



Dispersion en milieux poreux insaturés : modélisations et mesures RMN de distributions de vitesse

Valentin Guillon

► To cite this version:

Valentin Guillon. Dispersion en milieux poreux insaturés : modélisations et mesures RMN de distributions de vitesse. Autre [cond-mat.other]. Université d'Avignon, 2012. Français. NNT : 2012AVIG0503 . tel-00853660v2

HAL Id: tel-00853660

<https://theses.hal.science/tel-00853660v2>

Submitted on 10 Sep 2013

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.



ACADÉMIE AIX - MARSEILLE
UNIVERSITÉ D'AVIGNON ET DES PAYS DU
VAUCLUSE



École doctorale Sciences et Agrosciences

THÈSE DE DOCTORAT

Spécialité : Mécanique

présentée pour obtenir le grade de Docteur de l'Université d'Avignon et des Pays du
Vaucluse

par

Valentin GUILLON

**Dispersion en milieux poreux insaturés.
Modélisations et mesures RMN de distributions de
vitesse.**

dirigée par M-C. NÉEL, D. BAUER, et M. FLEURY

MANUSCRIPT PROVISOIRE

M.	Pierre M. ADLER	UPMC, UMR SISYPHE	rapporteur
M.	Dominique SALIN	UPMC, UMR FAST	rapporteur
M ^{me}	Daniela BAUER	IFPEN	encadrante IFPEN
M.	Marc FLEURY	IFPEN	encadrant IFPEN
M ^{me}	Marie-Christine NÉEL	UAPV, UMR EMMAH	directrice de thèse

IFPEN Direction Ingénierie de réservoir
Département Péetrophysique
1 et 4 avenue de Bois Préau
92852 Rueil-Malmaison

École doctorale Sciences et Agrosclences
Maison de la Recherche Campus Sainte-
Marthe, case 3
84 000 Avignon

Table des matières

Introduction Générale	21
1 Contexte de l'étude	21
2 Objectifs de la thèse et programme de travail	25
 I Outils et État de l'art	 27
 1 Dispersion en milieu poreux saturé et insaturé	 31
1.1 Dispersion classique	32
1.2 Dispersion anormale	37
1.3 Dispersion pré-asymptotique : problématique RMN	43
1.4 Conclusion	44
 2 Rappels de RMN	 47
2.1 Évolution de l'aimantation et pulses radio-fréquence	48
2.2 Phénomènes de relaxation	50
2.3 Codage spatial de l'aimantation	52
2.4 Conclusion	57
 3 Méthodes expérimentales	 59
3.1 Mesure de la porosité et de la saturation	60
3.2 Séquences RMN de vélocimétrie	62
3.3 Tranche utilisée	64
3.4 Traitement du signal RMN	64
3.5 Montages expérimentaux	65
3.6 Conclusion	73
 4 Modèles de réseau de pores	 75
4.1 Méthodes de transport dans les réseaux de pores	76
4.2 Comparaison entre réseau de pore et RMN	82
4.3 Conclusion	84

II	Résultats expérimentaux	85
5	Validation des mesures et caractérisation des milieux utilisés	89
5.1	Mesure du coefficient de diffusion moléculaire : calibration des gradients de champ magnétique et validation des séquences de vélocimétrie	90
5.2	Validation de la mesure de porosité par RMN	93
5.3	Étude d'un écoulement de Poiseuille par RMN	95
5.4	Répétitivité et erreurs sur les mesures RMN	98
5.5	Validation des expériences de traceur par RMN	103
5.6	Caractérisation des empilements utilisés	108
5.7	Conclusion	110
6	Résultats sur des milieux saturés	113
6.1	Empilements de grains de SiC de différentes tailles	114
6.2	Mesures sur des empilements dans une grande colonne	119
6.3	Expériences de traceur	131
6.4	Conclusion	132
7	Résultats sur des milieux insaturés	135
7.1	Saturation dans l'échantillon	136
7.2	Dispersion longitudinale et saturation	138
7.3	Dispersion transverse et saturation	143
7.4	Expériences de traceur	147
7.5	Dispersion anormale et vols de Lévy	149
7.6	Conclusion	154
III	Marche aléatoire dans un réseau de pores	157
8	Algorithme de marche aléatoire	161
8.1	Déplacement des marcheurs dans le réseau	162
8.2	Recirculation des marcheurs dans le réseau	167
8.3	Calculs des propagateurs de déplacement	168
8.4	Conclusion	168
9	Vérification de l'algorithme	171
9.1	Déplacement des marcheurs dans différentes configurations	171
9.2	Répartitions lors du passage d'un pore	173
9.3	Dispersion dans des réseaux stochastiques	174
9.4	Conclusion	179

