associées aux différentes sections du micromodèle représentées dans l'insert (se référer à la section Matériels et méthodes pour les dimensions des sections). La courbe rouge correspond à la perte de charge globale.

Bien que les particules injectées soient petites et le milieu poreux perméable (rapport T/C compris entre 80 et 1250 environ en considérant une particule de diamètre égal à 120 nm), l'injection de la suspension provoque une réduction de mobilité significative puisque Rm = 1,5 après l'injection de 6.10^{14} particules d'illites dans le milieu poreux. L'endommagement se propage de la zone amont (section 1) aux sections plus en aval du milieu poreux (sections 2 à 5). A nouveau, le Rm mesuré pour chacun des sections apparait relativement plus chaotique (allure en dents de scie) que celui mesuré aux bornes du milieu poreux. Cette dynamique reflète notamment les phénomènes plus locaux d'arrachement et déplacement des dépôts tels que les agrégats qui peuvent de façon soudaine colmater un seuil et ainsi engendrer des changements importants dans les chemins d'écoulement.

On remarque par ailleurs que l'allure de cet endommagement est similaire à celles observées dans le cas des injections de suspensions de particules de polystyrène. Cette observation souligne à nouveau la similarité des mécanismes à l'œuvre (collection, agrégation hydrodynamique avec colmatage éventuel) qui régissent le dépôt et la réduction de mobilité dans les conditions d'injection de cette étude et ce peu importe la nature des particules en suspension.

4.1.2 Injection d'une suspension de tensioactif

Dans le cadre de travaux réalisés par Zaineb Trad en 2019 au sein d'IFPEN et portant sur l'étude du transport et de la filtration de solutions de tensioactif en milieux poreux, la formation d'objets cohésifs au sein de l'espace poreux a pu être mise en évidence. Cette étude est particulièrement pertinente dans la mesure où les opérateurs en géothermie peuvent être amenés à injecter des produits similaires tels que des inhibiteurs de corrosion.

Pour ces travaux, un tensioactif simple (le bis(2-ethylexyl sulfosuccinate) de sodium ou AOT) est injecté dans un milieu poreux 2D identique à celui utilisé dans le cadre de nos travaux (géométrie G1). L'injection de cette solution (0,24 g/l d'AOT, 15 g/l NaCl) a abouti à la formation de gros dépôts de l'ordre de la centaine de microns et conduisant à une réduction de perméabilité importante du milieu poreux. Cette observation était initialement surprenante dans la mesure où la

solution injectée contient des vésicules de tensioactif de quelques dizaines de nanomètres seulement ; le rapport T/C est donc très important.

Cependant, l'observation à l'échelle du pore a permis de montrer que la formation de larges objets avait lieu au niveau des zones de collection à proximité immédiate des grains (Figure 4.123).

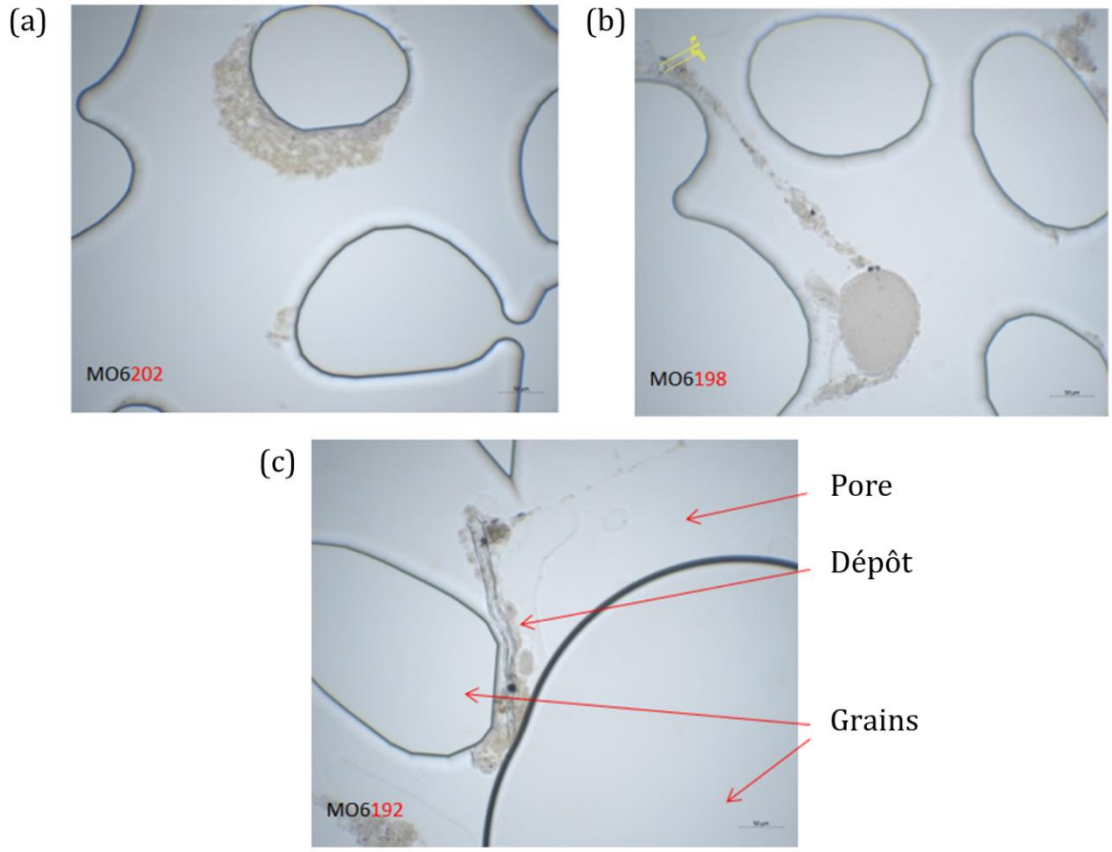


Figure 4.123 - Dépôts en milieu poreux (géométrie G1) selon différentes configurations : (a) en amont des grains, (b) dans les zones de stagnation en aval d'un grain et (c) au niveau d'un seuil de pore (travaux Zaineb Trad, 2019).

L'accumulation préférentielle des vésicules dans les pièges formés par la disposition des grains dans le milieu poreux permet d'augmenter la concentration locale. Une fois accumulées, les vésicules de tensioactif restent soumises à un cisaillement local qui peut être important et suffisant pour induire une transition de phase de ces vésicules. L'agrégation de ces vésicules permet la formation de nouvelles structures (phases lamellaires) qui peuvent engendrer une réduction de perméabilité importante, de façon identique aux microsphères de polystyrène.

Ces travaux valident nos observations sur les mécanismes de formation d'agrégats au sein du milieu poreux et la conséquence du colmatage associé à ces clusters particulaires sur la réduction de perméabilité.

4.1.3 Injection d'une suspension de polystyrène dans un milieu reconstitué

Afin de poursuivre les études sur l'effet de la concentration et travailler avec un milieu poreux plus réaliste, nous présentons ici les résultats des expériences menées avec les massifs de sable 1 et 2 (2.3.3 Caractérisation du milieu poreux). Pour rappel, les milieux poreux associés à ces massifs sont relativement homogènes avec une porosité $\varphi = 40\%$, un volume de pore VP = 7ml et une perméabilité K = 5 Darcy. Les deux figures suivantes (Figure 4.124 et Figure 4.125) présentent les réductions de mobilité obtenues lors de l'injection d'une suspension de particules de polystyrène

carboxylé (diamètre 1 µm) selon deux concentrations différentes mais à débit équivalent (Q = 1 L/h).

Dans les deux cas présentés, la progression de l'endommagement suit une succession identique, également observée lors des injections en micromodèle ; la réduction de mobilité est très forte pour la première section, dès le début de l'injection de la suspension, tandis que l'amplitude du Rm mesurée aux bornes du milieu poreux est plus faible puisque les sections en aval contribuent à diminuer fortement la moyenne globale. Bien que les concentrations soient relativement peu élevées, *i.e.* 10 et 100 ppm, le coefficient de réduction de mobilité atteint des valeurs très importantes. Par exemple, celui-ci vaut 2,5 et ~3 lorsque 5.10^{12} particules ont été injectées dans le milieu poreux pour les expériences menées avec les massifs 1 et 2, respectivement.

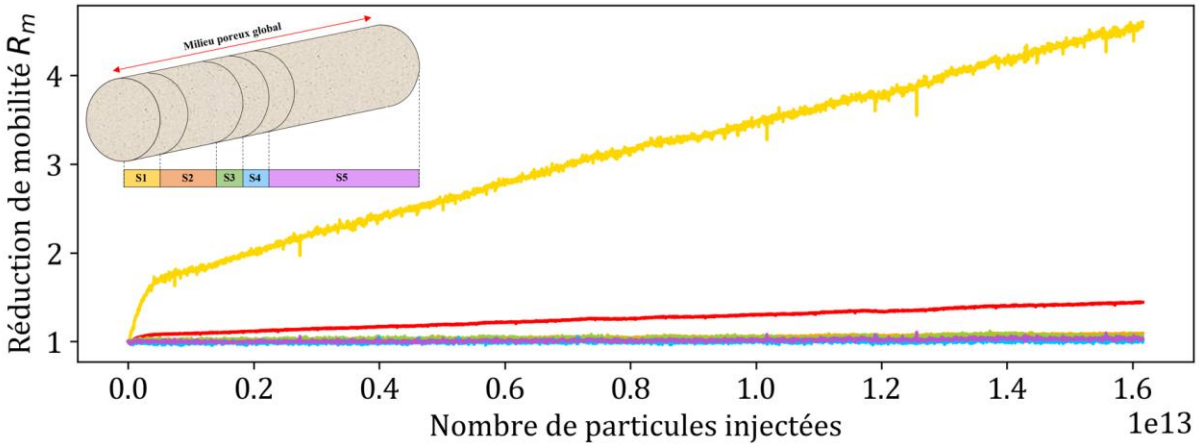


Figure 4.124 - Cinétique de réduction de mobilité obtenue pour le milieu poreux dans sa globalité et pour différentes sections (se référer au chapitre 2 pour la correspondance exacte) lors de l'injection d'une suspension de particules de polystyrène carboxylé à concentration de 100 ppm et Q = 1 L/h dans le massif 1.

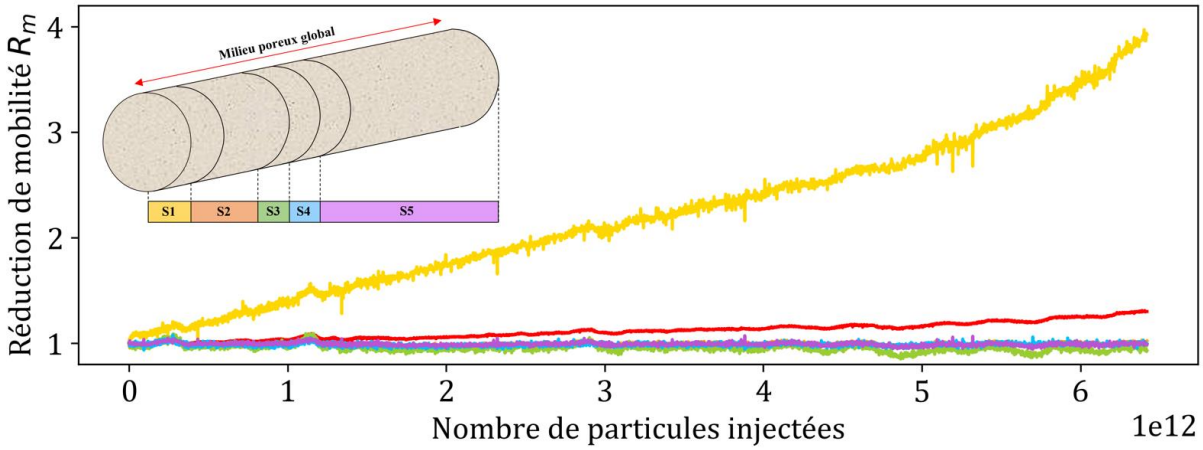


Figure 4.125 - Cinétique de réduction de mobilité obtenue pour le milieu poreux dans sa globalité et pour différentes sections (se référer au chapitre 2 pour la correspondance exacte) lors de l'injection d'une suspension de particules de polystyrène carboxylé à concentration de 10 ppm et Q = 1 L/h dans le massif 2.

La comparaison des cinétiques d'endommagement (Figure 4.126) suggère un effet de la concentration de la suspension injectée identique à celui relevé lors des travaux menés à l'aide des dispositifs microfluidiques. En effet, à partir de 4.10^{12} particules injectées dans le milieu poreux, l'endommagement est d'autant plus important que la concentration de la suspension est faible. Cette observation est confortée par une pente ascendante plus forte pour l'injection à 10 ppm ; en poursuivant l'injection, cette dynamique serait probablement plus marquée. Il est probable que la cinétique d'endommagement soit toujours dans la première phase et que la transition vers la

deuxième phase ne soit pas encore amorcée, alors que celle-ci a été relativement rapide pour l'injection de la suspension concentrée à 100 ppm (injection Massif 1). Cette transition a eu lieu vers $0{,}05.10^{13}$ particules injectées dans le milieu poreux.

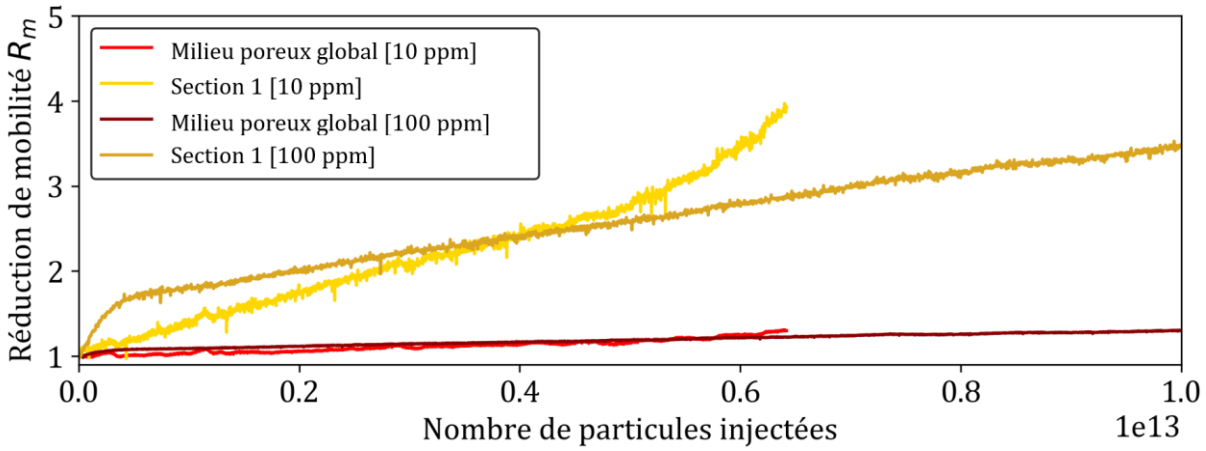


Figure 4.126 - Comparaison des cinétiques d'endommagement pour les injections Massif 1 et Massif 2. En jaune apparaissent les courbes associées à la première section du milieu poreux tandis que les courbes rouges correspondent aux mesures faites sur le milieu poreux dans son ensemble.

A partir des informations obtenues grâce aux travaux microfluidiques, on peut émettre l'hypothèse selon laquelle l'alimentation locale en particules est plus forte lorsque la concentration de la suspension injectée est plus élevée, ceci conduisant à la formation plus rapide des agrégats. Or la formation de ces clusters de particules est associée à l'éventuelle érosion de ces derniers et à leur remise en circulation dans le milieu poreux ; ces deux phénomènes déstabilisent le système {fluide + milieu poreux} et sont associés à une amplitude d'endommagement plus réduite.

L'effet de la concentration sur l'endommagement est moins net à observer mais il apparait important de souligner ici le fait que les deux massifs utilisés pour cette étude ne sont pas complètement identiques (perméabilités et géométrie interne du milieu poreux différente, Tableau 2.11) ce qui n'était pas le cas pour les travaux microfluidiques (par exemple, la géométrie G1 est identique pour toutes les injections réalisées avec cette puce microfluidique). Or nous avons montré comment la géométrie du milieu poreux pouvait influencer la cinétique d'endommagement, en l'accélérant ou la ralentissant ; cet aspect a donc probablement une influence sur les courbes d'endommagement ici présentées.

Finalement, les travaux réalisés avec des systèmes fluides différents (particules d'illites et vésicules de tensioactif) ainsi que des milieux poreux 3D (massifs de sable reconstitués) ont permis de valider nos précédentes conclusions sur les mécanismes de colmatage et l'impact de la variation de concentration sur l'endommagement. L'extrapolation des résultats du 2D vers le 3D est ainsi réalisée grâce à ces derniers éléments d'observation expérimentale.

Dans la suite de ce chapitre, nous développons une réflexion menée autour d'éventuels procédés de remédiation permettant de ralentir les effets délétères associés au colmatage. Ces propositions sont issues des observations obtenues à partir de nos travaux expérimentaux ou de solutions existantes dans la littérature mais discutées au regard de nos résultats.

4.2 Réflexion sur les solutions de remédiation

Le colmatage est difficile à éviter dès lors qu'un fluide chargé en éléments particulaires s'écoule au sein d'un milieu poreux. Cependant, au regard des conséquences négatives du dépôt de particules et du colmatage, il semble nécessaire d'appréhender au mieux ce phénomène et de mettre en place des moyens permettant de l'éviter ou le retarder.

4.2.1 Etat des lieux sur les moyens de remédiation

Différents moyens de lutte ont été développés pour éviter le colmatage en milieu poreux et ils sont généralement distingués en deux catégories : les méthodes physiques ou chimiques et les méthodes dites hydrodynamiques (Figure 4.127).

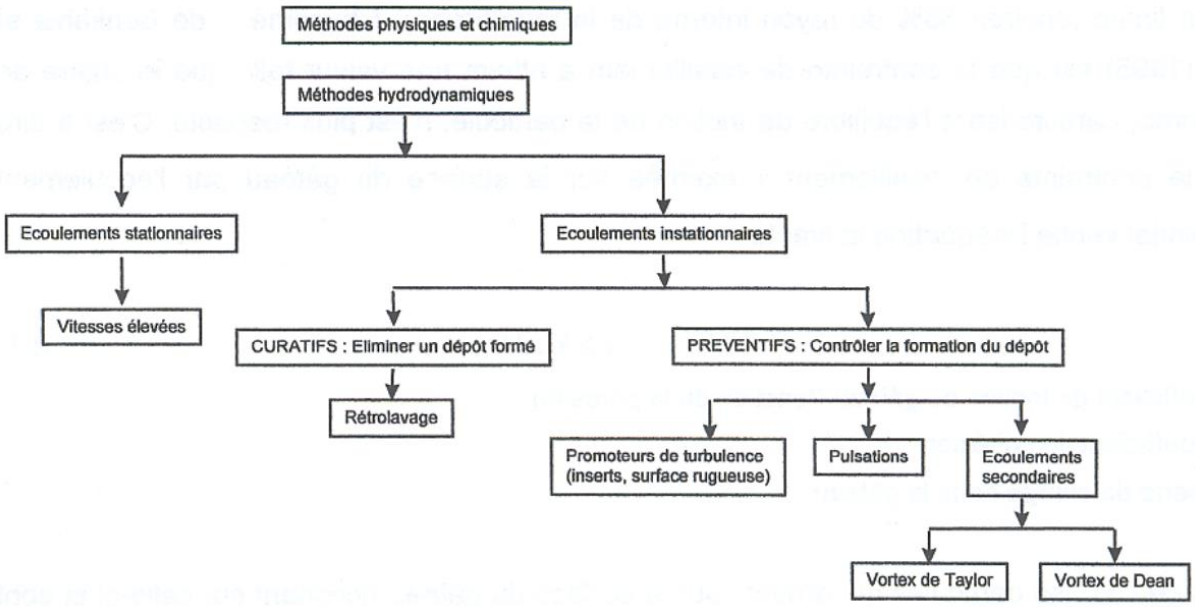


Figure 4.127 - Différentes méthodes de lutte contre le colmatage (Laborie, 1998).

L'usage des traitements chimiques est difficile en géothermie très basse énergie pour traiter les problématiques qui lui sont spécifiques. La première raison est d'ordre économique, les produits étant généralement très couteux et leur usage pourrait remettre en question la faisabilité économique d'un projet, la seconde est d'ordre réglementaire. En effet, l'arrêté du 25 Juin 2015 relatif aux prescriptions générales applicables aux activités géothermiques très basse énergie (Ministère de l'économie, de l'industrie et du numérique, 2015) stipule les éléments suivants :

- 4.1.6 « Pour les échangeurs géothermiques ouverts, aucune substance chimique n'est additionnée à l'eau de la nappe prélevée ou rejetée dans les ouvrages de production et de réinjection lors de l'exploitation du gîte géothermique. »
- 4.2 « Aucune substance chimique n'est additionnée, dans les ouvrages de production et de réinjection, à l'eau de la nappe prélevée ou rejetée. »
- « Les opérations visant au nettoyage et développement du forage de production ou de réinjection se font de manière à ne pas introduire de produits chimiques induisant un risque pour la ressource en eau et ses usages potentiels. Les substances utilisées sont exclusivement des acides et des polyphosphates. »

L'usage de produits chimiques est donc relativement restreint et réglementé. Les moyens préventifs basés sur des procédés physiques semblent donc plus envisageables pour prévenir les

phénomènes de colmatage et pérenniser les doublets géothermiques sur aquifères superficiels. Notons également que les opérations de changement de filtres (système de filtration en surface) sont des solutions qui génèrent d'importantes pertes en temps (interruption périodique de la production) et coutent en procédés de filtration. On cherche donc à espacer ces séquences de nettoyage et changement des filtres autant que possible par le choix de conditions opératoires spécifiques qui sont présentés par la suite. Ces méthodes sont issues des observations et conclusions réalisées sur les expériences menées lors de l'étude paramétrique.

