UNIVERSITE DE STRASBOURG

ECOLE DOCTORALE MATHEMATIQUES SCIENCES DE L'INFORMATION ET DE L'INGENIEUR

RESUME DE LA THESE DE DOCTORAT

Discipline : Science pour l'ingénieur

Spécialité : Génie des Procédés et Energétique

Présentée par

Boutheina Merad

Etude Expérimentale et Modélisation Rhéophysique des Systèmes Dispersions et leur Impact sur l'Endommagement de la Roche Réservoir

Unités de Recherche :

UMR 7357 – Laboratoire des sciences de l'ingénieur,
de l'informatique et de l'imagerie (ICube)

Laboratoire du Génie Physique des Hydrocarbures,
Boumerdes, Algérie.

Directeur de Thèse : Karim Bekkour - Maître de Conférences, HC

Co-Directeur de Thèse : Mourad Gareche - Maitre de Conférences A

Localisation : Strasbourg

Thèse confidentielle : ☒ NON ☐ OUI

Ce travail a été financé par l'Université de Strasbourg, au sein du Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur, de l'Informatique et de l'Imagerie - ICube, par l'Université de Boumerdes, au sein du Laboratoire du Génie Physique des Hydrocarbures, et par le Ministère des Affaires Etrangères Français, dans le cadre de la bourse franco-algérienne Profas B +. La présente thèse est une contribution expérimentale à l'étude rhéologique et en écoulement des émulsions de type Pickering. La préparation de ces systèmes dans un dispositif de circulation continue et l'étude de leurs comportements dans un circuit hydraulique est une des valeurs ajoutées de ce travail, car pour l'instant encore très peu étudié.

Une vinaigrette, une crème hydratante, une perfusion médicale, un joint d'étanchéité ou encore un fluide de forage à émulsion inverse sont tous des émulsions largement exploitées, soit par le grand public, soit en milieu industriel. Ces émulsions sont classiquement stabilisées par des surfactants (molécules tensioactives). Leur préparation, ainsi que leur stabilité sont connues et largement documentées. Malgré les problèmes d'instabilité liés aux émulsions classiques, la part du marché des surfactants reste l'une des plus grandes dans le marché des molécules chimiques, avec une valeur de 42120,3 M€ et une consommation mondiale de 380 kg par seconde[1] ! Au-delà de son impact économique, l'utilisation massive des tensioactifs est néfaste pour l'environnement et pour la santé de l'être humain[2].

Si on arrivait à produire des émulsions plus stables dans le temps (voir irréversibles), en utilisant des produits moins chers, tout en contrôlant la taille des gouttelettes de la phase dispersée, ne serait pas-t-il intéressant ?

En effet, ces dernières années, un intérêt majeur a été porté sur les émulsions stabilisées par des particules solides. Connues sous le nom de « Pickering », ces émulsions sont stabilisées par l'adsorption de particules solides, qui possèdent des propriétés à la fois lipophiles et lipophobes, à l'interface entre l'huile et l'eau.

L'objectif principale de cette thèse est de préparer et optimiser la composition d'une émulsion inverse, stabilisée par des particules d'argile modifiée, qui a le même comportement mécanique que, et qui peut remplacer, un fluide de forage à émulsion inverse.

Les fluides de forage à émulsion inverse (eau dans huile) sont utilisés pendant le forage de la roche réservoir (milieu poreux et perméable). Outre leurs coût et effets néfastes cités ci-dessus, les surfactants, utilisés pour la stabilisation des fluides de forage, endommagent la roche en changeant sa mouillabilité, d'hydrophile à lipophile, ce qui diminue la productivité du réservoir pétrolier, d'où l'intérêt d'utiliser un fluide de forage de type Pickering.

Ajoutons aussi que beaucoup de fluides de forage sont composés à 90% d'hydrocarbures et sont, dans beaucoup de cas, rejetés dans la nature dès la fin de l'opération de forage. C'est pour cela que l'un des buts de ce travail est d'étudier le comportement des émulsions inverses à hautes teneurs d'eau.

[1]Source : site internet « https://www.prnewswire.com/ ».

[2]Zoller, U. (2004) Handbook of Detergents: Part B Environmental Impact. Marcel Dekker, New York, 838.

C'est dans ce contexte que s'inscrit le travail de cette thèse, en préparant de grandes quantités (50 L) d'émulsions inverses, stabilisées par des particules d'argile lipophile, à l'aide de deux diaphragmes montés près de la sortie d'un système de circulation hydraulique. Ce système a été utilisé, non seulement pour la préparation des émulsions, mais également pour étudier leur comportement mécanique, en utilisant un vélocimètre ultrasonore Doppler pulsé et des capteurs de pression. C'est pourquoi, dans un premier chapitre bibliographique (**Chapitre 1**), nous détaillons les principes de mesures rhéologiques et en écoulement utilisées dans ce travail avant de nous attarder sur les processus de modification de ces argiles et de leur utilisation comme stabilisateurs d'émulsions Pickering.