10 Résultats de la marche aléatoire dans un réseau de pores extrait d'un empilement de sable de Fontainebleau	181
10.1 Description du réseau de pores	182
10.2 Répétabilité et influence de l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoires	185
10.3 Paramètres de la marche aléatoire	187
10.4 Influence de la répartition initiale des marcheurs	189
10.5 Vérification des hypothèses sur les déplacements dans les canaux	190
10.6 Propagateurs et moments caractéristiques en fonction du temps	190
10.7 Évolution des propagateurs de même temps d'observation t_{Δ} en fonction du temps initial t_1	192
10.8 Discussion sur la stagnation anormale des marcheurs	193
10.9 Comparaison des résultats des simulations avec les résultats expérimentaux et perspectives	196
10.10 Conclusion	197
Conclusion Générale	201
1 Conclusion Générale	201
2 Perspectives	204
Bibliographie	205
Annexes	215
A Spécification technique des huiles fluorinert	215
B Réglages des paramètres de la sélection de tranche	217
B.1 Amplitude du pulse radio-fréquence de sélection de tranche	217
B.2 Gradient de sélection	218
B.3 Gradient de rephasage	218
C Transformée de Fourier du signal RMN	221
D Présentation des logiciels de traitement des données RMN	223
D.1 Programme d'Analyse des Echos de Diffusion (AED)	223
D.2 Programme de traitement des mesures de propagateur (PROPA)	223
E Méthode d'extraction du réseau de pore à partir d'images micro-scanner	227
E.1 Acquisition de l'image micro-scanner du milieu poreux	227
E.2 Segmentation de l'image	228
E.3 Extraction du squelette de l'espace poreux	228
E.4 Partitionnement de l'espace poreux	229

E.5	Extraction des paramètres géométriques du réseau de pores	230
E.6	Périodicité transverse du réseau de pore	234
E.7	Conclusion	234
F	Simulation des écoulements dans le réseau de pore	235
F.1	Simulation des écoulements monophasiques	235
F.2	Simulation des écoulements diphasiques	236
F.3	Conclusion	237
G	Générateur de nombres pseudo-aléatoires et tirage de variable aléatoire suivant des lois non uniformes	239
G.1	Générateur de nombres pseudo-aléatoires selon une loi uniforme	239
G.2	Tirage d'une variable aléatoire suivant une loi Normale centrée caractéristique de la diffusion moléculaire	240
G.3	Tirage d'une variable aléatoire suivant une loi α -stable	241