4.2.2 Injection à fort débit continue ou alternative

L'étude paramétrique a permis d'analyser l'effet du débit sur l'endommagement d'un milieu poreux. A conditions opératoires similaires (concentration d'injection, milieu, taille de particules), l'amplitude de l'endommagement est moins importante lorsque le débit d'injection est plus fort. En effet, les agrégats sont formés plus rapidement or, une fois formés, ceux-ci participent à déstabiliser le dépôt (effets d'arrachement, remise en circulation). Ainsi, augmenter le débit d'injection permettrait de diminuer l'ampleur de l'endommagement. Le colmatage serait cependant encore inhérent à la circulation du fluide dans le milieu. Cette augmentation de débit n'est pas nécessairement simple à mettre en place dans la mesure où les débits d'injection usuels à la géothermie sont déjà élevés (100-300 m^3/h). Or de forts débits génèrent des pertes de charge plus fortes et la déstructuration complète du milieu poreux n'est pas un objectif (problématique de micro-sismicité). Par ailleurs, le risque persistant de colmater le réservoir en profondeur en entrainant les dépôts très loin s'ajoute à la problématique des forts débits. Cette situation est à éviter puisqu'il serait très difficile d'agir pour décolmater le milieu loin du puits d'injection.

Des études menées sur les variations des signaux d'injection (Dincau *et al.*, 2022 ; Soumane, 2022) ont permis de montrer que, selon la fraction particulaire en suspension, l'application d'une pression d'injection périodique permet de réduire l'accumulation et la taille des clusters de particules, prévenir le colmatage et le retarder. Ainsi, les cycles de remplissage des pièges à proximité des collecteurs, formation des agrégats et arrachement éventuel, pourraient être pilotés au travers d'un écoulement non-stationnaire maitrisé. Cette mise en place opératoire permettrait de ne pas interrompre les opérations de production tout en ralentissant le colmatage. Notons par ailleurs que l'efficacité de cette solution pourrait aussi être expliquée d'après nos résultats et les données de la littérature qui indiquent l'existence d'un temps de cisaillement critique nécessaire avant la formation d'un agrégat. En effet, une injection périodique avec une période inférieure à ce temps critique pourrait permettre d'éviter la formation des agrégats et ainsi toutes les conséquences qui en découlent sur la perméabilité du milieu.

4.2.3 Ecoulements diphasiques

Le cas de la co-injection des eaux de production avec un autre fluide (CO_2, …) est particulièrement intéressant à considérer puisqu'il présente un double intérêt, économique et environnemental. En effet, des applications tel que le stockage de CO_2 en subsurface sont associées à l'injection de gaz dans le milieu poreux souterrain. Cette application de stockage peut être un objectif associé à la remédiation du colmatage associé à la réinjection des fluides en profondeur.

Pour un écoulement diphasique, le principe consiste à injecter en continu, ou périodiquement, du gaz dans le milieu (air, CO_2, H_2, …). L'écoulement se présente comme un écoulement de trains de bulles qui génèrent des contraintes de cisaillement élevées. Les particules ou les agrégats peuvent alors être arrachés et entrainés par l'écoulement dans le milieu poreux. Cet effet associé à la contrainte de cisaillement a pu être vérifié au cours de ces travaux de thèse (Figure 4.128).

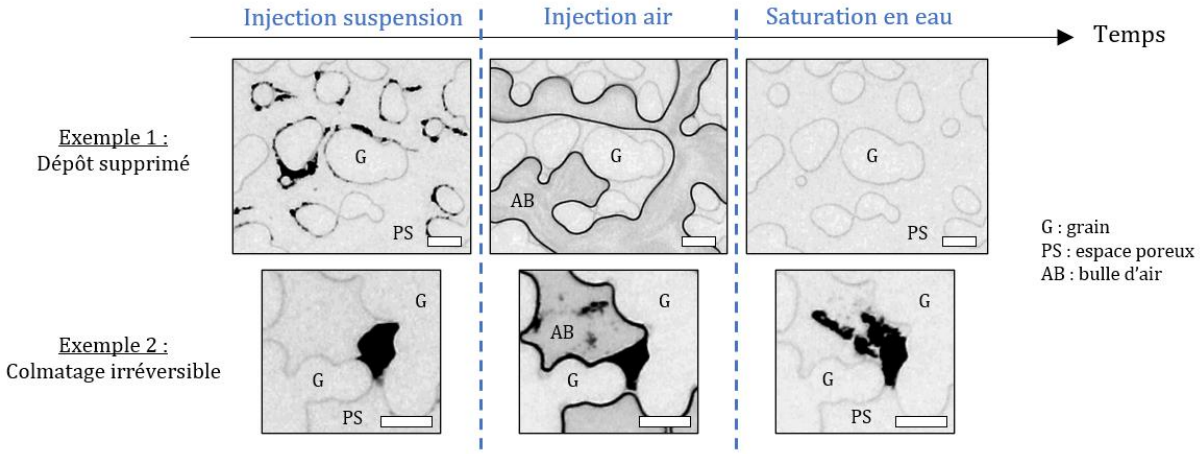


Figure 4.128 - Illustrations du réentrainement des dépôts par l'injection d'air dans le milieu poreux (injection M5). La barre d'échelle correspond à 200 µm.

L'exemple 1 illustre ainsi les conséquences positives de l'injection d'air sur le balayage des dépôts dans le milieu poreux. Cependant, cet effet n'est pas systématique (exemple 2) et les seuils de pores colmatés peuvent rester fermés à l'issue d'une telle injection. Par ailleurs, l'injection d'air dans le milieu génère une perte de charge importante dont l'amplitude est difficile à anticiper et contrôler, ce qui peut s'avérer contraignant pour les opérations de production en géothermie.

Par ailleurs, dans le cas d'une co-injection avec du CO_2, il est nécessaire de vérifier l'effet d'une acidification sur le milieu en place. En effet, dans certains cas associés à la nature des formations géologiques, ce procédé pourrait favoriser la dissolution de la roche et la mobilisation de fines ou bien de la précipitation, qui peuvent entraîner des conséquences très négatives sur la perméabilité du milieu (colmatage, transport de fines dans le milieu …).

4.2.4 Co-injection avec une suspension d'éléments biodégradables

L'étude paramétrique réalisée dans le chapitre 3 a permis d'appréhender l'effet de la variation de concentration sur l'endommagement. Plus particulièrement, lorsque la suspension injectée est particulièrement concentrée, les agrégats sont formés rapidement et peuvent déstabiliser le milieu poreux. Ainsi, une solution de remédiation pourrait consister à créer artificiellement une suspension plus concentrée qui retarderait la cinétique d'endommagement. A cet effet, une suspension d'éléments biodégradables pourrait être co-injectée avec la suspension naturellement issue de la circulation en subsurface afin de sur-concentrer artificiellement l'eau réinjectée en profondeur. Avec le temps, ces éléments particulaires biodégradables sont décomposés en éléments naturels (dioxyde de carbone, vapeur d'eau) par des organismes tels que les bactéries présentes naturellement en subsurface.

4.2.5 Injection alternée de fluides filtrés et non filtrés

La séquence d'injection respectée dans le cadre de notre étude expérimentale a permis d'illustrer l'impact potentiel d'une ultrafiltration sur la dynamique d'endommagement. En effet, lorsque le fluide filtré est injecté dans le milieu poreux, la progression de l'endommagement est arrêtée (Figure 4.129). Le coefficient de réduction de mobilité Rm progresse pendant toute la durée de l'injection de la suspension de polystyrène mais dès lors que le fluide injecté ne contient plus de particules (eau milli-Q), la dynamique d'endommagement est arrêtée ; la pente est nulle, le Rm ne progresse plus.

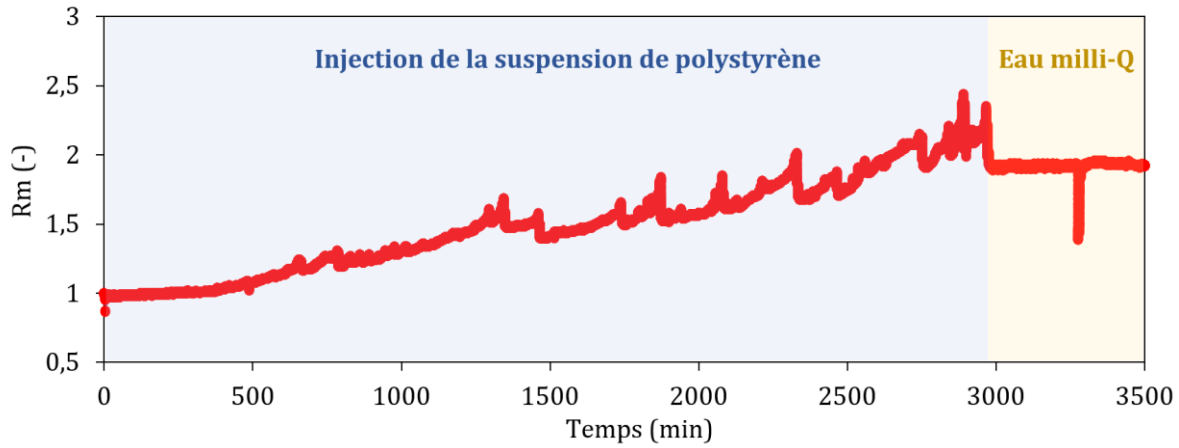


Figure 4.129 - Cinétique d'endommagement (injection K3) avec la phase d'injection de la suspension de polystyrène et la phase finale de balayage avec l'eau milli-Q.

On peut donc ainsi envisager une solution de remédiation associée à une filtration binaire, pour que les coûts soient moindres, qui permettrait d'alterner l'injection de fluides contenant des particules et sans particules, permettant de ralentir la dynamique d'endommagement.

4.2.6 Conclusion sur les propositions de procédés de remédiation

Finalement, à la lumière des résultats obtenus dans le cadre de ces travaux de thèse, nous proposons les recommandations suivantes :

- Les forts débits permettent de casser les agrégats formés mais les transportent loin du puits d'injection où il devient compliqué d'agir. Les forts débits sont donc à éviter mais une injection périodique avec une période à fort débit inférieure au temps critique d'agrégation par cisaillement pourrait permettre d'éviter la formation des agrégats ;
- Le rétro-lavage (inversion de la direction d'écoulement) risque d'être efficace seulement pour de faibles débits. Les agrégats sont alors préférentiellement accumulés dans la zone amont du milieu poreux et sont alors plus faciles à supprimer par injection inversée ;
- Les écoulements diphasiques apparaissent comme une potentielle solution de remédiation mais qui nécessite des investigations plus poussées sur les éventuels effets d'acidification du milieu ;
- La co-injection avec des éléments biodégradables est intéressante à considérer mais nécessite de bien connaitre les différents éléments associés à l'injection du fluide dans la matrice solide (temps de vie des composants biodégradables, homogénéité du milieu poreux, nature de la roche…) ;
- La filtration du fluide issu du puits producteur doit avoir lieu juste avant la réinjection dans le puits injecteur, *i.e.* post échangeur. Cette recommandation émane d'une étude récemment réalisée avec des fluides géothermiques réels et issue d'une collaboration entre IFPEN et Geofluid. En effet, l'échangeur est un élément de la boucle géothermique où la turbulence peut induire la formation d'agrégats (forts effets de l'hydrodynamique) qui seraient alors réinjectés dans le milieu poreux. La filtration doit donc avoir lieu après l'échangeur ;
- Enfin, la solution connue qui consiste à générer un cake externe (à proximité immédiate du point d'injection en profondeur) pour protéger le puits ne semble pas pertinente ici dans la mesure où l'agrégation hydrodynamique semble fortement compacter les particules. L'écoulement est alors fortement limité à travers le cake, qui ne fait alors plus office de filtre naturel.

Les conditions opératoires présentées ci-dessus comme de potentielles solutions pour limiter le colmatage sont le résultat des observations collectées lors de ce travail de thèse. Elles sont le résultat d'un compromis dépendant du fluide, du milieu et des moyens à disposition ; elles doivent donc être ajustées pour chaque application/opération géothermale. Afin de faire fonctionner une installation dans des conditions techniques et économiques viables, les conditions opératoires doivent pouvoir être maintenues sur des durées compatibles avec les objectifs de production, tout en évitant un colmatage important.

Un autre levier, plus porteur, est d'anticiper ces désordres au stade de la conception par la mise en œuvre d'un ensemble de bonnes pratiques. Ces dernières reposent cependant sur la compréhension des phénomènes en jeu, tant sur le plan de leurs interactions, que de leurs mécanismes réactionnels permettant, *in fine*, d'identifier les paramètres influents. Ainsi, il semble particulièrement important de bien caractériser le système fluide en circulation (interactions, distribution taille de particules, forme) et les caractéristiques du milieu poreux dans lequel l'écoulement va avoir lieu (distribution taille de seuils de pore, homogénéité de la matrice).

Conclusion générale

Cette étude avait pour objectif d'étudier, en se plaçant dans les conditions de la géothermie, les mécanismes de colmatage d'un milieu poreux lors de l'injection d'un fluide colloïdal ainsi que l'impact de certains paramètres clés comme la concentration, le débit, la taille des particules et la géométrie du milieu. Généralement, dans le contexte de la géothermie, on trouve en surface un système de filtration qui permet d'éliminer les particules les plus grandes en diamètre. Le fluide ainsi filtré est réinjecté dans les couches géologiques perméables permettant la circulation en profondeur et le réchauffement du fluide par les gradients de température naturels. Celui-ci est ensuite exploité à nouveau en surface. En théorie, cette configuration n'est pas propice au colmatage ; pourtant, de nombreux problèmes d'injectivité sont reportés et pénalisent la production d'énergie issue de cette technologie.

Afin de comprendre les limitations actuelles liées au colmatage, nous avons mis en place une étude expérimentale reposant sur une approche microfluidique qui fait appel à deux techniques d'imagerie différentes permettant d'observer le dépôt, déterminer la fraction surfacique qu'il représente au sein de l'espace poreux et le champ de concentration au cours du temps. Les montages utilisés intègrent également des mesures macroscopiques de pression et de concentration. La réduction de mobilité au cours de l'injection a été suivie grâce aux mesures de perte de charge globale et des pressions locales. Le couplage de ces données avec celles de l'imagerie permet l'interprétation des observations et la compréhension des phénomènes observés. Ces nombreux outils technologiques déployés pour identifier et décrire les mécanismes impliqués ont ainsi permis de mener une analyse complète et précise aussi bien à l'échelle de Darcy qu'à l'échelle du pore.

Afin que les résultats soient facilement extrapolables au contexte de la géothermie, les conditions opératoires de cette étude ont été choisies de manière à être représentatives de celles caractéristiques de cette technologie : des forts débits d'injection, de faibles concentrations, des particules de taille micrométrique ou nanométrique et des milieux poreux ayant de fortes perméabilités. Pour les milieux poreux, trois géométries complexes de micromodèles ont été utilisées. Le champ de vitesse associé à l'écoulement d'un fluide dans ces milieux poreux a pu être obtenu par simulation numérique (collaboration avec A. Erriguible, I_2M Bordeaux). Une suspension de microsphères de polystyrène de différentes tailles et propriétés de surface a été utilisée à différentes concentrations. Les conditions opératoires sont analogues à celles qui peuvent être mises en place proche-puits (forte vitesse de pore) lors d'une opération géothermique.

Le premier constat commun à toutes les expériences d'injection réalisées dans cette étude est la présence non attendue de gros amas cohésifs de particules dont la taille, le nombre, le comportement et la cinétique d'apparition dans le micromodèle varient avec les conditions d'injection. Ce constat était surprenant dans la mesure où il était incohérent avec les conditions défavorables d'injection : fortes répulsions entre particules, faibles concentrations, milieux très perméables, ratio entre taille des seuils et taille des particules très élevé. Ainsi, déterminer l'origine de ces amas, identifiés comme responsables de l'endommagement du milieu, était le premier objectif de cette étude.

L'analyse du champ de vitesse a permis de montrer la coexistence, au sein du même micromodèle, de trois types de zones d'écoulement : des zones de très faibles vitesses voire de stagnation, des zones où la vitesse est intermédiaire, généralement situées à proximité des chemins préférentiels de l'écoulement, et d'autres où la vitesse est très élevée. Ces zones constituent principalement les chemins préférentiels du milieu poreux. Ces trois catégories de zones ont été associées, en considérant le nombre de Péclet local, à trois régimes d'écoulement différents (diffusion, diffusion-advection et hydrodynamique). Ensuite, la comparaison de la distribution

spatiale des dépôts observés dans le micromodèle et des lignes de courant déterminées par simulation numérique a permis l'identification de nombreuses petites aires de l'espace poreux. Ces espaces font office de pièges dans lesquels les particules s'accumulent progressivement tout au long de l'injection. Ces pièges, qui correspondent en général à des zones de faible écoulement, ont été répertoriés en cinq différentes configurations selon la position du dépôt par rapport aux grains (entrée d'un pore, amont d'un grain, zone de traînée en aval d'un grain, zone de stagnation et à la confluence de deux flux locaux). La quantité de particules accumulée dans chacun des pièges dépend de la durée d'injection, de la surface du piège (dictée par les lignes de courant), et enfin de l'apport particulaire, qui lui-même dépend de la concentration de la suspension injectée ainsi que de la vitesse d'écoulement aux abords du piège. Ainsi, bien que la suspension injectée soit de faible concentration, une surconcentration locale a lieu au cours de l'injection dans différents endroits de l'espace poreux.

Ces résultats, bien qu'ils aient clarifiés l'origine de l'apparition des dépôts dans le micromodèle, n'étaient pas suffisants pour expliquer à eux seuls les caractères cohésif et irréversible des amas observés et dont la conséquence importante sur la dynamique du colmatage a été prouvée. Le bilan de forces locales appliquées sur les particules a été alors déterminé. En particulier, il a été montré que localement, les forces hydrodynamiques auxquelles les particules sont soumises dominent les forces répulsives interparticulaires. La surconcentration permet de réduire fortement la distance entre les particules, et le fort cisaillement permet d'induire une balance des forces agissant sur les particules en faveur d'une agglomération forte entre celles-ci. Une agrégation hydrodynamique a ainsi été mise en évidence, et confirmée en s'appuyant sur des données de la littérature concernant le comportement sous fort cisaillement des suspensions concentrées. Il s'agit ici d'un des résultats majeurs de cette étude. En effet, ce phénomène d'agrégation est le principal générateur du colmatage observé.

La figure suivante réintroduit les trois facteurs clés associés à la cinétique d'agrégation hydrodynamique (Figure 130) ; pour former un agrégat, une forte concentration particulaire est nécessaire et doit ensuite être soumise à un cisaillement important pendant un temps critique. Sans ces éléments, les particules ne peuvent être agrégées. Chaque suspension colloïdale est associée à un cisaillement, une fraction particulaire et un temps critiques nécessaires à atteindre pour l'agrégation, et qui sont fonction de la nature et des caractéristiques de la suspension.

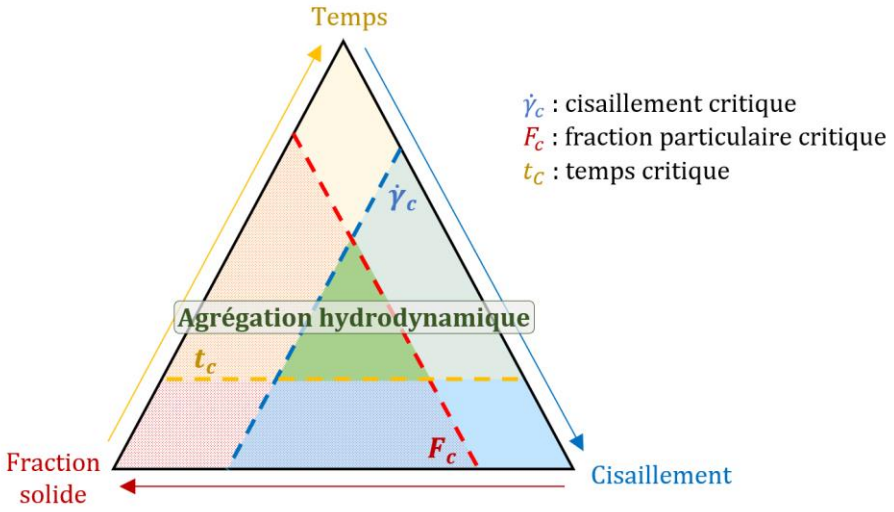


Figure 130 - Diagramme ternaire récapitulant les facteurs clés nécessaires à l'agrégation hydrodynamique de particules mises en suspension.

Une fois l'agrégat formé, il a été montré que différents cas de figure existent ; selon la zone de formation du cluster irréversible de particules, les conséquences sur le colmatage et l'endommagement du milieu poreux sont différentes en termes d'amplitude et de cinétique. Dans les zones où l'écoulement acquiert une vitesse intermédiaire, cette agrégation peut aboutir à la fermeture pérenne et stable d'un seuil de pore. Il s'agit du premier mécanisme de colmatage observé dans notre étude et celui-ci a un impact majeur sur la réduction de perméabilité. En effet, lorsqu'un seuil est colmaté, les chemins de circulation dans l'environnement proche sont complètement perturbés. Lorsque les zones de formation des agrégats correspondent à des chemins d'écoulement préférentiels, où les vitesses sont fortes, l'agrégation est associée à des phénomènes hydrodynamiques d'arrachement. Ces effets sont associés à une dynamique d'instabilité générale du milieu. Les paquets de particules peuvent être érodés et transportés dans le milieu poreux où deux issues s'offrent à eux :

- ils peuvent être entrainés par l'écoulement sans impacter la perméabilité du milieu en étant par exemple déposés à la surface d'un grain (drapage) ou complètement évacués du milieu ;
- ou ils peuvent être bloqués au niveau d'une restriction par simple exclusion géométrique. Dans ce cas, la fermeture soudaine du seuil de pore entraine une réduction importante de la perméabilité du milieu. Il s'agit du deuxième mécanisme de colmatage.