Dans le deuxième chapitre (**Chapitre 2**), nous décrirons, dans une première partie, les techniques des mesures rhéologiques utilisées. Puis, nous présenterons la boucle hydraulique conçue au laboratoire ICube, ainsi que le système d'émulsification, utilisé pour la préparation des fluides étudiés, et les deux chaines de mesure de pression et de vitesse. Enfin, nous terminerons ce chapitre par la présentation des protocoles de préparation des différents systèmes étudiés, notamment les suspensions d'argile modifiée et les émulsions inverses de type Pickering.

Etant donné qu'une suspension d'argile lipophile est utilisée dans la préparation de nos émulsions, nous avons commencé notre étude expérimentale par un chapitre (**Chapitre 3**) détaillant le comportement rhéologique des suspensions d'hectorite modifiée dans du gasoil à différentes concentrations massiques (3 % à 10 %). Les caractères rhéofluidifiant, viscoélastique et à seuil de ces suspensions ont été mis en évidence. Les résultats rhéologiques en écoulement ont été modélisés par les modèles de Herschel-Bulckley et de Carreau-Yasuda, et les résultats de mesures en régime dynamique ont été modélisés à l'aide du modèle mécanique de Burger et de la fonction de distribution de Weibull. De plus, l'existence d'une concentration critique, qui a une influence sur le comportement élastique des suspensions, a été mis en évidence (Fig. 1). Les résultats de ce chapitre ont été publiés dans : *Journal of Applied Clay Science*.

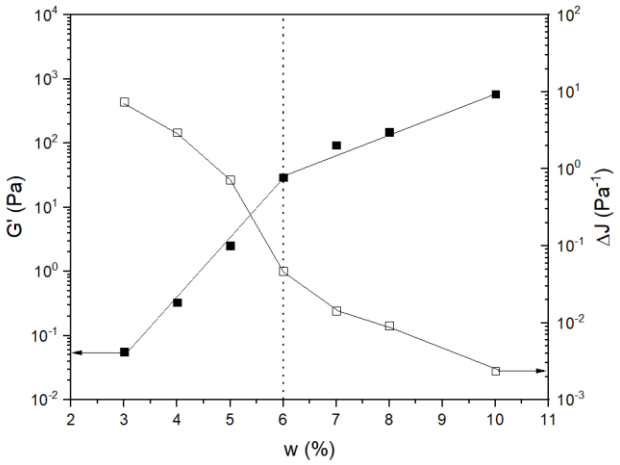

Fig. 1 Le module et l'index de recouvrance élastiques en fonction de la concentration d'hectorite modifiée.

Dans le **Chapitre 4**, des émulsions inverses (eau dans gasoil), stabilisées par 3 wt% de particules d'hectorite modifiée, et à différentes concentrations massiques d'eau (0 % à 50 %) ont été préparées. Ces systèmes ont été émulsionnés et étudiés en termes de leur comportement rhéologique et hydrodynamique en écoulement dans la boucle présentée dans le Chapitre 2. En plus de leur stabilité dans le temps (jusqu'à 12 mois sous des conditions de température et de pression ambiantes), le comportement général de ces systèmes est semblable à celui des fluides de forage pétroliers (rhéofluidifiant, à seuil et à fortes caractéristiques viscoélastiques). En outre, une étude détaillée est présentée sur l'efficacité du système d'émulsification et sur l'évolution des paramètres d'écoulement (profiles de vitesses, contrainte pariétale et le coefficient de frottement). Nous terminons le chapitre sur une comparaison des résultats rhéologiques et d'écoulement, qui a montré une très bonne concordance entre les deux groupes de résultats, dans le régime laminaire (Fig. 2). Un article, décrivant les résultats de ce chapitre est en cours de publication dans la revue : *Journal of Petroleum Science and Engineering*.