Table des figures

1	Courbes de percée expérimentales et comparaison avec les résultats de l'équation d'advection dispersion et de simulations par marche aléatoire de type Continuous Time Random Walk (CTRW) (Berkowitz <i>et al.</i> , 2006).	22
2	Courbes de percée pour un traceur saumure par cycle injection-pompage en puits unique dans un réservoir homogène à grande échelle et très hétérogène à petite échelle (Gouze <i>et al.</i> , 2008).	22
3	Imagerie micro-scanner et extraction du réseau de pores (Youssef <i>et al.</i> , 2007).	24
4	Propagateurs obtenus dans différents empilements de billes de verre (Lebon <i>et al.</i> , 1997).	24
5	Comparaison des propagateurs RMN et PNM pour un calcaire saturé (Zhao <i>et al.</i> , 2010).	25
1.1	Évolution du coefficient de dispersion longitudinal en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement (Sahimi, 1993).	33
1.2	Évolution d'un nuage de traceur dans un écoulement de Poiseuille.	36
1.3	Domaines de dispersion et relation avec $\sigma^2 \propto t^a$ (Metzler et Klafter, 2000).	38
1.4	Variation du coefficient de dispersion D en fonction du Peclet (Charlaix <i>et al.</i> , 1988). (a) milieu 1. (b) milieu 2.	39
1.5	Courbes de Percées expérimentales sur une colonne de sable et comparaison avec ADE et CTRW (Cortis et Berkowitz, 2004)	40
1.6	Évolution du coefficient de dispersion le long d'un échantillon de carbonate (Fourar <i>et al.</i> , 2005)	41
1.7	Profil de concentration expérimental (points) et comparaison avec des profil obtenus par simulation numérique (lignes continues) (Benson <i>et al.</i> , 2000)	42
1.8	Courbes de percées pour un traceur Saumure par cycle injection-pompage en puits unique (Gouze <i>et al.</i> , 2008)	42
2.1	Les pulses radiofréquence permettent de faire varier l'orientation de l'aimantation macroscopique dans le référentiel du laboratoire.	48
2.2	Génération d'un pulse radio-fréquence court d'enveloppe carrée non contrôlée.	49
2.3	Exemple d'enveloppe de pulse long.	50
2.4	Retour spontané de l'aimantation à l'équilibre.	51

2.5	Séquence d'écho de spin à gradients de champs pulsés (PFGSE)	53
2.6	Passage de la séquence simple à la séquence avec stockage en $\vec{z}$	54
2.7	Séquence de sélection de tranche lors d'un pulse radio-fréquence $\frac{\pi}{2}$	56
2.8	Séquence RMN de mesure du profil.	56
3.1	Mesure de la porosité d'un empilement de grains.	61
3.2	Séquence FID avec pulse long sélectif	61
3.3	Séquence APFG-SSE de mesure de déplacements sans sélection de tranche	62
3.4	Séquence APFG-SSE de mesure de déplacements avec sélection de tranche	63
3.5	Profil d'une sélection de tranche	64
3.6	Ajustement du signal RMN pour le calcul des moments	66
3.7	Montage expérimental et cellule d'écoulement pour l'appareil 2 MHz	67
3.8	Montage expérimental et cellule d'écoulement pour l'imageur 20 MHz	68
3.9	Photographie de SiC 150 μm par microscopie électronique à balayage. Photographie de P. Gueroult <i>IFPEN</i>	68
3.10	Schématisation du montage expérimental d'injection d'un bouchon de deutérium (D_2O) dans le milieu poreux.	73
3.11	Résultats bruts de l'expérience de traceur dans un empilement de grains de SiC pour un débit de 100 ml.h^{-1}	73
3.12	Variation de la concentration de Deutérium (en %) dans la tranche au cours de l'expérience	74
4.1	Exemple de structure de réseau stochastique et déterministe.	76
4.2	Mélange parfait dans les nœuds, schématisation de Park et Lee (1999).	78
4.3	Configurations possibles de répartition par ligne de courant dans les nœuds. Bruderer et Bernabe (2001).	79
4.4	Le mélange-diffusion schématisé par Park <i>et al.</i> (2001b).	80
4.5	Courbes de percée analytiques (traits continus) et simulée (symboles) par Time Domain Random Walk (Bodin <i>et al.</i> , 2003).	81
4.6	Comparaison propagateur RMN (pointillés) et propagateur PNM (trait plein) par Lebon <i>et al.</i> (1997).	83
4.7	Comparaison propagateurs RMN et numériques pour un calcaire des dolomites (Zhao <i>et al.</i> , 2010).	84
5.1	Repère du laboratoire R ($(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$) avec $\vec{z}$ orienté selon $\vec{B}_0$	91
5.2	Mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau dans les trois directions de l'espace	92
5.3	Comparaison entre les deux types de mesure RMN de porosité	94
5.4	Schéma des montages utilisés pour tester l'influence du système poreux sur la mesure de la porosité	94