Ces agrégats mobiles jouent également un rôle d'atténuateur d'endommagement. En effet, s'ils sont transportés dans le milieu, ils peuvent déstabiliser certains dépôts présents sur leurs chemins et libérer ainsi des seuils de pore, ce qui permet de réduire de manière assez remarquable l'ampleur du colmatage. Ainsi, dès lors que les agrégats deviennent mobiles, l'ampleur de l'endommagement du milieu est à chaque instant le résultat d'une compétition entre deux phénomènes opposés : la construction et la déconstruction des dépôts au niveau des seuils de pore. Cela se traduit par une cinétique de réduction de mobilité en deux phases consécutives : dans la première, la construction domine et ainsi l'endommagement s'aggrave de manière rapide. Dans la deuxième phase, la situation s'inverse et la déconstruction provoque l'atténuation de l'ampleur du colmatage.

La variation des conditions d'injection (concentration de la suspension injectée, débit, taille des particules) va influencer la cinétique de succession de ces étapes ; plus la suspension est concentrée, plus les agrégats vont rapidement être formés et être en circulation dans le milieu poreux où ils participent à la fois au colmatage (fermeture de seuils) mais aussi à la déstabilisation du milieu (cycles érosion, dépôt, érosion…). L'augmentation du débit d'injection aura ainsi le même impact dans la mesure où 1) il s'agit d'un élément clé de l'apport particulaire, *i.e.* le nombre de particules qui arrive dans le milieu poreux et dans chaque zone de piège et 2) plus le débit est fort, plus les agrégats mobiles se fragmentent et moins ils risquent de colmater par tamisage des seuils dans leurs chemins. L'augmentation d'un de ces deux paramètres accélère ainsi la transition de la première à la deuxième phase du colmatage. Pour l'effet de la taille des particules, les résultats suggèrent l'existence d'une fraction volumique critique de particules injectées au-delà de laquelle le milieu commence à être endommagé. Dans la gamme étudiée, la taille des particules ne semble pas avoir d'impact sur cette valeur critique, en revanche un léger effet sur la dynamique du colmatage (deuxième phase) a été observé et reste à confirmer.

Finalement, l'étude menée avec les trois géométries de milieu poreux a permis de montrer que cette agrégation induite par le cisaillement et les deux mécanismes de colmatage majeurs existent dans toutes les configurations testées ; la géométrie du milieu poreux à l'échelle macroscopique peut néanmoins induire un retard ou une accélération de ces phénomènes. Plus un milieu tortueux est homogène, *i.e.* l'écoulement est bien réparti sur l'ensemble de la surface porale,

plus l'alimentation des pièges en particules se fait sur l'ensemble du milieu poreux et entraine ainsi un colmatage plus rapide.

Les injections réalisées, dans des conditions opératoires similaires, mais avec des particules de propriétés différentes - charge de surface (carboxyle ou amidine), taille (nm-µm), structure (bille de polystyrène, argiles en feuillet) - ont toutes abouties à la formation de gros agrégats cohésifs et irréversibles. La conclusion est donc la suivante : quelles que soient les propriétés des particules injectées, à partir du moment où les forces hydrodynamiques locales sont supérieures aux forces de surface, le phénomène d'agrégation hydrodynamique a lieu et pilote le colmatage du milieu.

Ce résultat peut être d'un intérêt central pour les opérateurs géothermiques, dans la mesure où la connaissance du débit critique, à partir duquel la balance des forces associées aux conditions d'injection devient défavorable, pourrait permettre d'éviter la formation des agrégats ou de mieux les contrôler.

Les travaux menés sur des systèmes poreux 3D (massifs de sable) ont permis de valider l'ensemble des observations et conclusions réalisées à l'aide des micromodèles (systèmes 2D). L'extrapolation des résultats du 2D vers le 3D a ainsi pu être réalisée au cours de cette étude.

Enfin, ces travaux de thèse ont permis de mettre en évidence de nombreux phénomènes associés à l'injection d'une suspension de particules dans un milieu poreux complexe, la réduction de perméabilité associée au colmatage ainsi que les paramètres favorisant ce dernier. A la lumière de l'ensemble de ces résultats, des préconisations ont été proposées pour aider à traiter de manière préventive ou curative cette problématique, que ce soit dans le contexte de la géothermie ou dans d'autres conditions similaires.

Perspectives

De nombreuses perspectives peuvent être données à l'étude exposée dans ce manuscrit. Celles-ci se déclinent en plusieurs axes que nous développons ici.
Si l'on s'intéresse dans un premier temps aux outils développés et utilisés, trois éléments majeurs restent à mettre en place :

- l'exploitation des données du spectrophotomètre (afin de réaliser des bilans de masse) ;
- la proposition d'un modèle pour la deuxième phase d'endommagement ;
- et la simulation numérique des champs de vitesse en 3D afin notamment de prendre en compte les effets à la paroi.

L'exploitation des données de spectrophotomètre pourrait notamment permettre d'affiner l'analyse du modèle empirique proposé sur les deux phases principales d'endommagement. La simulation du champ de vitesse pour prendre en compte les effets à la paroi serait pertinente dans la mesure où le milieu poreux est un espace relativement confiné (profondeur de vingt microns) mais les résolutions numériques sont associées à certaines contraintes fortes tel que le temps de calcul qui peut être très important pour des systèmes complexes tel que ceux utilisés dans notre étude.

Par rapport au modèle empirique proposé et dans un contexte plus général de prévention, il serait intéressant de pouvoir proposer à un opérateur en géothermie des informations clés sur les cinétiques d'agrégation hydrodynamique qui induisent la formation d'un dépôt au sein du milieu poreux. Ainsi, une réflexion poussée sur les caractéristiques d'un système fluide par rapport aux conditions opératoires (débit d'injection, caractéristiques pétrophysiques du milieu poreux) pourrait permettre d'obtenir par exemple des cisaillements critiques à partir desquels l'agrégation est induite. Des préconisations pourraient alors être formulées pour éviter ou retarder le colmatage.

Par ailleurs, l'état de l'art réalisé sur la problématique du colmatage en milieu poreux a permis de montrer la diversité des facteurs pouvant influencer les mécanismes et les conséquences associées à l'écoulement d'une suspension particulaire. Ainsi, si l'on considère un système poreux de nature différente, *i.e.* avec une minéralogie réelle tel que des carbonates, il pourrait être particulièrement intéressant de comprendre les processus géochimiques de dissolution et adsorption associés à l'écoulement d'une suspension particulaire dans une telle matrice solide. *A contrario*, si l'on s'intéresse non plus au milieu poreux mais à la suspension, l'étude de la croissance en biofilms en milieu poreux est particulièrement pertinente. En effet, la littérature indique que ces éléments en suspension peuvent être responsables du colmatage d'un puits ou de l'environnement proche puits dans le cas de l'application géothermie. Cependant, étudier ces biofilms implique une connaissance préalable importante des propriétés mécaniques, des mécanismes d'adhésion interparticulaire ou de l'activité biologique (division, consommation de nutriments, mort) spécifiques aux micro-organismes qui initient la croissance de ces amas structurés de cellules qui peuvent être attachés à une surface.

Finalement, les sujets d'étude sur le colmatage en milieu poreux sont multiples. Ils nécessitent un cloisonnement important dans la mesure où chaque paramètre physico-chimique peut avoir une influence sur les mécanismes de colmatage et les phénomènes associés à l'écoulement dans le milieu poreux. Afin de comprendre ces derniers, il est nécessaire de pouvoir corréler les observations aux éléments associés aux conditions opératoires.

Bibliographie

Adamczyk, Z., Siwek, B., & Zembala, M. (1992). Reversible and irreversible adsorption of particles on homogeneous surfaces. *Colloids and Surfaces*, *62*(1–2), 119–130. https://doi.org/10.1016/0166-6622(92)80043-2

Adamczyk, Zbigniew, Siwek, B., Zembala, M., & Belouschek, P. (1994). Kinetics of localized adsorption of colloid particles. *Advances in Colloid and Interface Science*, *48*, 151–280. https://doi.org/10.1016/0001-8686(94)80008-1

Agbangla, G. C., Climent, É., & Bacchin, P. (2012). Experimental investigation of pore clogging by microparticles: Evidence for a critical flux density of particle yielding arches and deposits. *Separation and Purification Technology*, *101*, 42–48. https://doi.org/10.1016/j.seppur.2012.09.011

Ahfir, N.-D., Benamar, A., Alem, A., & Wang, H. (2009). Influence of internal structure and medium length on transport and deposition of suspended particles: A laboratory study. *Transport in Porous Media*, *76*(2), 289–307. https://doi.org/10.1007/s11242-008-9247-3

Al-Abduwani, F. A. H., Shirzadi, A., van den Broek, W. M. G. T., & Currie, P. K. (2003). Formation damage vs. Solid particles deposition profile during laboratory simulated PWRI. *Paper Presented at the SPE European Formation Damage Conference, The Hague, Netherlands, May 2003. Paper Number: SPE-82235-MS*. https://doi.org/10.2118/82235-ms

Auset, M., & Keller, A. A. (2004). Pore-scale processes that control dispersion of colloids in saturated porous media: COLLOID DISPERSION AT PORE SCALE. *Water Resources Research*, *40*(3). https://doi.org/10.1029/2003wr002800

Auset, M., & Keller, A. A. (2006). Pore-scale visualization of colloid straining and filtration in saturated porous media using micromodels: COLLOID STRAINING AND FILTRATION. *Water Resources Research*, *42*(12). https://doi.org/10.1029/2005wr004639

Auset, M., Keller, A. A., Brissaud, F., & Lazarova, V. (2005). Intermittent filtration of bacteria and colloids in porous media: INTERMITTENT FILTRATION OF BACTERIA. *Water Resources Research*, *41*(9). https://doi.org/10.1029/2004wr003611

Baghdikian, S. Y., Sharma, M. M., & Handy, L. L. (1989). Flow of clay suspensions through porous media. *SPE Reservoir Engineering*, *4*(02), 213–220. https://doi.org/10.2118/16257-pa

Bales, R. C., Li, S., Maguire, K. M., Yahya, M. T., & Gerba, C. P. (1993). MS-2 and poliovirus transport in porous media: Hydrophobic effects and chemical perturbations. *Water Resources Research*, *29*(4), 957–963. https://doi.org/10.1029/92wr02986

Baudracco, J. (1990). Variations in permeability and fine particle migrations in unconsolidated sandstones submitted to saline circulations. *Geothermics*, *19*(2), 213–221. https://doi.org/10.1016/0375-6505(90)90017-6

Baumann, T., & Niessner, R. (2006). Micromodel study on repartitioning phenomena of a strongly hydrophobic fluorophore at a colloid/1-octanol interface: COLLOIDS IN MULTIPHASE SYSTEMS. *Water Resources Research*, *42*(12). https://doi.org/10.1029/2006wr004893

Baumann, T., & Werth, C. J. (2004). Visualization and modeling of polystyrol colloid transport in a silicon micromodel. *Vadose Zone Journal: VZJ*, *3*(2), 434–443. https://doi.org/10.2136/vzj2004.0434

Berthet, H., Fermigier, M., & Lindner, A. (2013). Single fiber transport in a confined channel: Microfluidic experiments and numerical study. *Physics of Fluids (Woodbury, N.Y.: 1994)*, *25*(10). https://doi.org/10.1063/1.4823728

Bizmark, N., Schneider, J., Priestley, R. D., & Datta, S. S. (2020). Multiscale dynamics of colloidal deposition and erosion in porous media. *Science Advances*, *6*(46), eabc2530. https://doi.org/10.1126/sciadv.abc2530

Bloomfield, J., Gooddy, D., Bright, M., & Williams, P. (2001). Pore-throat size distributions in Permo-Triassic sandstones from the United Kingdom and some implications for contaminant hydrogeology. *Hydrogeology Journal*, *9*(3), 219–230. https://doi.org/10.1007/s100400100135

Bradford, S. A., & Bettahar, M. (2006). Concentration dependent transport of colloids in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, *82*(1–2), 99–117. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2005.09.006

Bradford, S. A., Kim, H. N., Haznedaroglu, B. Z., Torkzaban, S., & Walker, S. L. (2009). Coupled factors influencing concentration-dependent colloid transport and retention in saturated porous media. *Environmental Science & Technology*, *43*(18), 6996–7002. https://doi.org/10.1021/es900840d

Bradford, S. A., Simunek, J., & Walker, S. L. (2006). Transport and straining ofE. coliO157:H7 in saturated porous media: TRANSPORT AND STRAINING OFE. COLIO157:H7. *Water Resources Research*, *42*(12). https://doi.org/10.1029/2005wr004805

Bradford, S. A., & Torkzaban, S. (2013). Colloid interaction energies for physically and chemically heterogeneous porous media. *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids*, *29*(11), 3668–3676. https://doi.org/10.1021/la400229f

Bradford, S. A., Torkzaban, S., & Simunek, J. (2011). Modeling colloid transport and retention in saturated porous media under unfavorable attachment conditions: MODELING COLLOID TRANSPORT AND RETENTION. *Water Resources Research*, *47*(10). https://doi.org/10.1029/2011wr010812

Bradford, S. A., Torkzaban, S., & Walker, S. L. (2007). Coupling of physical and chemical mechanisms of colloid straining in saturated porous media. *Water Research*, *41*(13), 3012–3024. https://doi.org/10.1016/j.watres.2007.03.030

Bradford, S. A., Yates, S. R., Bettahar, M., & Simunek, J. (2002). Physical factors affecting the transport and fate of colloids in saturated porous media: FACTORS AFFECTING THE FATE OF COLLOIDS. *Water Resources Research*, *38*(12), 63-1-63–12. https://doi.org/10.1029/2002wr001340

Burté, L. (2018). *Etude des risques de colmatage et optimisation des procédés de traitement des doublets géothermiques superficiels*. Université Rennes 1.

Campbell, A. I., & Haw, M. D. (2010). Jamming and unjamming of concentrated colloidal dispersions in channel flows. *Soft Matter*, *6*(19), 4688. https://doi.org/10.1039/c0sm00110d

Canseco Ruiz, V. (2009). *Transport de colloïdes en milieu poreux : étude expérimentale*. Bordeaux 1.

Carman, P. C. (1937). Fluid flow through granular beds. *Trans. Inst. Chem. Eng*, *15*, 150–166.

Cates, M. E., Wittmer, J. P., Bouchaud, J.-P., & Claudin, P. (1998). Jamming, force chains, and fragile matter. *Physical Review Letters*, *81*(9), 1841–1844. https://doi.org/10.1103/physrevlett.81.1841

Chaniot, J., Moreaud, M., Sorbier, L., Fournel, T., & Becker, J.-M. (2019). Tortuosimetric operator for complex porous media characterization. *Image Analysis & Stereology*, *38*(1), 25. https://doi.org/10.5566/ias.2039

Chapuis, R. P. (2004). Predicting the saturated hydraulic conductivity of sand and gravel using effective diameter and void ratio. *Canadian Geotechnical Journal*, *41*(5), 787–795. https://doi.org/10.1139/t04-022

Chauveteau, G., Nabzar, L., & Coste, J.-P. (1998). Physics and modeling of permeability damage induced by particle deposition. *Paper Presented at the SPE Formation Damage Control Conference, Lafayette, Louisiana, February 1998. Paper Number: SPE-39463-MS*. https://doi.org/10.2118/39463-ms

Chauveteau, G., Nabzar, L., & El Attar, Y. (1996). Pore Structure and Hydrodynamics in Sandstones. In *SCA 9607, International Symposium of the Society of Core Analysts*.

Chen, G., & Flury, M. (2005). Retention of mineral colloids in unsaturated porous media as related to their surface properties. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *256*(2–3), 207–216. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2005.01.021

Chen, J. Y., Ko, C.-H., Bhattacharjee, S., & Elimelech, M. (2001). Role of spatial distribution of porous medium surface charge heterogeneity in colloid transport. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *191*(1–2), 3–15. https://doi.org/10.1016/s0927-7757(01)00759-2

Cheng, C., & Milsch, H. (2020). Permeability variations in illite-bearing sandstone: Effects of temperature and NaCl fluid salinity. *Journal of Geophysical Research. Solid Earth*, *125*(9). https://doi.org/10.1029/2020jb020122

Chilingar, G. V. (1964). Relationship between porosity, permeability, and grain-size distribution of sands and sandstones. In *Developments in Sedimentology* (pp. 71–75). Elsevier.

Civan, F., & Nguyen, V. (2005). Modeling particle migration and deposition in porous media by parallel pathways with exchange. *POROUS MEDIA*.

Civan, Faruk. (2015). *Reservoir Formation Damage* (3rd ed.). Gulf Professional Publishing.

Darcy, H. (1856). *Les fontaines publiques de la ville de Dijon: exposition et application*. Victor Dalmont.

de Winter, D. A. M., Weishaupt, K., Scheller, S., Frey, S., Raoof, A., Hassanizadeh, S. M., & Helmig, R. (2021). The complexity of porous media flow characterized in a microfluidic model based on confocal

laser scanning microscopy and micro-PIV. *Transport in Porous Media*, *136*(1), 343–367. https://doi.org/10.1007/s11242-020-01515-9

Delanchambre, Y. (1966). *Contribution à l'étude de l'écoulement d'une suspension à travers un milieu poreux et du mécanisme de la filtration*. Université de Nancy.

Delouche, N., Schofield, A. B., & Tabuteau, H. (2020). Dynamics of progressive pore clogging by colloidal aggregates. *Soft Matter*, *16*(43), 9899–9907. https://doi.org/10.1039/d0sm01403f

Derjaguin, B. V., & Landau, L. D. (1941). Theory of Stability of Highly Charged Lyophobic Sols and Aggregation of Highly Charged Particles in Electrolyte Solutions. *Zh. Eksp. Teor. Fiz*, *11*(2), 802–821.

Dersoir, B., de Saint Vincent, M. R., Abkarian, M., & Tabuteau, H. (2015). Clogging of a single pore by colloidal particles. *Microfluidics and Nanofluidics*, *19*(4), 953–961. https://doi.org/10.1007/s10404-015-1624-y

Dhont, J. K. G. (1996). *An introduction to dynamics of colloids: Volume 2*. Elsevier Science.

Dincau, B., Tang, C., Dressaire, E., & Sauret, A.: Clog mitigation in a microfluidic array via pulsatile flows. *Soft Matter*, **18**(9), (2022), 1767–1778.

Dressaire, E., & Sauret, A. (2017). Clogging of microfluidic systems. *Soft Matter*, *13*(1), 37–48. https://doi.org/10.1039/c6sm01879c

Du, Y., Shen, C., Zhang, H., & Huang, Y. (2013). Effects of flow velocity and nonionic surfactant on colloid straining in saturated porous media under unfavorable conditions. *Transport in Porous Media*, *98*(1), 193–208. https://doi.org/10.1007/s11242-013-0140-3

Elimelech, M., & O'Melia, C. R. (1990). Kinetics of deposition of colloidal particles in porous media. *Environmental Science & Technology*, *24*(10), 1528–1536. https://doi.org/10.1021/es00080a012

Endo Kokubun, M. A., Muntean, A., Radu, F. A., Kumar, K., Pop, I. S., Keilegavlen, E., & Spildo, K. (2019). A pore-scale study of transport of inertial particles by water in porous media. *Chemical Engineering Science*, *207*, 397–409. https://doi.org/10.1016/j.ces.2019.06.036

Gaol, C. L., Ganzer, L., Mukherjee, S., & Alkan, H. (2021). Investigation of clogging in porous media induced by microorganisms using a microfluidic application. *Environmental Science: Water Research & Technology*, *7*(2), 441–454. https://doi.org/10.1039/d0ew00766h

Gavoille, T. (2019). *Méthodologie pour la caractérisation de propriétés thermodynamiques dans des systèmes microfluidiques*. Université de Bordeaux.

Genovese, D., & Sprakel, J. (2011). Crystallization and intermittent dynamics in constricted microfluidic flows of dense suspensions. *Soft Matter*, *7*(8), 3889. https://doi.org/10.1039/c0sm01338b

Gerber, G., Bensouda, M., Weitz, D. A., & Coussot, P. (2019). Self-limited accumulation of colloids in porous media. *Physical Review Letters*, *123*(15), 158005. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.158005

Gerber, G., Rodts, S., Aimedieu, P., Faure, P., & Coussot, P. (2018). Particle-size-exclusion clogging regimes in porous media. *Physical Review Letters*, *120*(14). https://doi.org/10.1103/physrevlett.120.148001

Gerber, G., Weitz, D. A., & Coussot, P. (2020). Propagation and adsorption of nanoparticles in porous medium as traveling waves. *Physical Review Research*, *2*(3). https://doi.org/10.1103/physrevresearch.2.033074

Gögelein, C., Wagner, D., Cardinaux, F., Nägele, G., & Egelhaaf, S. U. (2012). Effect of glycerol and dimethyl sulfoxide on the phase behavior of lysozyme: theory and experiments. *The Journal of Chemical Physics*, *136*(1), 015102. https://doi.org/10.1063/1.3673442

Goldman, A. J., Cox, R. G., & Brenner, H. (1967). Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall—II Couette flow. *Chemical Engineering Science*, *22*(4), 653–660. https://doi.org/10.1016/0009-2509(67)80048-4

Goldsztein, G. H., & Santamarina, J. C. (2004). Suspension extraction through an opening before clogging. *Applied Physics Letters*, *85*(19), 4535–4537. https://doi.org/10.1063/1.1818342

Gong, Y.-K., Nakashima, K., & Xu, R. (2001). A novel method to determine effective charge of polystyrene latex particles in aqueous dispersion. *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids*, *17*(9), 2889–2892. https://doi.org/10.1021/la001483n

Guan, H., Schulze-Makuch, D., Schaffer, S., & Pillai, S. D. (2003). The effect of critical pH on virus fate and transport in saturated porous medium. *Ground Water*, *41*(5), 701–708. https://doi.org/10.1111/j.1745-6584.2003.tb02408.x

Guo, M., & Wyss, H. M. (2011). Micromechanics of soft particles. *Macromolecular Materials and Engineering*, *296*(3–4), 223–229. https://doi.org/10.1002/mame.201000359

Guo, Y., Lou, J., Cho, J. K., Tilton, N., Chun, J., Um, W., Yin, X., Neeves, K. B., & Wu, N. (2020). Transport of colloidal particles in microscopic porous medium analogues with surface charge heterogeneity: Experiments and the fundamental role of single-bead deposition. *Environmental Science & Technology*, *54*(21), 13651–13660. https://doi.org/10.1021/acs.est.0c03225

Hamaker, H. C. (1937). *The London-van der Waals attraction between spherical particles. physica. 4*, 1058–1072.