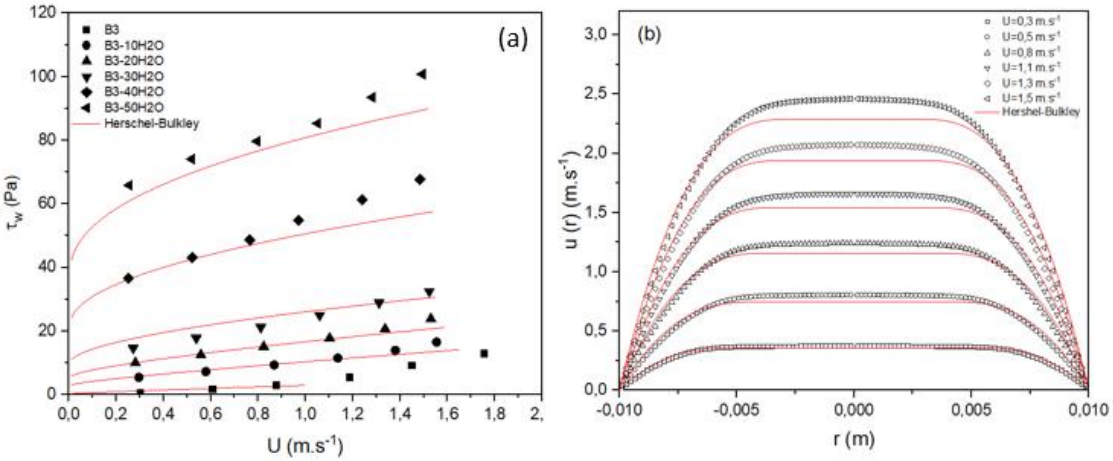

Fig. 2 Comparaison des résultats rhéologiques (ligne continue) et des résultats en écoulement (symboles). (a) : l'évolution de la contrainte pariétale en fonction de la vitesse. (b) : les profils de vitesse pour une émulsion Pickering à 30 wt% d'eau.

La dernière partie de cette thèse (**Chapitre 5**) a été consacrée à l'étude en écoulement des émulsions Pickering concentrées (concentrations massiques en eau de 60 % à 80%), présentant des instabilités au repos. Le but de ce chapitre est de comprendre les mécanismes structuraux assurant la stabilité dynamique des émulsions Pickering chargée. Les mesures rhéologiques n'étant pas possibles à cause des effets importants du glissement aux parois, les mesures de vitesse et de pression sont alors les seuls moyens d'étudier ces systèmes. Des discussions détaillées de chacun des phénomènes d'instabilité rencontrés ont été présentées. Les phénomènes d'instabilité et de stabilité dynamique sont schématisés dans la Fig. 3.

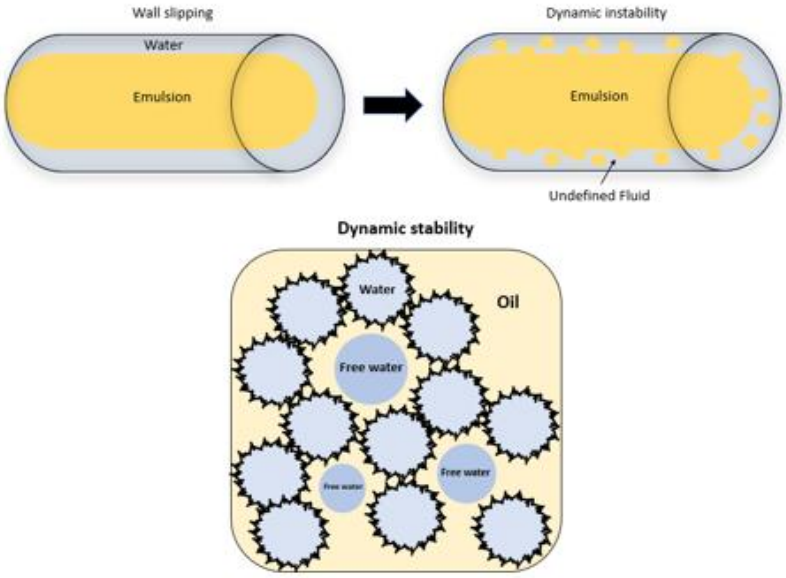

Fig. 3 Représentation graphiques des phénomènes d'instabilité et de stabilité dynamiques.

En annexe, je présente les différents travaux publiés ou en voie de publication :

Annexe 1 : Publications dans des revues de rang A

Papier 1 publié dans le Journal of Applied Clay Science : Site Score : 7.6, Impact Factor : 4.605.

Merad, B., Bekkour, K., Gareche, M., 2019. Rheological and structural characterization of organo-hectorite dispersions: Influence of the organoclay loading. Appl. Clay Sci. 105321. https://doi.org/10.1016/j.clay.2019.105321

Papier 2 en cours de publication dans le Journal of Petroleum Science and Engineering : Site Score : 5.3, Impact Factor : 3.770.

Merad, B., Bekkour.K, François, P., Gareche, M., Lawniczak, F. Rheological and Flow Behavior of Water-in-Oil Pickering Emulsions Stabilized with Organo-Hectorite clay.

Annexe 2 : Communications nationales et internationales

International Congress of Rheology, Brazil, Décembre 2020 : "Evidence of the Presence of a Critical Concentration in an Organo-Hectorite Suspension"

Congrès Français de Mécanique, Brest 26-30/08/2019 : "Thixotropic behavior of an organically modified hectorite suspensions"

Communication in the 8th International Symposium on the Hydrocarbons and Chemistry, university of Boumerdes, Algeria, Avril 2019.

Concours :

Participation à la finale d'Alsace 2019 du concours *Ma Thèse en 180 secondes*.