5.5	Le propagateur analytique d'un écoulement laminaire est une distribution uniforme ayant pour bornes $v = 0$ et $v = v_{max}$, et pour vitesse moyenne $v_{max}/2$.	96
5.6	Propagateurs longitudinaux pour des débits de 50, 300 et 500 $ml.h^{-1}$.	97
5.7	Mesure de la dispersion transverse pour l'écoulement laminaire dans la cellule de 7.40 mm.	98
5.8	Répétitivité des signaux RMN et erreurs sur les propagateurs pour l'appareil RMN 2MHz	99
5.9	Répétitivité des signaux RMN	100
5.10	Vitesse moyenne mesurée par RMN $\langle v \rangle$ normalisée par la vitesse moyenne théorique v_0 en fonction du temps	101
5.11	Vitesse mesurée en fonction de la vitesse théorique, calage par une droite	102
5.12	Concentration de traceur à la position de mesure en fonction du volume injecté pour une injection de traceur par le bas de la colonne	103
5.13	Concentration de traceur à la position de mesure en fonction du volume injecté pour une injection de traceur par le haut de la colonne	104
5.14	Résultats de l'expérience de traceur dans une saumure 150 g/l pour un débit de 100 $ml.h^{-1}$.	105
5.15	Montage amélioré d'injection de traceur en milieu poreux.	105
5.16	Changement de l'orientation d'une jonction de tuyaux en T dans le montage d'injection du traceur.	105
5.17	Résultats de l'expérience de traceur dans l'empilement de grains de SiC de 30 μm pour un débit de 100 $ml.h^{-1}$ après ajustement des densités et modification du montage.	106
5.18	Courbe de percées et calage par les modèles de Brenner (1962), Brigham (1974)	107
5.19	Temps de relaxation transverse T_2 et effet de la saturation.	108
5.20	Mesure de la perméabilité de l'empilement de grains : ($\diamond$) points expérimentaux. (-) calage par une équation linéaire de formule $Q = a\Delta P$. La perméabilité obtenue est 296.4 $mDarcy$.	109
5.21	Profil de porosité corrigé	110
5.22	Distribution des temps de relaxation transverse T_2 dans l'empilement de grains de sable de Fontainebleau saturé en eau	111
5.23	Profil de porosité corrigé d'une partie de l'empilement de grains de sable de Fontainebleau (de 0 à 16 cm de l'entrée de la colonne).	111
6.1	Évolution du propagateur pour une taille de grain de 110 μm et une vitesse moyenne de 520 $\mu m.s^{-1}$ en fonction du temps d'observation t_Δ (en ms).	114
6.2	Propagateurs dans chaque milieu exprimés en fonction du déplacement non normalisé avec $t_\Delta = 500 ms$ et $Q = 500 ml.h^{-1}$.	115
6.3	Propagateurs exprimés en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains (i.e la taille de pores), pour chaque milieu, avec un temps d'observation de 500 ms.	116