Haw, M. D. (2004). Jamming, two-fluid behavior, and "self-filtration" in concentrated particulate suspensions. *Physical Review Letters*, *92*(18). https://doi.org/10.1103/physrevlett.92.185506

Hazen, A. (1911). Discussion: Dams on sand foundations. *Transactions, American Society of Civil Engineers*, *73*(11).

He, B., Tan, L., & Regnier, F. (1999). Microfabricated filters for microfluidic analytical systems. *Analytical Chemistry*, *71*(7), 1464–1468. https://doi.org/10.1021/ac981010+

Henry, C., Minier, J.-P., Lefèvre, G., & Hurisse, O. (2011). Numerical study on the deposition rate of hematite particle on polypropylene walls: role of surface roughness. *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids*, *27*(8), 4603–4612. https://doi.org/10.1021/la104488a

Herzig, J. P., Leclerc, D. M., & Goff, L. (1970). Flow of suspension through porous media: Application to deep filtration, Ind. *Ind. Ind. Eng. Chem. Res*, *62*, 129–157.

Hu, Y., Liu, X., & Xu, Z. (2003). Role of crystal structure in flotation separation of diaspore from kaolinite, pyrophyllite and illite. *Minerals Engineering*, *16*(3), 219–227. https://doi.org/10.1016/s0892-6875(02)00368-0

Ines, R., Eric, K., Marc, F., Nicolas, P., & Béatrice, L. (2023). Formation damage induced by clay colloids deposition in Triassic clastic geothermal fields: Insights from an experimental approach. *Applied Clay Science*, *234*(106868), 106868. https://doi.org/10.1016/j.clay.2023.106868

Ines, R., Marc, F., Eric, K., Nicolas, P., & Béatrice, L. (2023). Clay-induced permeability decline in sandstone reservoirs: Insights from a coupled NMR-SEM experimental approach. *Geothermics*, *114*(102784), 102784. https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2023.102784

Iwasaki, T. (1937). Some notes on sand filtration. *Journal - American Water Works Association*, *29*(10), 1591–1597. https://doi.org/10.1002/j.1551-8833.1937.tb14014.x

Jahanbakhsh, A., Wlodarczyk, K. L., Hand, D. P., Maier, R. R. J., & Maroto-Valer, M. M. (2020). Review of microfluidic devices and imaging techniques for fluid flow study in porous geomaterials. *Sensors (Basel, Switzerland)*, *20*(14), 4030. https://doi.org/10.3390/s20144030

Johnson, P. R., & Elimelech, M. (1995). Dynamics of colloid deposition in porous media: Blocking based on random sequential adsorption. *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids*, *11*(3), 801–812. https://doi.org/10.1021/la00003a023

Keller, A. A., & Sirivithayapakorn, S. (2004). Transport of colloids in unsaturated porous media: Explaining large-scale behavior based on pore-scale mechanisms: TRANSPORT OF COLLOIDS. *Water Resources Research*, *40*(12). https://doi.org/10.1029/2004wr003315

Kia, S. F., Fogler, H. S., & Reed, M. G. (1987). Effect of pH on colloidally induced fines migration. *Journal of Colloid and Interface Science*, *118*(1), 158–168. https://doi.org/10.1016/0021-9797(87)90444-9

Kim, J., Erath, J., Rodriguez, A., & Yang, C. (2014). A high-efficiency microfluidic device for size-selective trapping and sorting. *Lab on a Chip*, *14*(14), 2480–2490. https://doi.org/10.1039/c4lc00219a

Kleinstreuer, C., & Feng, Y. (2013a). Computational analysis of non-spherical particle transport and deposition in shear flow with application to lung aerosol dynamics--a review. *Journal of Biomechanical Engineering*, *135*(2), 021008. https://doi.org/10.1115/1.4023236

Kleinstreuer, C., & Feng, Y. (2013b). Computational analysis of non-spherical particle transport and deposition in shear flow with application to lung aerosol dynamics—A review. *Journal of Biomechanical Engineering*, *135*(2). https://doi.org/10.1115/1.4023236

Ko, C. H., Bhattacharjee, S., & Elimelech, M. (2000). Coupled influence of colloidal and hydrodynamic interactions on the RSA dynamic blocking function for particle deposition onto packed spherical collectors. *Journal of Colloid and Interface Science*, *229*(2), 554–567. https://doi.org/10.1006/jcis.2000.7062

Ko, C.-H., & Elimelech, M. (2000). The "shadow effect" in colloid transport and deposition dynamics in granular porous media: Measurements and mechanisms. *Environmental Science & Technology*, *34*(17), 3681–3689. https://doi.org/10.1021/es0009323

Kozeny, J. (1927). Uber kapillare leitung der wasser in boden. In *Proc. Class I* (Vol. 136, pp. 271–306).

Kumar Gunda, N. S., Bera, B., Karadimitriou, N. K., Mitra, S. K., & Hassanizadeh, S. M. (2011). Reservoir-on-a-Chip (ROC): A new paradigm in reservoir engineering. *Lab on a Chip*, *11*(22), 3785. https://doi.org/10.1039/c1lc20556k

Kuznar, Z. A., & Elimelech, M. (2007). Direct microscopic observation of particle deposition in porous media: Role of the secondary energy minimum. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *294*(1–3), 156–162. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2006.08.007

Laborie, S. (1998). *Décolmatage de membranes d'ultrafiltration par un écoulement intermittent gaz-liquide. Application à la production d'eau potable*. Thèse INSA.

Lachin, K., Le Sauze, N., Di Miceli Raimondi, N., Aubin, J., Gourdon, C., & Cabassud, M. (2017). Aggregation and breakup of acrylic latex particles inside millimetric scale reactors. *Genie Des Procedes [Chemical Engineering and Processing]*, *113*, 65–73. https://doi.org/10.1016/j.cep.2016.09.021

Langmuir, I. (1918). The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum. *Journal of the American Chemical Society*, *40*(9), 1361–1403. https://doi.org/10.1021/ja02242a004

Lanning, L. M., & Ford, R. M. (2002). Glass micromodel study of bacterial dispersion in spatially periodic porous networks. *Biotechnology and Bioengineering*, *78*(5), 556–566. https://doi.org/10.1002/bit.10236

Lattuada, M., Zaccone, A., Wu, H., & Morbidelli, M. (2016). Population-balance description of shear-induced clustering, gelation and suspension viscosity in sheared DLVO colloids. *Soft Matter*, *12*(24), 5313–5324. https://doi.org/10.1039/c6sm01097k

Le Beulze, A., Santos De Pera, N., Levaché, B., Questel, M., Panizza, P., Lequeux, F., Levant, M., & Passade-Boupat, N. (2023). Jams and cakes: A closer look on well clogging mechanisms in microscale produced water ReInjection experiments. *Transport in Porous Media*, *147*(1), 143–156. https://doi.org/10.1007/s11242-023-01900-0

Legg, B. A., Zhu, M., Comolli, L. R., Gilbert, B., & Banfield, J. F. (2014). Impacts of ionic strength on three-dimensional nanoparticle aggregate structure and consequences for environmental transport and deposition. *Environmental Science & Technology*, *48*(23), 13703–13710. https://doi.org/10.1021/es502654q

Lei, W., Liu, T., Xie, C., Yang, H., Wu, T., & Wang, M. (2020). Enhanced oil recovery mechanism and recovery performance of micro-gel particle suspensions by microfluidic experiments. *Energy Science & Engineering*, *8*(4), 986–998. https://doi.org/10.1002/ese3.563

Levich, V. G. (1962). *Physicochemical hydrodynamics*. 689–700.

Li, Y., Sarıyer, O. S., Ramachandran, A., Panyukov, S., Rubinstein, M., & Kumacheva, E. (2015). Universal behavior of hydrogels confined to narrow capillaries. *Scientific Reports*, *5*(1), 17017. https://doi.org/10.1038/srep17017

Lim, J. W., & Derksen, J. J. (2019). Aggregation in mixing tanks-The role of inter-particle forces. *Chemical Engineering Research and Design*, *152*, 278–287.

Litton, G. M., & Olson, T. M. (1996). Particle size effects on colloid deposition kinetics: evidence of secondary minimum deposition. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *107*, 273–283. https://doi.org/10.1016/0927-7757(95)03343-2

Liu, D., Johnson, P. R., & Elimelech, M. (1995). Colloid deposition dynamics in flow-through porous media: role of electrolyte concentration. *Environmental Science & Technology*, *29*(12), 2963–2973. https://doi.org/10.1021/es00012a012

Liu, H., Ma, C., & Zhu, C. (2022). X-ray micro-CT based characterization of pore-throat network for marine carbonates from South China Sea. *Applied Sciences*, *12*(5).

Liu, Q., Lazouskaya, V., He, Q., & Jin, Y. (2010). Effect of particle shape on colloid retention and release in saturated porous media. *Journal of Environmental Quality*, *39*(2), 500–508. https://doi.org/10.2134/jeq2009.0100

Mackley, M. R., & Sherman, N. E. (1992). Cross-flow cake filtration mechanisms and kinetics. *Chemical Engineering Science*, *47*(12), 3067–3084. https://doi.org/10.1016/0009-2509(92)87007-d

Makino, K., Yamamoto, N., Higuchi, K., Harada, N., Ohshima, H., & Terada, H. (2003). Phagocytic uptake of polystyrene microspheres by alveolar macrophages: effects of the size and surface properties of

the microspheres. *Colloids and Surfaces. B, Biointerfaces*, *27*(1), 33–39. https://doi.org/10.1016/s0927-7765(02)00042-5

Marmey, P., Lebaz, N., Eissa, M., Delair, T., & Elaissari, A. (2020). Polystyrene latex particles bearing primary amine groups via soap-free emulsion polymerization. *Polymer International*, *69*(10), 1038–1044. https://doi.org/10.1002/pi.6060

Marre, S., Adamo, A., Basak, S., Aymonier, C., & Jensen, K. F. (2010). Design and packaging of microreactors for high pressure and high temperature applications. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, *49*(22), 11310–11320. https://doi.org/10.1021/ie101346u

Massimiani, A., Panini, F., Marasso, S. L., Cocuzza, M., Quaglio, M., Pirri, C. F., Verga, F., & Viberti, D. (2023). 2D microfluidic devices for pore-scale phenomena investigation: A review. *Water*, *15*(6), 1222. https://doi.org/10.3390/w15061222

Massimiani, A., Panini, F., Marasso, S. L., Vasile, N., Quaglio, M., Coti, C., Barbieri, D., Verga, F., Pirri, C. F., & Viberti, D. (2023). Design, fabrication, and experimental validation of microfluidic devices for the investigation of pore-scale phenomena in underground gas storage systems. *Micromachines*, *14*(2), 308. https://doi.org/10.3390/mi14020308

May, R., & Li, Y. (2013). The effects of particle size on the deposition of fluorescent nanoparticles in porous media: Direct observation using laser scanning cytometry. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *418*, 84–91. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2012.11.028

Ministère de l'économie, de l'industrie et du numérique. (2015). *Arrêté du 25 juin 2015 relatif aux prescriptions générales applicables aux activités géothermiques de minime importance*. Journal officiel n°0156 du 8 juillet 2015.

Moghadasi, J., Müller-Steinhagen, H., Jamialahmadi, M., & Sharif, A. (2004). Theoretical and experimental study of particle movement and deposition in porous media during water injection. *Journal of Petroleum Science & Engineering*, *43*(3–4), 163–181. https://doi.org/10.1016/j.petrol.2004.01.005

Morais, S. (2016). *Applications des laboratoires géologiques sur puce pour les problématiques du stockage de CO2*. Université de Bordeaux.

Morales, V. L., Gao, B., & Steenhuis, T. S. (2009). Grain surface-roughness effects on colloidal retention in the vadose zone. *Vadose Zone Journal: VZJ*, *8*(1), 11–20. https://doi.org/10.2136/vzj2007.0171

Nabzar, L., & Chauveteau, G. (1997). Permeability damage by deposition of colloidal particles. *All Days*.

Naseri, S., Moghadasi, J., & Jamialahmadi, M. (2015). Effect of temperature and calcium ion concentration on permeability reduction due to composite barium and calcium sulfate precipitation in porous media. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, *22*, 299–312. https://doi.org/10.1016/j.jngse.2014.12.007

Ogolo, N. A., Olafuyi, O. A., & Onyekonwu, M. O. (2012). Enhanced oil recovery using nanoparticles. *All Days*.

O'Neill, M. E. (1968). A sphere in contact with a plane wall in a slow linear shear flow. *Chemical Engineering Science*, *23*(11), 1293–1298. https://doi.org/10.1016/0009-2509(68)89039-6

Park, D. S., Bou-Mikael, S., King, S., Thompson, K. E., Willson, C. S., & Nikitopoulos, D. E. (2012). Design and Fabrication of Rock-Based Micromodel. *Volume 9: Micro- and Nano-Systems Engineering and Packaging, Parts A and B*.

Pauwels, H., Lambert, M., Genter, A. (1991). *Valorisation des fluides géothermaux contenant du lithium en vue d'une production Industrielle*. BRGM R33547.

Pelley, A. J., & Tufenkji, N. (2008). Effect of particle size and natural organic matter on the migration of nano- and microscale latex particles in saturated porous media. *Journal of Colloid and Interface Science*, *321*(1), 74–83. https://doi.org/10.1016/j.jcis.2008.01.046

Perez, A. J., Patiño, J. E., Soos, M., & Morales, V. L. (2020). Morphology of shear-induced colloidal aggregates in porous media: Consequences for transport, deposition, and re-entrainment. *Environmental Science & Technology*, *54*(9), 5813–5821. https://doi.org/10.1021/acs.est.9b05744

Pradhan, S., Shaik, I., Lagraauw, R., & Bikkina, P. (2019). A semi-experimental procedure for the estimation of permeability of microfluidic pore network. *MethodsX*, *6*, 704–713. https://doi.org/10.1016/j.mex.2019.03.025

Raies, I. (2023). *Identification et compréhension des mécanismes de déstabilisation colloïdale dans les procédés géothermiques*. Cergy Paris Université.

Ramachandran, V., & Fogler, H. S. (1998). Multilayer deposition of stable colloidal particles during flow within cylindrical pores. *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids*, *14*(16), 4435–4444. https://doi.org/10.1021/la971207h

Rege, S. D., & Fogler, H. S. (1988). A network model for deep bed filtration of solid particles and emulsion drops. *AIChE Journal. American Institute of Chemical Engineers*, *34*(11), 1761–1772. https://doi.org/10.1002/aic.690341102

Robert de Saint Vincent, M., Abkarian, M., & Tabuteau, H. (2016). Dynamics of colloid accumulation under flow over porous obstacles. *Soft Matter*, *12*(4), 1041–1050. https://doi.org/10.1039/c5sm01952d

Robert Ehrlich, S. K. K. (1984). Petrographic image analysis, I. analysis of reservoir pore complexes. *Journal of Sedimentary Research*, *54*. https://doi.org/10.1306/212f85df-2b24-11d7-8648000102c1865d

Roque, C., Chauveteau, G., Renard, M., Thibault, G., Bouteca, M., & Rochon, J. (1995). Mechanisms of formation damage by retention of particles suspended in injection water. *Proceedings of SPE European Formation Damage Conference*.

Rosenbrand, E., Fabricius, I. L., & Yuan, H. (2012). Thermally induced permeability reduction due to particle migration in sandstones: the effect of temperature on kaolinite mobilisation and aggregation. In *Proceedings, Thirty-Seventh Workshop on Geothermal Reservoir Engineering* (pp. 1–9).

Rosenbrand, Esther, & Fabricius, I. L. (2012). Effect of hot water injection on sandstone permeability: An analysis of experimental literature. *All Days*.

Rosenbrand, Esther, Kjøller, C., Riis, J. F., Kets, F., & Fabricius, I. L. (2015). Different effects of temperature and salinity on permeability reduction by fines migration in Berea sandstone. *Geothermics*, *53*, 225–235. https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2014.06.004

Roth, E. J., Mays, D. C., Neupauer, R. M., Sather, L. J., & Crimaldi, J. P. (2021). Methods for laser-induced fluorescence imaging of solute plumes at the Darcy scale in quasi-two-dimensional, refractive index-matched porous media. *Transport in Porous Media*, *136*(3), 879–898. https://doi.org/10.1007/s11242-021-01545-x

Rousseau, D., Latifa, H., & Nabzar, L. (2007). PWRI-induced injectivity decline: New insights on in-depth particle deposition mechanisms. *All Days*.

Ruckenstein, E., & Prieve, D. C. (1976). Adsorption and desorption of particles and their chromatographic separation. *AIChE Journal. American Institute of Chemical Engineers*, *22*(2), 276–283. https://doi.org/10.1002/aic.690220209

Russel, W. B., Nabzar, L., & Chauveteau, A. G. (1996). *Shear Induced Deposition of Colloïdal Particles in Porous Media*. International Workshop on Colloid Processes in the Environment, Aix-en-Provence, France.

Saffman, P. G. (1965). The lift on a small sphere in a slow shear flow. *Journal of Fluid Mechanics*, *22*(2), 385–400. https://doi.org/10.1017/s0022112065000824

Salerno, M. B., Flamm, M., Logan, B. E., & Velegol, D. (2006). Transport of rodlike colloids through packed beds. *Environmental Science & Technology*, *40*(20), 6336–6340. https://doi.org/10.1021/es0614565

Sanderson, S. L., Cheer, A. Y., Goodrich, J. S., Graziano, J. D., & Callan, W. T. (2001). Crossflow filtration in suspension-feeding fishes. *Nature*, *412*(6845), 439–441. https://doi.org/10.1038/35086574

Sang, W., Morales, V. L., Zhang, W., Stoof, C. R., Gao, B., Schatz, A. L., Zhang, Y., & Steenhuis, T. S. (2013). Quantification of colloid retention and release by straining and energy minima in variably saturated porous media. *Environmental Science & Technology*, *47*(15), 8256–8264. https://doi.org/10.1021/es400288c

Sasidharan, S., Torkzaban, S., Bradford, S. A., Cook, P. G., & Gupta, V. V. S. R. (2017). Temperature dependency of virus and nanoparticle transport and retention in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, *196*, 10–20. https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2016.11.004

Sauret, A., Barney, E. C., Perro, A., Villermaux, E., Stone, H. A., & Dressaire, E. (2014). Clogging by sieving in microchannels: Application to the detection of contaminants in colloidal suspensions. *Applied Physics Letters*, *105*(7). https://doi.org/10.1063/1.4893459

Schaaf, P., & Talbot, J. (1989). Kinetics of random sequential adsorption. *Physical Review Letters*, *62*(2), 175–178. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.62.175

Schembre, J. M., & Kovscek, A. R. (2005). Mechanism of formation damage at elevated temperature. *Journal of Energy Resources Technology*, *127*(3), 171–180. https://doi.org/10.1115/1.1924398

Seidel, P., Lorenz, S., Heinig, T., Zimmermann, R., Booysen, R., Beyer, J., Heitmann, J., & Gloaguen, R. (2019). Fast 2D laser-induced fluorescence spectroscopy mapping of rare earth elements in rock samples. *Sensors (Basel, Switzerland)*, *19*(10), 2219. https://doi.org/10.3390/s19102219

Seymour, M. B., Chen, G., Su, C., & Li, Y. (2013). Transport and retention of colloids in porous media: does shape really matter? *Environmental Science & Technology*, *47*(15), 8391–8398. https://doi.org/10.1021/es4016124

Shah, S. M., Gray, F., Crawshaw, J. P., & Boek, E. S. (2016). Micro-computed tomography pore-scale study of flow in porous media: Effect of voxel resolution. *Advances in Water Resources*, *95*, 276–287. https://doi.org/10.1016/j.advwatres.2015.07.012

Sharp, K. V., & Adrian, R. J. (2005). On flow-blocking particle structures in microtubes. *Microfluidics and Nanofluidics*, *1*(4), 376–380. https://doi.org/10.1007/s10404-005-0043-x

Sharp, Kendra V., & Adrian, R. J. (2001). Shear-induced arching of particle-laden flows in microtubes. *Micro-Electro-Mechanical Systems (MEMS)*.

Shen, C., Wang, L.-P., Li, B., Huang, Y., & Jin, Y. (2012). Role of surface roughness in chemical detachment of colloids deposited at primary energy minima. *Vadose Zone Journal: VZJ*, *11*(1), 0. https://doi.org/10.2136/vzj2011.0057

Sirivithayapakorn, S., & Keller, A. (2003). Transport of colloids in saturated porous media: A pore-scale observation of the size exclusion effect and colloid acceleration: SATURATED COLLOID TRANSPORT. *Water Resources Research*, *39*(4). https://doi.org/10.1029/2002wr001583

Soille, P., & Vincent, L. M. (1990). Determining watersheds in digital pictures via flooding simulations. In M. Kunt (Ed.), *Visual Communications and Image Processing '90: Fifth in a Series*. SPIE.

Song, W., Liu, X., Zheng, T., & Yang, J. (2020). A review of recharge and clogging in sandstone aquifer. *Geothermics*, *87*(101857), 101857. https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2020.101857

Soulaine, C., Maes, J., & Roman, S. (2021). Computational Microfluidics for Geosciences. *Frontiers in Water*, *3*. https://doi.org/10.3389/frwa.2021.643714

Soumane, Y. (2021). *Etude microfluidique du colmatage d'un milieu poreux modèle par un écoulement de suspension*. Université Grenoble Alpes.