6.4	Évolution du propagateur pour une taille de grain de $800 \mu m$ et un débit de $500 ml.h^{-1}$ en fonction du temps d'observation t_{Δ}	116
6.5	Comparaison entre les propagateurs des milieux $8 \mu m$ et $110 \mu m$ en fonction du temps en échelle semi-logarithmique	118
6.6	Propagateurs pour le milieu $110 \mu m$, un temps d'observation de $50 ms$, un débit de $500 ml.h^{-1}$ et deux fluides : de l'eau distillée et un mélange eau-glycérol (36 – 64%)	119
6.7	Propagateurs en fonction du temps et du débit	121
6.8	Évolution du moment d'ordre 2 en fonction du temps	121
6.9	Évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains	122
6.10	Propagateurs longitudinaux pour un temps d'observation de $50 ms$ et différents débits allant de $0 ml.h^{-1}$ à $2000 ml.h^{-1}$	124
6.11	Évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains : empilement de grains de SiC de $30 \mu m$ saturé en eau.	125
6.12	Évolution de l'exposant η en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement.	125
6.13	Évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction du déplacement (en μm) pour trois milieux différents	126
6.14	Évolution de σ^2 en fonction du temps : mesures sur un empilement de grains de SiC de $30 \mu m$ saturé en eau.	126
6.15	Évolution de σ^2 en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains : mesures sur un empilement de grains de SiC de $30 \mu m$ saturé en eau.	127
6.16	Évolution de l'exposant a en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement.	127
6.17	Coefficients de dispersion effectifs normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet pour les expériences en monophasique	128
6.18	Coefficients de dispersion effectifs normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet, Sahimi (1993).	129
6.19	Propagateurs transverse pour un t_{Δ} de $50 ms$ et deux débits différents $0 ml.h^{-1}$ et $200 ml.h^{-1}$	130
6.20	Évolution du moment d'ordre 2 σ_T^2 transverse en fonction du temps pour différents débits.	130
6.21	Relation entre le coefficient de dispersion effectif longitudinal D_L et transverse D_T et le nombre de Peclet	131
6.22	Courbes de percées locales en milieu saturé pour deux débits d'écoulement différents $50 ml.h^{-1}$ et $100 ml.h^{-1}$	132
6.23	Courbe de concentration en fonction du volume de fluide injecté pour deux débits $50 ml.h^{-1}$ et $100 ml.h^{-1}$ et comparaison avec des gaussiennes.	133
7.1	Profil de saturation le long de la colonne pour une co-injection de $50 ml.h^{-1}$ d'eau et $100 ml.h^{-1}$ d'huile fluorinert $FC - 43$	137
7.2	Répétabilité des mesures de propagateurs en milieu insaturé	137

7.3	Propagateurs longitudinaux mesurés pour une saturation de 69% et une vitesse interstitielle de 0.010 cm.s^{-1}	139
7.4	Propagateurs longitudinaux mesurés pour une saturation de 42% et une vitesse interstitielle de 0.017 cm.s^{-1} et des temps d'observation de 100 ms, 200 ms et 300 ms. .	139
7.5	Propagateurs longitudinaux mesurés pour une saturation de 42% et une vitesse interstitielle de 0.017 cm.s^{-1} et des temps d'observation de 100 ms, 400 ms et 500 ms. .	140
7.6	Évolution de $\sigma/\langle\xi\rangle$ longitudinal en fonction du déplacement moyen normalisé par la taille de grains pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type $\langle\xi\rangle^\eta$	141
7.7	Évolution de σ^2 longitudinal en fonction du temps pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type t_Δ^a	142
7.8	Coefficients de dispersion effectifs longitudinaux mesurés en écoulements insaturés normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet. .	143
7.9	Propagateurs transverses pour des saturations de 42% et 46% et des vitesses de, respectivement, $3 \cdot 10^{-3} \text{ cm.s}^{-1}$ et $3.3 \cdot 10^{-3} \text{ cm.s}^{-1}$	144
7.10	Évolution de $\sigma/\langle\xi\rangle$ transverse en fonction du déplacement moyen normalisé par la taille de grains pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type $\langle\xi\rangle^\eta$	145
7.11	Évolution de σ^2 transverse en fonction du temps pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type t_Δ^a	145
7.12	Coefficients de dispersion effectifs transverses mesurés en écoulements insaturés normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet. .	146
7.13	Comparaison des coefficients de dispersion effectifs longitudinaux et transverses mesurés en écoulements insaturés normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet.	147
7.14	Influence de la saturation sur la dispersion d'un traceur passif dans l'empilement de grains de SiC	148
7.15	Effet de la distance à l'entrée de la zone de mesure sur la dispersion d'un traceur passif	149
7.16	Exemples de densité de probabilité de lois stables	150
7.17	Logarithme du module du signal RMN dans le cas de la dispersion transverse en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour une écoulement de débit 50 ml.h^{-1} et de saturation 42 %. .	151
7.18	Logarithme du module du signal RMN en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour un milieu saturé et un écoulement nul.	152
7.19	Logarithme du module du signal RMN en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour une écoulement saturé de débit 200 ml.h^{-1}	152
7.20	Logarithme du module du signal RMN en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour une écoulement de débit 50 ml.h^{-1} et de saturation 42 %.	153
7.21	Propagateurs transverses et longitudinaux pour 42 % de saturation et $t_\Delta = 300 \text{ ms}$ calés par des lois stables	154