Steinwinder, J., & Beckingham, L. E. (2019). Role of pore and pore-throat distributions in controlling permeability in heterogeneous mineral dissolution and precipitation scenarios. *Water Resources Research*, *55*(7), 5502–5517. https://doi.org/10.1029/2019wr024793

Szilagyi, I. (2017). *Tuning particle aggregation in suspensions: from monovalent ions to polyelectrolytes*. Université de Genève. https://doi.org/10.13097/ARCHIVE-OUVERTE/UNIGE:105287

Tale, F., Kalantariasl, A., & Malayeri, M. R. (2021). Estimating transition time from deep filtration of particles to external cake during produced water re-injection and disposal. *Particulate Science and Technology*, *39*(3), 312–321. https://doi.org/10.1080/02726351.2020.1713941

Taylor, D. W. (1948). Fundamentals of soil mechanics. *Soil Science*, *66*(2), 161.

Tien, C., & Payatakes, A. C. (1979). Advances in deep bed filtration. *AIChE Journal. American Institute of Chemical Engineers*, *25*(5), 737–759. https://doi.org/10.1002/aic.690250502

Tufenkji, N., & Elimelech, M. (2004). Deviation from the classical colloid filtration theory in the presence of repulsive DLVO interactions. *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids*, *20*(25), 10818–10828. https://doi.org/10.1021/la0486638

Unsal, E., ten Berge, A. B. G. M., & Wever, D. A. Z. (2018). Low salinity polymer flooding: Lower polymer retention and improved injectivity. *Journal of Petroleum Science & Engineering*, *163*, 671–682. https://doi.org/10.1016/j.petrol.2017.10.069

Van Der Bruggen, B., Vandecasteele, C., Van Gestel, T., Doyen, W., & Leysen, R. (2003). A review of pressure-driven membrane processes in wastewater treatment and drinking water production. *Environmental Progress*, *22*(1), 46–56. https://doi.org/10.1002/ep.670220116

van Hecke, M. (2010). Jamming of soft particles: geometry, mechanics, scaling and isostaticity. *Journal of Physics. Condensed Matter: An Institute of Physics Journal*, *22*(3), 033101. https://doi.org/10.1088/0953-8984/22/3/033101

Verwey, E. J., Overbeek, J. T. G., & Nes, K. V. (1948). *Theory of the stability of lyophobic colloids: the interaction of sol particles having an electric double layer*.

Walshe, G. E., Pang, L., Flury, M., Close, M. E., & Flintoft, M. (2010). Effects of pH, ionic strength, dissolved organic matter, and flow rate on the co-transport of MS2 bacteriophages with kaolinite in gravel aquifer media. *Water Research*, *44*(4), 1255–1269. https://doi.org/10.1016/j.watres.2009.11.034

Wan, J., Tokunaga, T. K., Tsang, C.-F., & Bodvarsson, G. S. (1996). Improved glass micromodel methods for studies of flow and transport in fractured porous media. *Water Resources Research*, *32*(7), 1955–1964. https://doi.org/10.1029/96wr00755

Wan, J., & Wilson, J. L. (1994). Colloid transport in unsaturated porous media. *Water Resources Research*, *30*(4), 857–864. https://doi.org/10.1029/93wr03017

Wang, C., Bobba, A. D., Attinti, R., Shen, C., Lazouskaya, V., Wang, L.-P., & Jin, Y. (2012). Retention and transport of silica nanoparticles in saturated porous media: effect of concentration and particle size. *Environmental Science & Technology*, *46*(13), 7151–7158. https://doi.org/10.1021/es300314n

Ward, S. G., & Whitmori, R. L. (1950). Studies of the viscosity and sedimentation of suspensions Part 2. - The viscosity and sedimentation of suspensions of rough powders. *British Journal of Applied Physics*, *1*(12), 325–328. https://doi.org/10.1088/0508-3443/1/12/303

Wei, H., Chueh, B.-H., Wu, H., Hall, E. W., Li, C.-W., Schirhagl, R., Lin, J.-M., & Zare, R. N. (2011). Particle sorting using a porous membrane in a microfluidic device. *Lab on a Chip*, *11*(2), 238–245. https://doi.org/10.1039/c0lc00121j

Wei, X., Pan, D., Xu, Z., Xian, D., Li, X., Tan, Z., Liu, C., & Wu, W. (2021). Colloidal stability and correlated migration of illite in the aquatic environment: The roles of pH, temperature, multiple cations and humic acid. *The Science of the Total Environment*, *768*(144174), 144174. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.144174

Wennberg, K. E., & Sharma, M. M. (1997). Determination of the filtration coefficient and the transition time for water injection wells. *All Days*.

Wyss, H. M., Blair, D. L., Morris, J. F., Stone, H. A., & Weitz, D. A. (2006). Mechanism for clogging of microchannels. *Physical Review. E, Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, *74*(6). https://doi.org/10.1103/physreve.74.061402

Wyss, H. M., Franke, T., Mele, E., & Weitz, D. A. (2010). Capillary micromechanics: Measuring the elasticity of microscopic soft objects. *Soft Matter*, *6*(18), 4550. https://doi.org/10.1039/c003344h

Xu, S., Liao, Q., & Saiers, J. E. (2008). Straining of nonspherical colloids in saturated porous media. *Environmental Science & Technology*, *42*(3), 771–778. https://doi.org/10.1021/es071328w

Yan, Z., Huang, X., Shui, L., & Yang, C. (2020). Kinetics of colloidal particle deposition in microfluidic systems under temperature gradients: experiment and modelling. *Soft Matter*, *16*(15), 3649–3656. https://doi.org/10.1039/c9sm02102g

Yao, K.-M., Habibian, M. T., & O'Melia, C. R. (1971). Water and waste water filtration. Concepts and applications. *Environmental Science & Technology*, *5*(11), 1105–1112. https://doi.org/10.1021/es60058a005

Yeates, C., Youssef, S., & Lorenceau, E. (2019). New insights of foam flow dynamics in a high-complexity 2D micromodel. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *575*, 184–198. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2019.04.092

You, Z., Badalyan, A., Yang, Y., Bedrikovetsky, P., & Hand, M. (2019). Fines migration in geothermal reservoirs: Laboratory and mathematical modelling. *Geothermics*, *77*, 344–367. https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2018.10.006

You, Zhenjiang, Yang, Y., Badalyan, A., Bedrikovetsky, P., & Hand, M. (2016). Mathematical modelling of fines migration in geothermal reservoirs. *Geothermics*, *59*, 123–133. https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2015.05.008

Yuan, H. (1981). The influence of pore coordination on petrophysical parameters. *Proceedings of SPE Annual Technical Conference and Exhibition*.

Yuan, R., Zhang, W., Tao, X., Wang, S., & Zhang, L. (2020). Coupled effects of high pH and chemical heterogeneity on colloid retention and release in saturated porous media. *Colloids and Surfaces. A, Physicochemical and Engineering Aspects*, *586*(124285), 124285. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2019.124285

Zaccone, A., Gentili, D., Wu, H., Morbidelli, M., & Del Gado, E. (2011). Shear-driven solidification of dilute colloidal suspensions. *Physical Review Letters*, *106*(13). https://doi.org/10.1103/physrevlett.106.138301

Zaccone, A., Wu, H., Gentili, D., & Morbidelli, M. (2009). Theory of activated-rate processes under shear with application to shear-induced aggregation of colloids. *Physical Review. E, Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, *80*(5). https://doi.org/10.1103/physreve.80.051404

Zarikos, I. M., Hassanizadeh, S. M., van Oosterhout, L. M., & van Oordt, W. (2018). Manufacturing a micro-model with integrated fibre optic pressure sensors. *Transport in Porous Media*, *122*(1), 221–234. https://doi.org/10.1007/s11242-018-1000-y

Zhang, F., Erriguible, A., & Marre, S. (2019). Investigating laminar mixing in high pressure microfluidic systems. *Chemical Engineering Science*, *205*, 25–35. https://doi.org/10.1016/j.ces.2019.03.063

Zhang, F., Marre, S., & Erriguible, A. (2020). Mixing intensification under turbulent conditions in a high pressure microreactor. *Chemical Engineering Journal (Lausanne, Switzerland: 1996)*, *382*(122859), 122859. https://doi.org/10.1016/j.cej.2019.122859

Zhang, Q., Karadimitriou, N. K., Hassanizadeh, S. M., Kleingeld, P. J., & Imhof, A. (2013). Study of colloids transport during two-phase flow using a novel polydimethylsiloxane micro-model. *Journal of Colloid and Interface Science*, *401*, 141–147. https://doi.org/10.1016/j.jcis.2013.02.041

Zhang, Q., Raoof, A., & Hassanizadeh, S. M. (2015). Pore-scale study of flow rate on colloid attachment and remobilization in a saturated micromodel. *Journal of Environmental Quality*, *44*(5), 1376–1383. https://doi.org/10.2134/jeq2015.01.0058

Zhang, W., Morales, V. L., Cakmak, M. E., Salvucci, A. E., Geohring, L. D., Hay, A. G., Parlange, J.-Y., & Steenhuis, T. S. (2010). Colloid transport and retention in unsaturated porous media: effect of colloid input concentration. *Environmental Science & Technology*, *44*(13), 4965–4972. https://doi.org/10.1021/es100272f

Zhang, Z., Kruschwitz, S., Weller, A., & Halisch, M. (2018). Enhanced pore space analysis by use of μ-CT, MIP, NMR, and SIP. *Solid Earth*, *9*(6), 1225–1238. https://doi.org/10.5194/se-9-1225-2018

Annexes

Annexe A : Calcul des forces DLVO

Paramètre	
Diamètre moyen grain	140 µm
Diamètre particule	1 µm
Potentiel zêta	- 60 mV pour des polystyrènes fonctionnalisés avec des carboxyles + 40 mV pour des polystyrènes fonctionnalisés avec des amidines
ε_r @ 25°C	78,5
ε_0	8,85x10^{-12} C/V.m
Inverse de la longueur de Debye $\kappa = \sqrt{\frac{e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_r k_B T} \frac{W}{1-W} z N_A \frac{\rho_p}{MWp}}$	e = 1,60x10^{-19} C : charge élémentaire
	k_B = 1,38x10^{-23} J/K : constante de Boltzmann
	N_A =6,022x10^{23} l/mol : nombre d'Avogadro
	T = 298 K : température
	W = 1x10^{-4} : fraction volumique particulaire
	z = 5x10^3 (mesuré dans l'eau distillée, Gögelein *et al.*, 2012)
	ρ_p= 1050 kg/m^3 : densité d'une particule
	MW_p = 300 kg/mol : poids moléculaire du polystyrène
Constante de Hamaker (A)	$A_{polystyrène}$= 6,5x10^{-20} J (Gong *et al.*, 2001)
	A_{eau}= 6 x10^{-20} J (Gong *et al.*, 2001)
	A_{silice}= 3,7x10^{-20} J (Gong *et al.*, 2001)
$A_{33} \equiv A_{milieu}$	3,7x10^{-20} J
A_{132}	3,92x10^{-21} J pour les interactions polystyrène-polystyrène
	3,29x10^{-21} J pour les interactions polystyrène-verre

Annexe B : Champs de pression – collaboration A. Erriguible (I2M, Bordeaux INP)

En collaboration avec A. Erriguible (I2M, Bordeaux INP), nous avons procédé à la simulation des champs de pression associés à chacune des géométries et aux différents débits utilisés lors des expériences d'injection (Figure 131).

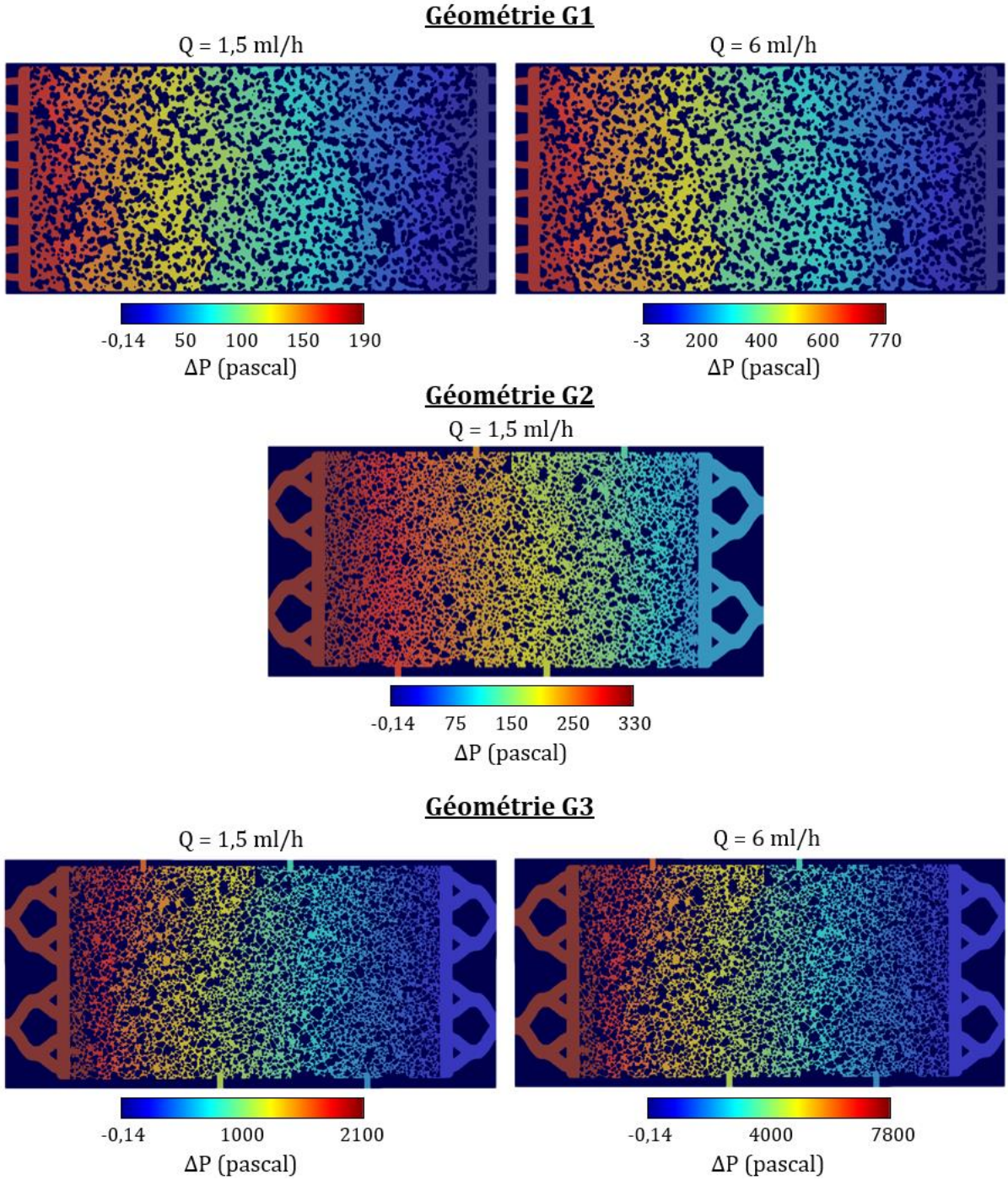


Figure 131 - Champs de pression associés à chacune des configurations d'injection réalisées lors de l'étude expérimentale. Trois géométries (G1, G2 et G3) ont été utilisées, et selon Q = 1,5 ml/h ou Q = 6 ml/h.

Annexe C : Présentation des capteurs FOP-MIV

Les capteurs de pression à fibre optique correspondent à des piézomètres miniaturisés développés par Fiso, conventionnellement utilisés pour mesurer la pression des fluides dans les tissus vivants. Les capteurs utilisés dans le cadre de nos travaux sont les modèles FOP-MIV-30, dont le diamètre est de 550 µm. Une gaine en polyamide permet de protéger le capteur, donnant ainsi un diamètre global de 635 µm. Une présentation schématique du capteur de pression est illustrée par la figure suivante (Figure 132).

Le fonctionnement du capteur repose sur le principe de l'interférométrie de Fabry-Pérot. Une cavité cylindrique (appelée cavité de Fabry-Pérot) est formée entre une membrane souple, avec une surface intérieure réfléchissante, et une surface optique de référence à l'extrémité de la fibre optique. La pression du fluide agissant sur la membrane flexible la déforme et modifie par conséquent la longueur d de la cavité. La lumière, émise par une source lumineuse, traverse la fibre optique et pénètre dans la cavité, est réfléchie par la surface de la membrane et revient enfin à travers la fibre optique vers le spectromètre. Le spectre mesuré de la lumière, modifié par le changement de longueur de la cavité, est alors traduit en pression (Zarikos *et al.*, 2018).

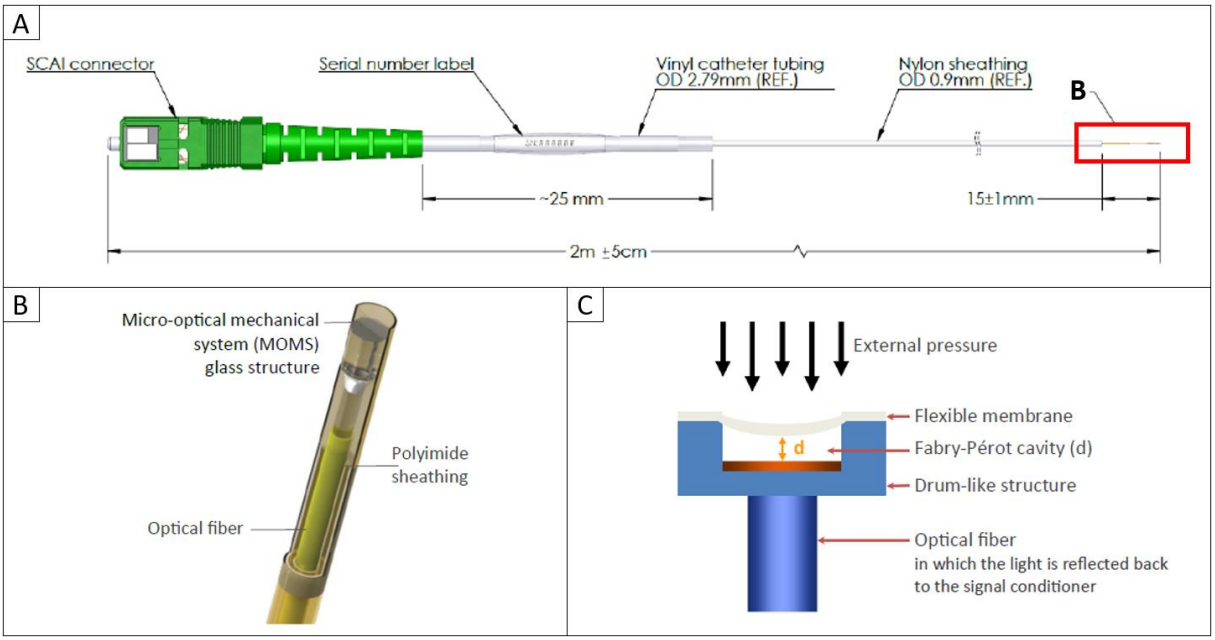


Figure 132 - A/ Présentation du capteur fibre optique relié au connecteur pour la remontée des signaux. B/ Zoom sur le capteur de pression fibre optique. C/ Schéma du principe de la cavité Fabry-Pérot. Les images sont issues de la fiche technique Fiso.

Annexe D : Champs de vitesse – collaboration A. Erriguible (I_2M, Bordeaux INP)

Cette annexe présente les résultats de simulation, effectuées en collaboration avec A. Erriguible (I_2M, Bordeaux), pour les injections réalisées au sein des géométries G1, G2 et G3, à débit Q = 1,5 ml/h ou Q = 6 ml/h.

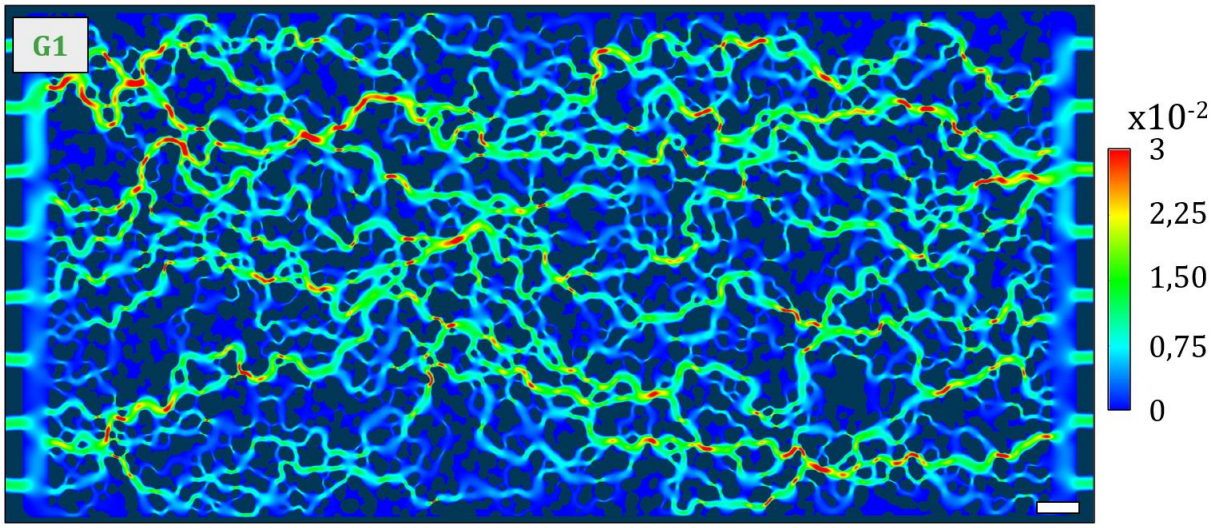


Figure 133 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 1,5 ml/h au sein de la géométrie G1. La barre d'échelle correspond à 850 µm.

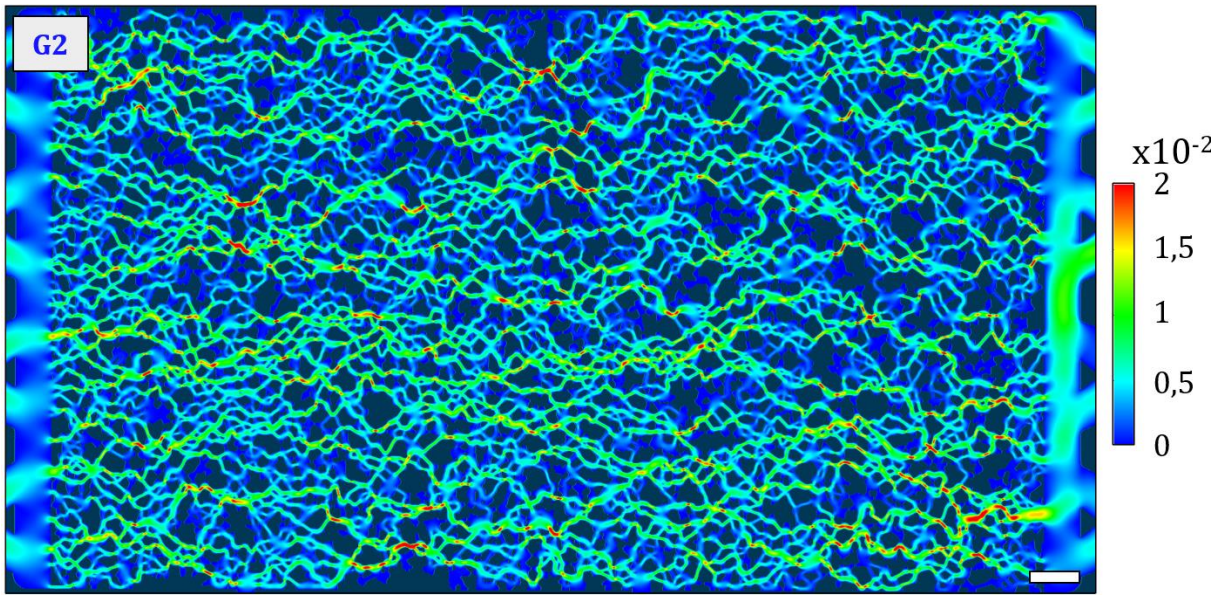


Figure 134 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 1,5 ml/h au sein de la géométrie G2. La barre d'échelle correspond à 850 µm.

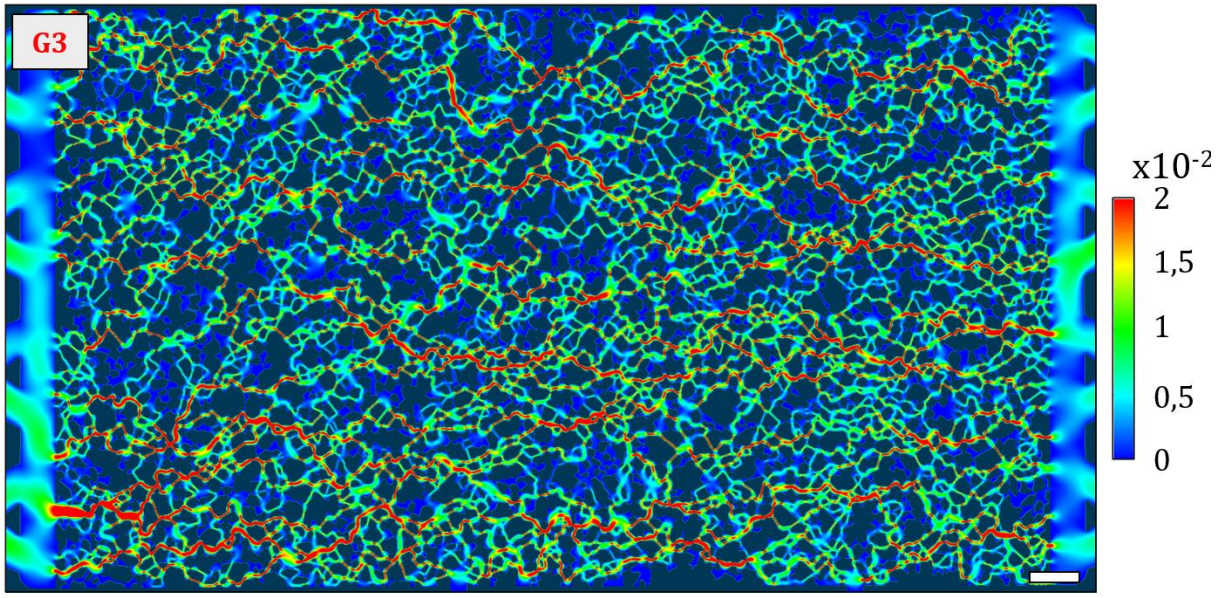


Figure 135 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 1,5 ml/h au sein de la géométrie G3. La barre d'échelle correspond à 850 µm.

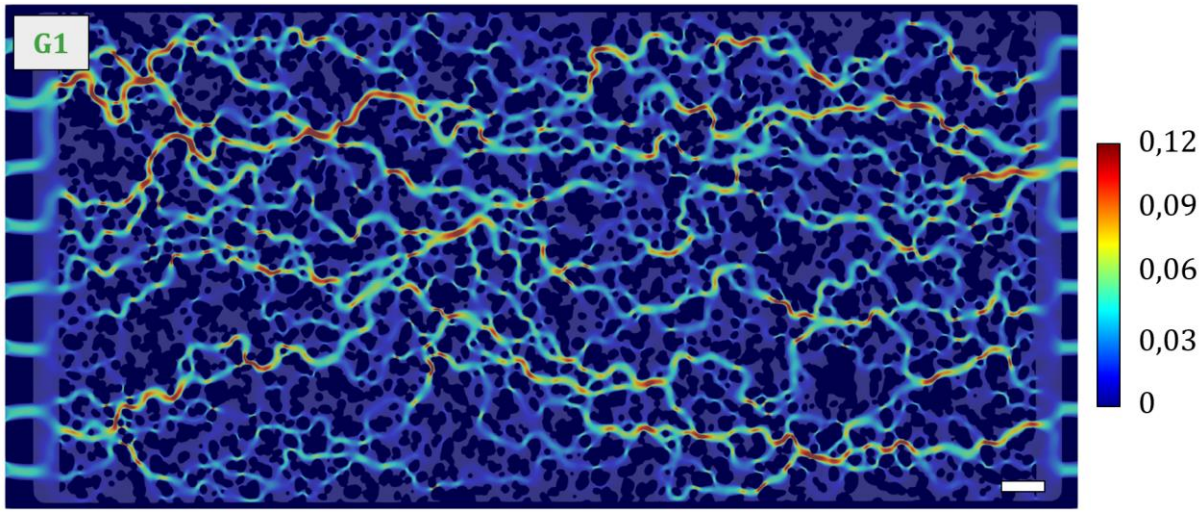


Figure 136 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 6 ml/h au sein de la géométrie G1. La barre d'échelle correspond à 850 µm.

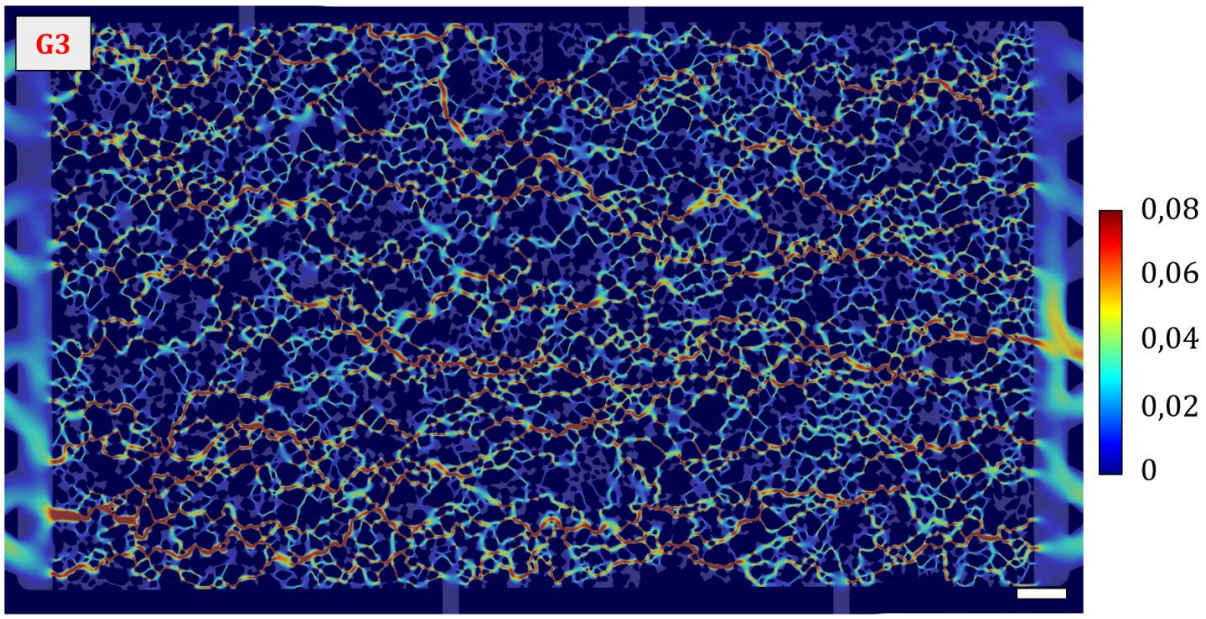


Figure 137 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 6 ml/h au sein de la géométrie G3. La barre d'échelle correspond à 850 µm.

Annexe E : Caractéristiques sable GA39 (société SIBELCO)

GA39

Fiche Technique Type

Composition chimique type

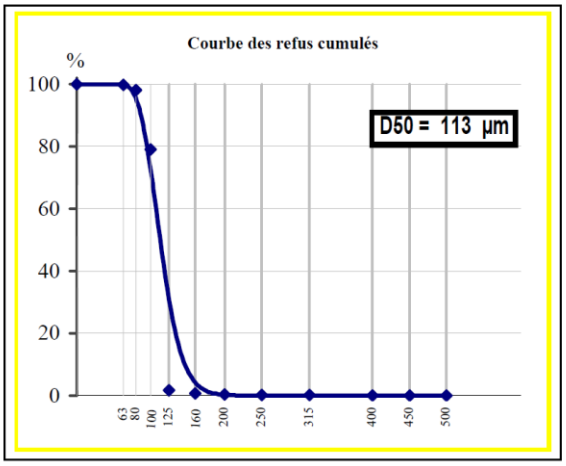
SiO_2 ..... sup. à	99,06	%
Fe_2O_3 .... moy. à	0,033	%
Al_2O_3 ..... moy. à	0,476	%
TiO_2 ..... moy. à	0,059	%
CaO ..... moy. à	0,013	%
K_2O ..... moy. à	0,279	%

Caractéristiques physiques types

densité réelle (Pycnomètre)	2,65
dureté (Mohs)	7
pH	# 7
densité apparente sable sec ("Prolabo")	1,5
surface spécifique ("G F")	NC
coefficient d'angulosité ("G F")	1,1
perte au feu (à 1000°C)	maxi 0.12%
résistance pyroscopique (SFC ISO R528) ..	1750 °C

GRANULOMETRIE MOYENNE STATISTIQUE

(% en masse - Valeurs indicatives)

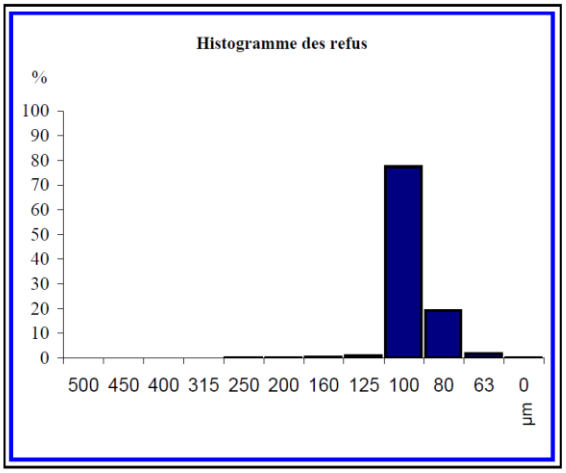


TAMISAGE AFNOR X.11-507

ouverture des mailles µm	refus cumulés %
> 500 µm	0,0
> 450 µm	0,0
> 400 µm	0,0
> 315 µm	0,1
> 250 µm	0,2
> 200 µm	0,4
> 160 µm	0,7
> 125 µm	1,6
> 100 µm	79,0
> 80 µm	98,1
> 63 µm	99,9
> 0 µm	100,0

CORRESPONDANCE Série R20 ISO 565

ouverture des mailles µm	refus cumulés %
> 2000 µm	0,0
> 1400 µm	0,0
> 1000 µm	0,0
> 630 µm	0,0
> 500 µm	0,0
> 315 µm	0,1
> 250 µm	0,2
> 180 µm	1,1
> 125 µm	1,6
> 63 µm	99,9
passe	0,1



Classe µm	refus par tamis %
> 500 µm	0,0
500-450 µm	0,0
450-400 µm	0,0
400-315 µm	0,1
315-250 µm	0,1
250-200 µm	0,2
200-160 µm	0,3
160-125 µm	0,9
125-100 µm	77,4
100-80 µm	19,1
80-63 µm	1,8
Passant	0,1

Classe µm	refus par tamis %
> 2000 µm	0,0
2000-1400µm	0,0
1400-1000µm	0,0
1000 - 630µm	0,0
630 - 500 µm	0,0
500-315 µm	0,1
315 - 250 µm	0,1
250 - 180 µm	0,9
180 - 125 µm	0,6
125 - 63 µm	98,3
< 63 µm	0,1

particules < 20 µm : maxi NC % sur sable lavé

SIBELCO FRANCE

Réf : 2011-1

LABORATOIRE DE NEMOURS
2, Rue de Foljuif
77140 Saint-Pierre-Lès-Nemours
Tel : +33 (0)1 64 28 72 74 Fax : +33 (0)1 64 29 22 22

SIEGE SOCIAL ET DIRECTION COMMERCIALE
141 Avenue de CLICHY 75848 PARIS Cedex 17
Tel : +33 (0)1 53 76 82 00 Fax : +33 (0)1 42 25 32 23
site web : www.Sibelco.fr

Annexe F : Calibration spectrophotomètre AVANTES

Le spectrophotomètre AVANTES permet de réaliser des mesures d'absorbance en ligne lors de l'injection d'une suspension de particules, et ce sur toute la durée de l'expérience. A partir de la mesure d'absorbance réalisée sur l'ensemble du spectre UV-visible (200-700 nm) et d'une courbe de calibration, on peut établir la valeur de concentration de la suspension lors de son passage dans les cellules de mesure situées en amont et en aval du milieu poreux.

Nous avons vérifié que de très faibles concentrations en particules étaient détectées par l'appareil de mesure et ce de façon répétable (Figure 138).

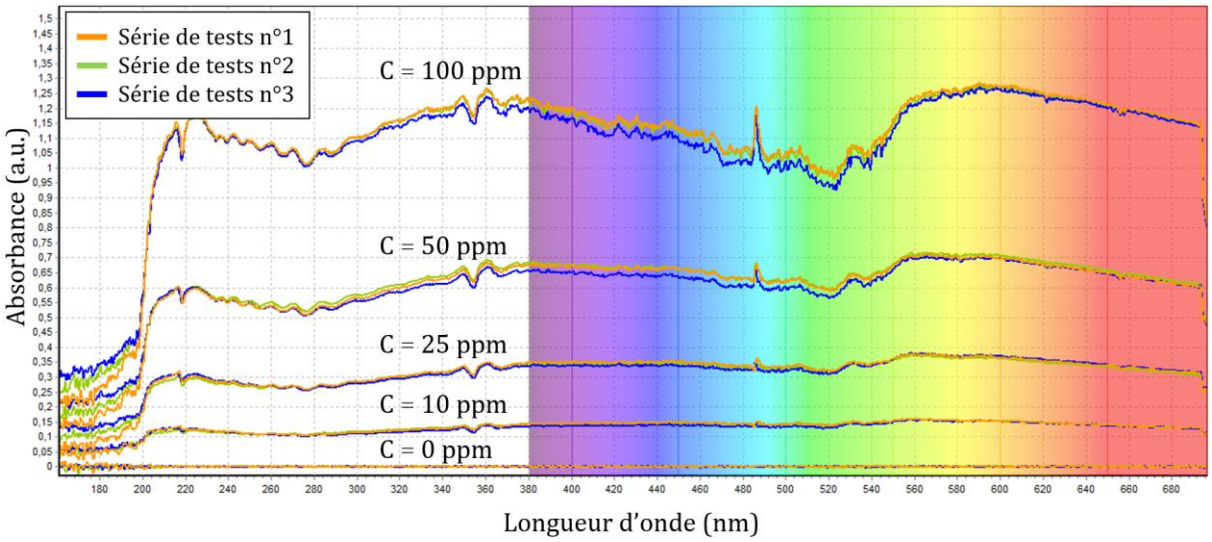


Figure 138 - Signal d'absorbance sur l'ensemble du spectre du domaine visible lors de l'injection d'une suspension à différentes concentrations de particules de polystyrène carboxylé.

Plusieurs courbes de calibration ont été extraites de ces mesures. Ainsi, pour différentes longueurs d'ondes, l'absorbance peut être tracée en fonction de la concentration de la suspension de particules de polystyrène carboxylé injectée. Pour les deux cellules de mesures, en amont (Figure 139(a)) et en aval (Figure 139(b)) du milieu poreux, une relation linéaire peut être établie.

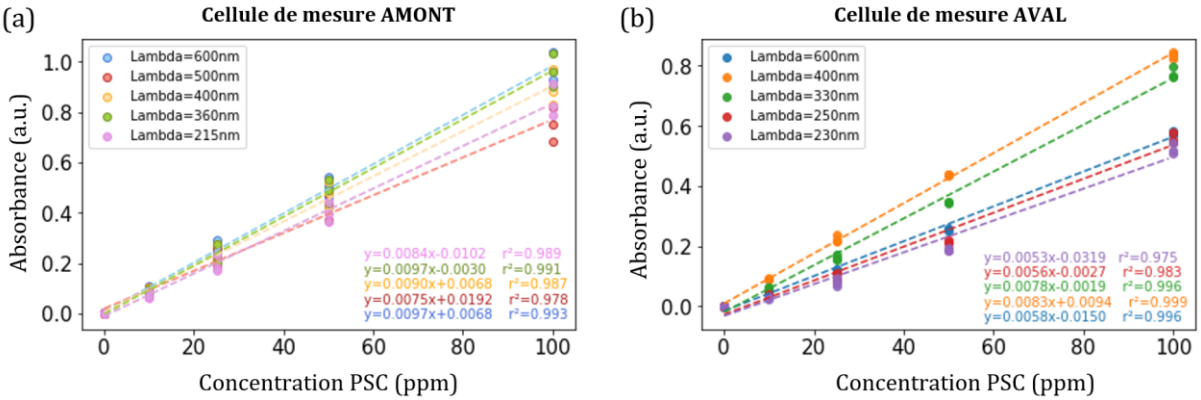


Figure 139 - Courbes de calibration pour les cellules de mesure (a) en amont et (b) en aval du milieu poreux. L'absorbance est fonction de la concentration de la suspension injectée et de la longueur d'onde.

A partir des mesures d'absorbance réalisées en continu au cours de l'injection et de ces calibrations, il est possible de vérifier et monitorer la concentration de la suspension avant son arrivée dans le milieu poreux. En parallèle, la mesure de la concentration des effluents (à la sortie du milieu poreux) est assurée par la cellule en aval.

Table des figures

Introduction

Figure 1 - (a) Schéma simplifié du fonctionnement d'un doublet géothermal (Agemar et al., 2014) et (b) illustration des différents paramètres en jeu lors de la circulation des fluides au sein du milieu poreux. Les grains apparaissent en marron, les particules en rouge et jaune et le sens de l'écoulement est donné par la flèche bleue. 2
Figure 2 - Proportions des différents types de colmatage (Song et al., 2020). 3

Chapitre 1

Figure 1.3 - Représentation schématique de la double-couche électrique selon le modèle de Stern pour une particule sphérique. 6
Figure 1.4 - Evolution du profil de l'énergie d'interaction totale en fonction de la distance d de séparation entre deux surfaces selon la théorie DLVO. 7
Figure 1.5 - Ordre de grandeur de quelques milieux poreux (Université de Lausanne) 10
Figure 1.6 - Principales approches et méthodes pour calculer le taux de dépôt des particules (Canseco Ruiz, 2009). 11
Figure 1.7 - Sites de rétention (Delanchambre, 1966). 13
Figure 1.8 - Mécanismes dominants de capture d'une particule autour d'un collecteur sphérique (Tien et Payatakes, 1979) 13
Figure 1.9 - Représentation d'un grain collecteur et d'une particule en approche avec les lignes de courant et la forme (en vert) de la couche de diffusion (modifié de Rousseau *et al.*, 2007). 14
Figure 1.10 - Description schématique de l'ombrage dynamique avec (a) la vue de l'écoulement autour d'un collecteur sphérique, (b) la vue latérale de la région délimitée en pointillés, où l'écoulement tangent et l'effet d'ombrage sont maximal à un angle de 90 degrés par rapport au point de stagnation en amont et (c) la région d'ombrage dynamique en aval d'une particule déposée (issu de Ko et Elimelech, 2000) 18
Figure 1.11 - Profil non-DLVO avec les coefficients cinétiques d'adsorption Kd et de désorption Kr1 et Kr2. 19
Figure 1.12 - Forces agissant sur une particule à proximité d'une surface sous l'effet d'un flux ; U correspond à la vitesse de l'écoulement, M_A et M_T aux moments d'adhésion et traînée, F_T et F_P correspondent aux forces de traînée et de portance respectivement, E_{DC} à l'énergie potentielle de double-couche et E_{VdW} à l'énergie d'interaction de Van der Waals. 20
Figure 1.13 - Configuration de coreflood utilisée pour les injections de polymères à phase unique. Le régulateur de pression (« backpressure ») permet de se placer dans les conditions réservoir (issu de Unsal *et al.*, 2018). 21
Figure 1.14 - Représentation du transport de particules dans un milieu poreux et des mécanismes d'endommagement associés ; les mécanismes de pontage mono-particulaire et multiparticulaire sont ici visibles (issu de Chauveteau *et al.*, 1998). 22
Figure 1.15 - (a) Evolution de la perméabilité et de la concentration en particules des suspensions collectées en sortie du milieu poreux, en relation avec les quatre phases d'endommagement progressif (modifié de Chauveteau *et al.*, 1998) ; (b) Illustrations correspondantes des mécanismes de réduction de la perméabilité avec la formation d'un premier gâteau interne puis externe (modifié de Tale *et al.*, 2020) 23
Figure 1.16 - Exemples de motifs : (a) régulier ; (b) irrégulier, basé sur les diagrammes de Voronoi (issu de Massimiani et al., 2023) 25
Figure 1.17 - Exemple d'une approche multi-étapes pour le design d'un micromodèle à géométrie réaliste (issu de Lei et al., 2020). 26

Figure 1.18 - Mécanismes principaux du colmatage à l'échelle microscopique : (a) le tamisage, (b) le pontage et (c) l'agrégation (issu de Dressaire & Sauret, 2017).....27
Figure 1.19 - Séries d'images d'une particule en microgel déformée selon l'augmentation de la pression p appliquée. De la gauche vers la droite : p= 100, 150, 200, 250, 300 Pa. L'écoulement pousse la particule dans la zone la plus étroite du capillaire conique (issu de Wyss et al., 2010). 28
Figure 1.20 - Ecoulement et colmatage par pontage d'une suspension de particules de PMMA dans un capillaire de verre conique axisymétrique (modifié de Dressaire & Sauret, 2017). 28
Figure 1.21 - (a-e) Illustration du mécanisme de colmatage par agrégation. Les images sont prises à 3, 5, 10 et 36 minutes avec un flux de $2{,}8 \times 10^4$ particules/min à l'entrée du dispositif (issu de Dersoir et al., 2015) ; (f-h) Schéma illustrant le mécanisme d'agrégation, depuis le dépôt de la première particule à la formation d'un dépôt multicouche (issu de Dressaire & Sauret, 2017).....30
Figure 1.22 - Croissance d'un dépôt monocouche à la paroi ; les forces répulsives empêchent l'adhésion particule/particule et donc la croissance d'un agrégat. Le dépôt se fait dans les zones d'ombrages dynamiques définies par les lignes d'écoulement et les particules précédemment déposées.....30
Figure 1.23 - 1) Coefficients de dépôt des colloïdes en milieu poreux saturé ou insaturé (issu de Sang et al., 2013) et 2) Efficacités d'attachement (α) calculées pour différentes tailles de colloïdes en suspension dans du KCl, et pour une large gamme de forces ioniques de la solution (pH = 5,7 ± 0,2) (Pelley et Tufenkji, 2008). 32
Figure 1.24 - 1) Images de dépôt des particules en latex de 4.1 μm sur des billes de verre dans du KCl à différentes concentrations (indiquées dans les coins supérieurs droits ; les autres conditions expérimentales employées sont un pH de 11 et une température de 25 ◦C (±1 ◦C). L'écoulement se fait de la droite vers la gauche. 2) Profils d'énergie d'interaction DLVO entre les particules de latex et les billes de verre (constante de Hamaker du système latex-eau-verre de 10^{-20} J, température de 25°C). Figures issues de Kuznar et Elimelech, 2006. 32
Figure 1.25 - 1) Dépôt global F au cours du temps redimensionné par la saturation de surface S_0, pour des forces ioniques croissantes. Les lignes pleines correspondent aux données, les lignes pointillés correspondent au modèle ajusté ; les valeurs au-dessus de la ligne horizontale ne sont pas quantitatives en raison des limites de résolution. 2) Images de microscopie confocale des particules déposées (en rouge) dans l'espace poreux entre les billes de verre (en noir) dans une fenêtre de 150x150 μm^2, à l'entrée du milieu. La suspension s'écoule vers le haut (figures issues de Gerber *et al.*, 2019). 33
Figure 1.26 - Courbes de percée des particules de latex de 0,753 μm en fonction du temps selon différentes concentrations en 1) KCl et 2) CaCl2. Les conditions expérimentales sont les suivantes : vitesse interstitielle de 0,14 cm/s, lit de 20 cm et taille du collecteur égale à 0,4 mm (Elimelech et O'Melia, 1990). 34
Figure 1.27 - Variation du ratio de perméabilité en fonction du temps selon la concentration en ion calcium avec une concentration fixe en ion barium à 0,740 g/L et une température de 50°C (Naseri *et al.*, 2015). .35
Figure 1.28 - Courbes de percée des expériences d'adsorption sur colonnes pour des colloïdes préalablement lavés dans (a) de l'eau déionisée ou (b) de l'acide (issu de Yuan *et al.*, 2020). 36
Figure 1.29 - Influence de la taille des particules sur l'efficacité d'attachement α pour différentes valeurs de force ionique (pH = 9,8 et [SDS] = 10^{-3} M) pour a) des colloïdes en latex carboxylé et b) des colloïdes en latex sulfaté et de l'hématite (Litton et Olson, 1995).....37
Figure 1.30 - Efficacité d'un collecteur unique en fonction de la taille des colloïdes, calculée à partir d'une équation développée par Tufenkji et Elimelech (2004) pour estimer la probabilité de collision (Auset et Keller, 2006). 37
Figure 1.31 - Distributions de la fluorescence détectée des nanoparticules de (a) 57, (b) 210 et (c) 510 nm dans une section de 12 mm de long au milieu du canal d'écoulement, après une injection de 40 PV de la solution de nanosphères suivie par une injection de 10 PV de la solution de fond (3mM NaCl, pH = 7). Chaque point correspond à la localisation d'un évènement enregistré par le scan LSC lorsque la fluorescence

est détectée. La taille du point n'est pas liée à la taille de la particule détectée et la barre colorée représente l'intensité de fluorescence détectée (modifié de May et Li, 2013). 38
Figure 1.32 - 1) Images optiques (en haut) et au microscope électronique à balayage (SEM, en bas) de particules ayant des rapports de taille de 1:1 (contrôle), 2:1, et 3:1. 2) Fraction des particules retenues dans les colonnes garnies en fonction du rapport de taille et de la force ionique (les barres d'erreur représentent les intervalles de confiance à 95% avec n ≥ 3) (Salerno *et al.*, 2006). 39
Figure 1.33 - Distribution des nanoparticules sphériques (gauche) et en forme de bâtonnet (2:1) attachées (droite) après quatre étapes des expériences menées à 3 mM NaCl, pH 7.0, 0.00025% (w/v) de solides et une vitesse de Darcy de 0.04 cm/s. 10 PV, 10 PV, 20 PV et 40 PV de suspension de particules ont été injectés pour les étapes 1 à 4, respectivement, suivis par 10 PV de solution de fond et un balayage LSC au même endroit après chaque étape (issu de Seymour *et al.*, 2013)....40
Figure 1.34 - Images de microscopie électronique à balayage (MEB) des particules en forme de cacahuète (Xu *et al.*, 2007). 41
Figure 1.35 - Courbes de percée des effluents observés et simulés pour diverses concentrations en entrée (2*Cr, Cr, 0,5*Cr et 0,25*Cr) de colloïdes de 1 µm dans du sable (a) 3550 (diamètre moyen de 360 µm), (b) MIX (240 µm) et (c) 70110 (150µm). Une courbe de percée du traceur bromure est également illustrée en tant que référence (modifié de Bradford et Bettahar, 2005)....42
Figure 1.36 - Variations du ratio de la perméabilité en fonction du temps selon la concentration des suspensions injectées dans la colonne (Moghadasi *et al.*, 2004). 43
Figure 1.37 - Courbes de percée correspondant aux expériences sur colonnes selon les différentes fractions de grains recouverts d'oxyhydroxyde de fer – les ratios sont indiqués sur les courbes (Johnson *et al.*, 1996). 44
Figure 1.38 - a) Milieu poreux avec 17% de billes fonctionnalisées avec des amines "+" (rouge) et 83% de billes fonctionnalisées avec des carboxyles "-" (bleu) - determination par fluorescence. La flèche indique le sens de l'écoulement et les ronds circulaires oranges correspondent aux piliers supportant l'enceinte du milieu poreux. b) Courbes de percée des expériences d'injection de particules colloidales carboxylées (0,5µm de diamètre) dans des milieux poreux à différents ratios de billes fonctionnalisées avec des amines ou des carboxyles. Le pourcentage indique la part de billes « + » et la ligne pointillée indique le début du rinçage à l'eau distillée (figures issues de Guo *et al.*, 2020). 45
Figure 1.39 - Courbes de percée pour des sables lisses et rugueux de 0,3 à 0,42 mm (a) non saturés et (b) saturés. Le bromure a été utilisé en tant que traceur pour la courbe de référence (en noir) (Morales *et al.*, 2009). 46
Figure 1.40 - 1) Efficacités de collision en fonction de la force ionique pour les colloïdes de 3 et µm (polystyrène) injectés dans les micromodèles rugueux (« rough ») et lisse (« smooth ») (Auset et Keller, 2006). 2) Images du dépôt des colloïdes dans (a) le micromodèle A (smooth) et (b) le micromodèle B (rough). Les lignes de courant sont dessinées à la main pour indiquer le trajet des colloïdes (Auset et Keller, 2006).....47
Figure 1.41 - Courbes de percée de la concentration en colloïdes de la suspension mesurée en dans les effluents selon un débit d'injection différent (q, 5q et 10q correspondent à 50, 250 et 500 nL/min respectivement) ; PNM signifie modèle de milieu poreux 'Pore-Network Model' et correspond aux simulations effectuées (Zhang *et al.*, 2015). 48
Figure 1.42 - A et C) Images au microscope confocal du dépôt des particules de polystyrène aminées (en rouge) au sein du milieu poreux (billes de verre en noir) selon les deux gradients de pression imposés à l'écoulement (260 kPa et 80 kPa respectivement) ; la barre d'échelle correspond à 200 µm. B et D) indiquent la quantité de dépôt à chaque position le long de la direction d'écoulement, avec A_d la surface moyenne latérale occupée par les particules déposées et $A_{pore,0}$ la surface de l'espace poreux avant l'injection. Issu de Bizmark *et al.*, 2020....49

Figure 1.43 - A et C) Images au microscope confocal du dépôt des particules de polystyrène carboxylées (en rouge) au sein du milieu poreux (billes de verre en noir) selon les deux gradients de pression imposés à l'écoulement (170 kPa et 80 kPa respectivement) ; la barre d'échelle correspond à 200 μm. B et D) indiquent la quantité de dépôt à chaque position le long de la direction d'écoulement, avec A_d la surface moyenne latérale occupée par les particules déposées et $A_{pore,0}$ la surface de l'espace poreux avant l'injection. Issu de Bizmark *et al.*, 2020.....50
Figure 1.44 - (A) Schéma du système microfluidique. Deux thermocouples (TC 1 et TC 2) sont utilisés pour mesurer la température à la surface du PDMS et au niveau du système de chauffage du micromodèle (film mince d'oxyde d'indium et d'étain (200 nm d'épaisseur)). (B) Nombre de particules déposées par unité de surface en fonction du temps d'injection (débit fixe à 0,1 ml/h) pour quatre gradients de température différents. Figures issues de Yan *et al.* (2020).....51
Figure 1.45 - (A) et (B) Concentrations des effluents (marqueurs) et les courbes de simulations correspondantes (lignes) associées à l'injection des virus ΦX174 et PRD1 respectivement, pour des expériences menées à température 4 ou 20 °C à des forces ioniques de 10 ou 50 mM. La vitesse interstitielle de pore est fixée à 0,1 m/jour. (C) et (D) Concentrations des effluents (marqueurs) et les courbes de simulations correspondantes (lignes) associées à l'injection d'une suspension de NP (diamètre 100nm) avec des expériences conduites à des forces ioniques de 10 mM et 30mM respectivement, selon une température de 4 ou 20°C et une vitesse de pore de 0,1 ou 1 m/jour. Figures issues de Sasidharan *et al.* (2017).....52
Figure 1.46 - Mécanismes de transport dans les milieux poreux.....53

Chapitre 2

Figure 2.47 - Analyses élémentaires des dépôts impliqués dans le colmatage des éléments de la boucle géothermique. L'axe des abscisses (ARHI12, AS1, CP1 …) correspond aux noms de différents doublets pour lesquels les mesures ont été réalisées (Burté, 2018).....61
Figure 2.48 - Représentations schématiques d'une particule de polystyrène avec un groupe fonctionnel de surface (a) amidine et (b) carboxyle (modifié depuis Szilagyi, 2017).....62
Figure 2.49 - Observation des particules de polystyrène carboxylé sur des grilles de comptage (cellules de Thoma) au microscope confocal en transmission.....63
Figure 2.50 - Distributions granulométriques des différentes particules de polystyrène utilisées lors des injections. PSC indique les particules fluorescentes portant des carboxyles tandis que PSA correspond au polystyrène avec des groupements amidines.....64
Figure 2.51 - (a) Potentiel zêta de deux suspensions de particules de polystyrène amidine (PSA) à différentes concentrations en fonction du pH (ajusté par ajout d'HCl) ; chaque point correspond à la moyenne d'au moins 6 mesures différentes. (b) Potentiel zêta des suspensions de particules de polystyrène carboxyle (PSC) à pH=5.....65
Figure 2.52 - Interactions DLVO totales (forces électrostatiques et forces de Van der Waals) calculées pour les particules de polystyrène amidines (courbes oranges) et carboxylées (courbes bleues) lorsqu'elles interagissent entre elles (a) ou avec le milieu poreux (b) lorsque mises en suspension dans de l'eau distillée. 66
Figure 2.53 - Spectres d'émission en fluorescence de suspensions constituées de microsphères de polystyrène fluorescent carboxylé et eau distillée à différentes concentrations (λ_{exc} = 355 nm).....67
Figure 2.54 - Evolution de la viscosité au cours du temps à un taux de cisaillement $\gamma = 250$ s^{-1} pour l'eau milli-Q (fenêtre du haut) et une suspension de particules de polystyrène carboxylé à concentration C = 1000 ppm (fenêtre du bas).....69
Figure 2.55 - Distribution granulométrique de l'illite du Puy en suspension obtenue avec l'équipement DLS d'HORIBA.....70

Figure 2.56 - (a) Visuels associés à la puce microfluidique Micronit. (b) Modèle binarisé du milieu poreux noté G1 (les grains apparaissent en blanc tandis que les zones poreuses sont en noir). 72
Figure 2.57 - Analyse du réseau poreux au sein de la géométrie G1 ; distributions des grandeurs caractéristiques associées aux éléments du réseau poreux (grains, pores et seuils).....73
Figure 2.58 - (a) Visuels associés aux puces microfluidiques avec la géométrie G2. (b) Photographie du micromodèle à prises de pression intermédiaires dans son holder avec les fibres optiques mises en place. (c) Modèle binarisé du milieu poreux (les grains apparaissent en blanc tandis que les zones poreuses sont en noir). Les encadrés de couleur indiquent les sections au sein desquelles la réduction de mobilité est mesurée grâce aux capteurs de pression en fibre optique.....75
Figure 2.59 - Analyse du réseau poreux au sein de la géométrie G2 ; distributions des tailles de seuils de pores et grandeurs caractéristiques des grains et pores. 76
Figure 2.60 - Modèle binarisé du milieu poreux noté G3 (les grains apparaissent en blanc tandis que les zones poreuses sont en noir). Les différentes sections de mesures de perte de charge sont soulignées par différents encadrés de couleur.....77
Figure 2.61 - Analyse du réseau poreux au sein de la géométrie G3 ; distributions des tailles de seuils de pores et grandeurs caractéristiques des grains et pores. 78
Figure 2.62 - Cartographie et profil de la tortuosité le long de la direction d'écoulement pour chacune des géométries utilisées lors des expériences d'injection en milieu poreux. L'injection se fait de la gauche vers la droite pour chacun des milieux poreux présentés. La barre d'échelle correspond à 1mm.....79
Figure 2.63 - Cartographies et profils de la vitesse d'écoulement le long du milieu poreux pour chacune des géométries utilisées. L'échelle de couleur exprime la vitesse en m/s pour chacune des géométries. Ces simulations sont réalisées pour un débit d'injection Q = 1,5 ml/h. La barre d'échelle correspond à 1 μm.80
Figure 2.64 - (a) Illustration 3D de la cellule porte-échantillon avec prises de pressions multiples utilisée lors des expériences d'injection en milieu poreux granulaire. (b) Photographie de la cellule mise en place sur le banc expérimental n°2 à l'emplacement usuel du micromodèle et de la lampe LED de rétro-éclairage. (c) Description schématique du massif granulaire et des différentes sections associées aux mesures de perte de charge. 84
Figure 2.65 - Schéma du principe de la spectroscopie LIF. Les photons d'énergie $\boldsymbol{h\nu = Ej - Ei}$ excitent la transition $\boldsymbol{i \rightarrow j}$. La fluorescence correspond à l'émission spontanée de lumière pendant le temps de relaxation vers le niveau $\boldsymbol{k}$. $\boldsymbol{\rho}$ est la densité spectrale de l'énergie, $\boldsymbol{Bij}$ correspond au coefficient d'Einstein pour l'absorption, I est l'intensité du faisceau laser et $\boldsymbol{\sigma}$ est la section efficace d'absorption. $\boldsymbol{A}$ fait référence aux coefficients d'Einstein pour une émission spontanée et Q correspond à la désexcitation non-radiative. 87
Figure 2.66 - Dispositif expérimental axé autour de l'imagerie LIF. 1 : Laser Néodynium-Doped Yttrium Aluminium Garnet (Nd-YAG) 355 nm ; 2 : Générateur de pulse quantique ; 3 : Shutter mécanique ; 4 : Boitier des cartes ET/OU ; 5 : Mesureur de puissance Labmax ; 6 : Atténuateur de puissance laser ; 7 : caméra Kinetix ; 8 : Micromodèle et son support ; 9 : Pousse-seringue ; 10 : Débitmètre Fluigent ; 11 : Pompe Pharmacia ; 12 : Régulateur de pression Zaiput ; 13 : Récupération des effluents. 88
Figure 2.67 - (a) Milieu poreux saturé avec une solution de rhodamine B. (b) Cinétique de l'intensité de fluorescence moyenne du milieu poreux entier au cours du temps. Les encadrés rouge et bleu correspondent aux images utilisées (soit 500 images pour chaque période) pour la construction des profils présentés en (c). Ces profils correspondent au profil moyen établi sur 500 images pour chacune des périodes séparés par 6h d'acquisition.....91
Figure 2.68 - Courbes de calibration (b) et (c) des intensités de fluorescence en fonction de la concentration de la suspension en particules dans la zone réservoir en amont du milieu poreux (a).....92
Figure 2.69 - (a) Champ de concentration obtenu après l'injection de $4{,}5.10^9$ particules de polystyrène carboxylé au sein du milieu poreux G1 (injection PM21). La flèche bleue indique la direction de

l'écoulement. (b) Cinétique de la réduction de mobilité du milieu en fonction du temps lors de l'injection d'une suspension concentrée à 100 ppm et à débit Q = 1,5 ml/h (injection PM21). Le point rouge correspond au temps d'injection associé au champ de concentration présenté en (a).....93
Figure 2.70 - Schéma du dispositif expérimental pour les injections. 1 : Agitateur ; 2 : Réservoir de la suspension colloïdale ; 3/4 : régulateur de débit modulaire Fluigent basé sur la pression ; 5 : pompe Strata DCP50 ; 6 : pousse-seringue ; 7 : caméra Canon ; 8 : plaque LED ; 9 : puce microfluidique et support ; 10 : spectrophotomètre Avantes ; 11/12 : régulateurs de contre-pression Zaiput (une seule alimentation pour les deux) ; 13/14 : récupération des effluents. Les carrés ocres correspondent aux cellules de mesures du spectrophotomètre.....94
Figure 2.71 - Détail d'un dépôt observé lors de l'injection d'une suspension colloïdale en (a) niveau de gris et (b) binarisé (dépôt en noir, espace poreux et grain en blanc). Illustration schématique de la distribution des valeurs de gris de l'image (c) en niveau de gris et (d) après l'opération de seuillage qui la binarise. 96
Figure 2.72 - (a) Image en niveau de gris obtenue à l'issue de l'injection de 5.10^{10} particules dans le milieu poreux G1 (expérience PM119). (b) Observations à l'échelle du pore de certains dépôts encadrés en rouge en (a). (c) Cinétiques de la fraction surfacique représentée par le dépôt et du niveau de gris moyen normalisé au cours de l'injection. (d) Evolution du coefficient de réduction de mobilité en fonction du nombre de particules injectées.....97
Figure 2.73 - (a) Calcul des vitesses interstitielles moyennes associées aux débits minimum et maximum choisis pour les injections dans la géométrie G1. L et l correspondent à la longueur et largeur du micromodèle, respectivement. P et S sont la profondeur et la section, φ la porosité, Vi la vitesse interstitielle, Q le débit et V la vitesse d'écoulement. (b) Schéma de l'injection d'un fluide à débit Q = 200 $m^3.h^{-1}$ dans une couche de roche d'une épaisseur h par un puits de rayon $\boldsymbol{rw}$. (c) Evolution de la vitesse d'écoulement du fluide autour du puits injecteur.....99

Chapitre 3

Figure 3.74 - Caractérisation macroscopique (sur toute la longueur du micromodèle) du dépôt lors de l'injection de particules de polystyrène fonctionnalisées par des carboxyles (expérience PM18) : (a) images des champs de concentration obtenues par LIF et montrant les sites de dépôt dans le milieu poreux (T1 = 1370 min, T2= 2400 min soit $6,23x10^{10}$ et $1,09x10^{11}$ particules injectées, respectivement) ; (b) les profils de dépôt correspondants montrent la quantité de dépôt à chaque position le long de la direction du flux et (c) évolution de la concentration moyenne dans le milieu poreux lors de l'injection. 108
Figure 3.75 - (a) Image binarisée du micromodèle (grains en gris et espace poreux en blanc). L'encadré rouge indique la zone correspondant aux images présentées en (b). (c) Evolution de fraction surfacique du dépôt au cours de l'injection (expérience PM118) sur l'ensemble du micromodèle. La surface de dépôt évaluée correspond à celle du milieu poreux. Les points rouges notés T0, T1 et T2 correspondent aux images du milieu poreux et des dépôts présentées en (b). La barre d'échelle correspond à 850 µm. 109
Figure 3.76 - Champ de concentration obtenu à la fin de l'injection PM18 (haut) et carte de la tortuosité du milieu poreux (bas) obtenu à partir de l'algorithme formulé par Chaniot et al. (2019)..... 110
Figure 3.77 - Panorama des régimes d'écoulement et nombres de Péclet associés au sein du milieu poreux G1. Le champ de vitesse est obtenu à partir d'une simulation à débit d'injection Q = 1,5 ml/h. Les limites des régimes sont de simples indicateurs vis-à-vis de l'échelle de vitesse présentée. 112
Figure 3.78 - Lignes de courant à proximité des zones de collection, établies par simulation numérique, et images en niveau de gris de ces zones où des dépôts ont pu être observés (en noir). Les lignes de courant permettent d'apprécier les variations très localisées de la vitesse à proximité des grains. 113
Figure 3.79 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux zones d'observations LIF considérées dans la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C :

observations du champ de concentration local au niveau des pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur (positions des grains dans l'encadré rouge de la colonne A, même ligne). Les images sont issues de l'injection PM21. (a), (b), (c), (d) et (e) correspondent respectivement aux pièges à l'entrée d'un pore étroit, dans une zone de flux faible, en aval des grains, au point de stagnation en amont d'un grain et à la confluence de deux écoulements locaux respectivement..... 114
Figure 3.80 - Panorama d'agrégats formés au sein du milieu poreux G1 pour différentes conditions d'injection (débit et concentration de la suspension de polystyrène carboxylé). La barre d'échelle correspond à 200 μm. G indique un grain..... 115
Figure 3.81 - Profils d'évolution de la viscosité de la suspension en fonction du temps, pour quatre différents taux de cisaillement et fraction volumique particulaire, tel qu'indiqué dans la légende. Les points correspondent à des données expérimentales tandis que les lignes correspondent à des prédictions de modèle (Lattuada et al., 2016)..... 116
Figure 3.82 - Calcul des forces DLVO et forces de traînée associées à deux vitesses d'écoulement différentes (vitesse maximale associée à chacun des débits d'injection i.e. Q = 1,5 ou 6 ml/h). Le diamètre particulaire considéré est 1 μm. Ce bilan a été déterminé pour les particules de polystyrènes carboxylés (PSC, charges négatives) et amidines (PSA, charges positives). 117
Figure 3.83 - Profils de croissance d'un dépôt au seuil d'un pore (expérience M12, concentration de la suspension égale à 1000 ppm et débit d'injection Q = 1,5 ml/h). Pour chaque profil, le nombre de particules injectées est indiqué (*) et une image correspondante du seuil de pore est affichée. La flèche noire indique la direction du flux et la marque rouge indique la localisation exacte du profil tracé. Les zones grises correspondent aux phases solides (grains). La dernière figure présente les multiples profils tout au long du processus d'injection..... 119
Figure 3.84 - (a) Environnement local du seuil de pore considéré avec en encadré rouge l'imagerie présentée en (b). (b) Champs de fluorescence associé à la surconcentration progressive de la zone de piège. Les contours des grains sont indiqués en blanc pointillé. (c) Profils de remplissage établis le long de la direction perpendiculaire à l'écoulement (A et B sont indiqués en (a)). (d) Evolution de la concentration moyenne au sein de la fenêtre correspond aux images présentées en (b) au cours de l'injection de la suspension de particules (expérience PM21). (e) Imagerie en NDG (expérience M9) permettant de montrer le résultat du colmatage stable du seuil par un agrégat dense et compact..... 120
Figure 3.85 - (a) S1 à S6 présentent des séries d'images en niveau de gris de différents seuils de pore colmatés progressivement par le dépôt multicouche de particules aux parois. (b) et (c) Cinétiques du niveau de gris moyen normalisé des fenêtres d'images des séries S1 à S3 (expériences M9, M15 et M12 respectivement) et des séries S4 à S6 (expériences PM120, PM119 et PM118 respectivement)..... 121
Figure 3.86 - Champ de vitesse des zones d'écoulement présentées à la figure précédemment (S1 à S6 sont indiqués par les rectangles rouges respectivement). La simulation est réalisée pour Q = 1,5 ml/h. Les flèches jaunes indiquent le sens de l'écoulement et l'échelle correspond à 200 μm pour l'ensemble des zones d'observation..... 122
Figure 3.87 - Panorama de seuils de pores colmatés dans le cadre d'injections réalisées selon différentes conditions expérimentales (débit d'injection et concentration de la suspension). 123
Figure 3.88 - (a) Image binarisée de l'environnement proche de la zone d'écoulement étudiée. (b) Représentation schématique de l'écoulement local et du piège considéré. (c) Champs de concentration successifs illustrant le phénomène d'arrachement après l'accumulation et l'agrégation hydrodynamique de particules dans la zone de piège (expérience PM18). (d) Evolution de la concentration moyenne au sein de la zone (c) au cours de l'injection..... 124
Figure 3.89 - Observations expérimentales (gauche) et simulations numériques du champ de vitesse (droite) illustrant le phénomène d'érosion : (a) dépôt plus en aval ou (b) colmatage ultérieur d'un seuil de pore

(expérience M12 pour les deux cas). L'intervalle d'acquisition entre T0 et T1 est 3 min pour (a) et (b) et la barre d'échelle représente 200 µm. En rouge sont encadrés les agrégats déplacés. 125
Figure 3.90 - (a) et (b) sont les comparaisons des cinétiques de réduction de mobilité avec la fraction surfacique représentée par le dépôt au cours de l'injection pour les expériences M9 et M12 (C_0 et 10 C_0 respectivement). (c) et (d) sont les comparaisons de l'imagerie LIF aux cinétiques de réduction de mobilité pour les expériences PM21 et PM18 (C_0 et 10 C_0 respectivement). Les différences observées entre les données de la LIF et celles de l'imagerie en niveau de gris sont dues aux différences au niveau des seuils de détection entre les 2 techniques. 128
Figure 3.91 - (a) Cinétiques d'endommagement à l'issue de trois expériences menées à débit identique Q=1,5 ml/h mais à concentration de la suspension différente (expériences PM21, PM115 et PM18 pour les injections à C_0, $5C_0$ et $10C_0$ respectivement). (b) Zoom sur la cinétique d'endommagement pour l'injection à C_0. 129
Figure 3.92 - Comparaison des cinétiques de réduction de mobilité pour différentes conditions expérimentales (débit d'injection identique mais différentes concentrations de la suspension). Les références aux expériences sont indiquées dans les légendes. 130
Figure 3.93 - Lignes de courant de deux zones du milieu poreux à 2 débits d'injection différents. Attention, les échelles sont différentes 131
Figure 3.94 - Panorama présentant différents seuils de pores colmatés pour des conditions opératoires identiques avec des particules de diamètre (a) 1,75 µm ou (b) 4,5 µm. 132
Figure 3.95 - Illustration par l'imagerie en niveau de gris de la formation d'agrégats dans les zones de pièges à proximité des collecteurs dans deux zones différentes notées (a) et (b). Ces zones sont étudiées dans le cas de l'injection d'une suspension de particules de 1,75 µm de diamètre (expérience PM122) et de 4,5 µm de diamètre (expérience M5) réalisées à concentration identique (100 ppm). La barre d'échelle correspond à 150 µm 133
Figure 3.96 - (a) et (b) : réductions de mobilité associées aux injections d'une suspension de particules de diamètre 1, 1,75 ou 4,5 µm à une concentration de 100 ppm et un débit Q=1,5 ml/h. (c) et (d) : réductions de mobilité associées aux injections d'une suspension de particules de diamètre 1, 1,75 ou 4,5 µm à une concentration de 100 ppm et un débit Q = 6 ml/h. 134
Figure 3.97 - (a) Evolution du coefficient de réduction de mobilité en fonction de la fraction volumique de particules injectées. Les courbes présentées sont identiques à celles de la figure précédente. Attention, pour une meilleure lisibilité, l'axe des abscisses est en échelle logarithmique. (b) Représentations schématiques de la collection de particules de diamètre différent dans une zone de piège 135
Figure 3.98 - Séries d'images issues de l'injection M8. La barre d'échelle correspond à 200 µm pour l'ensemble. En rouge sont entourés les dépôts de particules résultants de l'éventuelle présence d'aspérités dans le micromodèle (microrugosité). I1, I2 et I3 correspondent à l'injection de $8{,}54 \times 10^8$, $1{,}82 \times 10^9$ et $1{,}95 \times 10^9$ particules, respectivement, dans le milieu poreux. 137
Figure 3.99 - (a) Image binarisée du micromodèle (grains en gris et espace poreux en blanc). L'encadré rouge indique la zone correspondant aux images présentées en (c). (b) Evolution de fraction surfacique du dépôt au cours de l'injection pour les expériences M7 et M8 à débit Q = 1,8 ml/h et dont les concentrations sont 50 et 100 ppm respectivement. La surface de dépôt évaluée correspond à celle dans la zone rouge indiquée en (a). Les points rouges notés I1 et I2 correspondent aux images du milieu poreux et des dépôts présentées en (c), prises après l'injection de $1{,}2 \times 10^{10}$ particules dans le milieu poreux. 138
Figure 3.100 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur. Les images sont issues de l'injection M8. (a), (b), (c), (d) et (e) correspondent aux pièges dans une zone de flux faible, en aval des

grains, à la confluence de deux écoulements locaux, à l'entrée d'un pore étroit et au point de stagnation en amont d'un grain, respectivement..... 139
Figure 3.101 - (a) et (b) : Réductions de mobilité associées aux injections des suspensions de particules PSA et PSC, de diamètre 1 μm à une concentration de 100 ppm et un débit Q = 1,5 ml/h. 140
Figure 3.102 - Courbe caractéristique de réduction de mobilité au cours d'une injection et mécanismes de colmatage associés. 143
Figure 3.103 - En couleur apparaissent les courbes de réduction de mobilité associées aux expériences (a) M9, (b) M15, (c) M13, (d) PM1, (e) PM120 et (f) PM124 tandis que les courbes en noir correspondent à la modélisation de la première phase d'endommagement par l'équation 3.1. Se reporter au tableau 2.5 pour la correspondance des conditions expérimentales aux expériences. 144
Figure 3.104 - Valeurs du facteur a en fonction de la concentration, obtenu pour différentes expériences menées avec la géométrie G1. En rouge apparaissent les points moyennés et la courbe de tendance associée. 145
Figure 3.105 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux G3 et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur. Les images sont issues de l'injection K1. (a), (b), (c) et (d) correspondent aux pièges dans une zone de flux faible, en aval des grains, à l'entrée d'un pore étroit et au point de stagnation en amont d'un grain respectivement. 146
Figure 3.106 - Panorama de seuils de pores colmatés par un mécanisme stable de construction progressive d'un dépôt multicouche. 147
Figure 3.107 - (a) Images en niveau des gris d'une fenêtre de 270 μm x 270 μm de large lors de l'injection à Q = 1,5 ml/h d'une suspension concentrée à 100 ppm (injection K1). Le dépôt apparait en noir. (b) Champ de vitesse simulé de la zone d'intérêt. L'encadré jaune correspond aux images de (a) et la flèche bleue indique le sens de l'écoulement. (c) Evolution du niveau de gris moyen normalisé dans la fenêtre d'observation (a) au cours de l'injection de particules. Toutes les images de (a) ne sont pas indiquées pour une meilleure lisibilité. 148
Figure 3.108 - Illustration du mécanisme d'arrachement et de colmatage d'un seuil par le déplacement de l'agrégat érodé lors de l'injection à Q = 1,5 ml/h d'une suspension concentrée à 10 ppm (injection K3).149
Figure 3.109 – (a) Schéma des différentes sections de mesure de la perte de charge pour le milieu G3. (b) Evolution de la fraction surfacique du dépôt le long du milieu poreux G3 en fonction du nombre de particules injectées pour différentes conditions opératoires spécifiées dans chacun des graphiques (diamètre des particules égal à 1 μm). Les courbes rouges correspondent à la perte de charge globale le long du micromodèle et les autres courbes sont associées aux différentes sections du milieu poreux. (c) Images du milieu poreux pour les trois injections considérées lorsque $1x10^9$ particules ont été injectées. La flèche bleue indique le sens de l'écoulement. 150
Figure 3.110 - Cinétique des réductions de mobilité observées sur : (a) et (b) l'ensemble du milieu poreux et (c) et (d) la première section du milieu qui correspond à la zone la plus en amont de l'écoulement. (b) et (d) correspondent à un aperçu des encadrés signalés en (a) et (c) respectivement (seules les concentrations à 10 ppm sont représentées). 151
Figure 3.111 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux G2 et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges à proximité immédiate d'un grain collecteur. Les images sont issues de l'injection L1. (a), (b), (c) et (d) correspondent aux pièges dans une zone de flux faible, en aval des grains, à l'entrée d'un pore étroit et au point de stagnation en amont d'un grain respectivement..... 153

Figure 3.112 - (a) Image binarisée du milieu poreux G2 indiquant la zone de construction d'un cake de filtration interne. (b) Evolution de la fraction surfacique du dépôt au cours de l'injection pour les expériences L1 et L2 menées à Q = 1,5 ml/h, 100 et 1000 ppm respectivement. Les points jaune fluo et bleu fluo correspondent aux séries d'images présentées en (c) où le dépôt apparait en noir. 154
Figure 3.113 - (a) Image en niveau de gris du milieu poreux après 19333 volumes de pore (VP) injectés lors de l'injection à Q = 1,5 ml/h d'une suspension concentrée à 1000 ppm (L2). (b) Profils de distribution des dépôts au sein du milieu poreux selon l'axe perpendiculaire à l'écoulement. L'intervalle entre chaque profil tracé correspond à l'injection de 1250 VP soit ~6,8x10^{9} particules. 155
Figure 3.114 - Cinétique des réductions de mobilité pour l'ensemble des sections (se référer à la section Matériels et méthodes pour la correspondance) et le milieu poreux global. Attention, l'axe des abscisses est présenté ici en échelle logarithmique pour une meilleure lisibilité. 157
Figure 3.115 - Evolution des réductions de mobilité au cours du temps pour les injections réalisées avec des particules de polystyrène carboxylé de diamètre 1µm à concentration de (a) 100ppm (expériences M9, L1 et K1 pour les géométries G1, G2 et G3 respectivement) et (b) 1000 ppm (expériences PM17 et L2 pour les géométries G1 et G2 respectivement). Le débit d'injection est Q = 1,5 ml/h. 158
Figure 3.116 - Descriptif schématique des étapes menant au colmatage éventuel d'un milieu poreux lorsqu'une suspension de particules s'y écoule. Les deux mécanismes finaux sont soulignés. 160
Figure 3.117 - Schéma représentatif de différentes échelles études. 161

Chapitre 4

Figure 4.118 - Colonne A : Images binarisées du milieu poreux et du proche environnement de la zone de piège considérée. Les encadrés rouges correspondent aux observations détaillées de la colonne C. Colonne B : représentations schématiques de l'écoulement local et du piège. Colonne C : observations en niveau de gris des agrégats formés dans les pièges. Les images sont issues de l'injection K5. (a), (b), (c), (d) et (e) correspondent aux pièges au point de stagnation en amont d'un grain, en aval d'un grain, dans une zone de flux faible, à l'entrée d'un pore étroit et à la confluence de deux écoulements locaux, respectivement. ... 168
Figure 4.119 - (a) Illustration du phénomène de colmatage par fermeture progressive et stable d'un seuil de pore (expérience K5). La barre d'échelle correspond à 40 µm. (b) Evolution du niveau de gris dans la fenêtre d'observation présentée en (a) au cours de l'injection de la suspension de particules. 169
Figure 4.120 - Illustration du mécanisme de colmatage par déplacement d'un agrégat puis tamisage. La barre d'échelle correspond à 100 µm. Le champ de vitesse initial de la zone de formation de l'agrégat et de l'environnement proche figure également à droite des images en niveau de gris. T0 et T1 sont séparées par 15 min. 170
Figure 4.121 - Images MEB du milieu poreux faiblement endommagé après 1 heure (à droite) et après 20h (à gauche) d'injection d'illites (Raies et al., 2023). 171
Figure 4.122 - Cinétiques de réduction de mobilité associées aux différentes sections du micromodèle représentées dans l'insert (se référer à la section Matériels et méthodes pour les dimensions des sections). La courbe rouge correspond à la perte de charge globale. 172
Figure 4.123 - Dépôts en milieu poreux (géométrie G1) selon différentes configurations : (a) en amont des grains, (b) dans les zones de stagnation en aval d'un grain et (c) au niveau d'un seuil de pore (travaux Zaineb Trad, 2019). 173
Figure 4.124 - Cinétique de réduction de mobilité obtenue pour le milieu poreux dans sa globalité et pour différentes sections (se référer au chapitre 2 pour la correspondance exacte) lors de l'injection d'une suspension de particules de polystyrène carboxylé à concentration de 100 ppm et Q = 1 L/h dans le massif 1. 174
Figure 4.125 - Cinétique de réduction de mobilité obtenue pour le milieu poreux dans sa globalité et pour différentes sections (se référer au chapitre 2 pour la correspondance exacte) lors de l'injection d'une

suspension de particules de polystyrène carboxylé à concentration de 10 ppm et Q = 1 L/h dans le massif 2. 174
Figure 4.126 - Comparaison des cinétiques d'endommagement pour les injections Massif 1 et Massif 2. En jaune apparaissent les courbes associées à la première section du milieu poreux tandis que les courbes rouges correspondent aux mesures faites sur le milieu poreux dans son ensemble. 175
Figure 4.127 - Différentes méthodes de lutte contre le colmatage (Laborie, 1998). 176
Figure 4.128 - Illustrations du réentrainement des dépôts par l'injection d'air dans le milieu poreux (injection M5). La barre d'échelle correspond à 200 µm. 178
Figure 4.129 - Cinétique d'endommagement (injection K3) avec la phase d'injection de la suspension de polystyrène et la phase finale de balayage avec l'eau milli-Q. 179

Conclusion

Figure 130 - Diagramme ternaire récapitulant les facteurs clés nécessaires à l'agrégation hydrodynamique de particules mises en suspension. 184

Annexes

Figure 131 - Champs de pression associés à chacune des configurations d'injection réalisées lors de l'étude expérimentale. Trois géométries (G1, G2 et G3) ont été utilisées, et selon Q = 1,5 ml/h ou Q = 6 ml/h. 200
Figure 132 - A/ Présentation du capteur fibre optique relié au connecteur pour la remontée des signaux. B/ Zoom sur le capteur de pression fibre optique. C/ Schéma du principe de la cavité Fabry-Pérot. Les images sont issues de la fiche technique Fiso. 201
Figure 133 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 1,5 ml/h au sein de la géométrie G1. La barre d'échelle correspond à 850 µm. 202
Figure 134 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 1,5 ml/h au sein de la géométrie G2. La barre d'échelle correspond à 850 µm. 202
Figure 135 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 1,5 ml/h au sein de la géométrie G3. La barre d'échelle correspond à 850 µm. 203
Figure 136 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 6 ml/h au sein de la géométrie G1. La barre d'échelle correspond à 850 µm. 203
Figure 137 - Champ de vitesse (en m/s) simulé pour une injection à débit Q = 6 ml/h au sein de la géométrie G3. La barre d'échelle correspond à 850 µm. 204
Figure 138 - Signal d'absorbance sur l'ensemble du spectre du domaine visible lors de l'injection d'une suspension à différentes concentrations de particules de polystyrène carboxylé. 206
Figure 139 - Courbes de calibration pour les cellules de mesure (a) en amont et (b) en aval du milieu poreux. L'absorbance est fonction de la concentration de la suspension injectée et de la longueur d'onde. 206

Table des tableaux

Tableau 1.1 - Importance relative des forces par comparaison à la force de traînée (modifié de Kleinstreuer & Feng, 2013).....5
Tableau 1.2 - Ordre de grandeur de porosité pour quelques milieux poreux.....9
Tableau 1.3 - Expressions des coefficients d'efficacité de collection proposées pour les principaux mécanismes de rétention ; U correspond à la vitesse interstitielle, d_p et d_g le diamètre de la particule et du grain collecteur respectivement, ϱ_p et ϱ_f les masses volumiques de la particule et du fluide respectivement et Pe le nombre de Péclet.....16
Tableau 1.4 - Tableau des principales caractéristiques associées aux expériences d'injectivité sur colonne.21
Tableau 1.5 - Tableau des principales caractéristiques associées aux expériences d'injectivité dans des micromodèles.....24
Tableau 1.6 - Tableau récapitulatif des principales caractéristiques associés au colmatage dans un dispositif microfluidique (mécanismes, propriétés de la suspension, géométrie) (issu de Dressaire & Sauret, 2017)..31
Tableau 1.7 - Récapitulatif de quelques valeurs de concentration en particules utilisées pour des expériences d'injectivité.....43
Tableau 2.8 - Tableaux récapitulatifs des grandeurs caractéristiques associées à chaque suspension de particules de polystyrène carboxylées ; W représente le nombre de grammes de polystyrène par ml, d le diamètre en microns des particules, et ϱ la densité en grammes par ml. F_Vol correspond à la fraction volumique que représente les particules dans un ml de suspension. 68
Tableau 2.9 - Récapitulatif des principales caractéristiques des particules utilisées.....71
Tableau 2.10 - Caractéristiques principales des géométries G1, G2 et G3. dp correspond au diamètre des particules pour le calcul du rapport T/C. Les vitesses moyennes sont calculées à partir du champ de simulation lorsque Q = 1,5 $ml.h^{-1}$.....82
Tableau 2.11 - Récapitulatif des perméabilités mesurées pour chacune des sections. 84
Tableau 2.12 - Récapitulatif des expériences menées au cours de l'étude. 100
Tableau 3.13 - Valeurs du Péclet critique calculées pour les particules utilisées dans cette étude (milieu G1). 111