8.1	Déplacement des marcheurs de deux manières différentes durant un pas de temps. . .	162
8.2	Nouvelle position $M(x, y, z)$ d'un marcheur dans le canal connectant les nœuds $A(x_A, y_A, z_A)$ et $B(x_B, y_B, z_B)$ est décrite par l'équation vectorielle 8.4.	163
8.3	Schéma équivalent à la structure du PNM servant à la marche aléatoire.	164
8.4	Structure du PNM.	164
8.5	Adaptation de la vitesse du fluide dans les canaux.	165
9.1	Réseaux 2D de validation des déplacements des marcheurs.	172
9.2	Réseau 2D à 11 pores, trois pores inférieur d'entrée et trois pores supérieurs de sortie	172
9.3	Réseau de test des modes de répartition des marcheurs lors du passage des pores par saut advectif, ou saut diffusif.	173
9.4	Structure du réseau carré stochastique 0° (flux horizontal).	174
9.5	Propagateurs numériques pour des simulations respectivement sans diffusion (9.5a) et sans advection (9.5b) et un temps d'observation de 400 ms.	175
9.6	Propagateurs numériques pour des simulations avec diffusion et advection en fonction du temps d'observation	176
9.7	Évolution du moment d'ordre 2 (σ^2) en fonction du temps.	177
9.8	Structure du réseau carré stochastique 45° (flux horizontal).	178
9.9	Propagateurs numériques pour des simulations sans advection	178
9.10	Propagateurs numériques pour des simulations avec advection et diffusion	179
9.11	Évolution du moment d'ordre 2 σ^2 en fonction du temps.	180
10.1	réseau de pores d'un empilement de sable de Fontainebleau en 3D (taille 250^3). . . .	183
10.2	Distribution des diamètres des pores et des canaux du réseau extrait de l'empilement de sable de Fontainebleau	183
10.3	Caractéristiques des longueurs des hydrauliques et géométriques des canaux du réseau de pores de l'empilement de sable de Fontainebleau	184
10.4	Distribution des vitesses dans le réseau de pores saturé extrait d'un empilement de sable de Fontainebleau.	184
10.5	Des simulations de marche aléatoire ont été effectuée dans les trois directions du réseau, afin de vérifier l'isotropie du réseau de pore. Les simulations montrent des résultats identiques quelle que soit la direction considérée. Le réseau est donc isotrope.	185
10.6	Le champ de pression dans le réseau lors d'un écoulement saturé est homogène transversalement.	185
10.7	Répétabilité des simulations pour des répartitions initiales identiques ou différentes du générateur de nombre pseudo-aléatoire	186
10.8	Propagateurs à un temps donné ($t_\Delta = 200$ ms) et une vitesse interstitielle de $404 \mu m/s$ pour les différents nombres de marcheurs	187
10.9	Propagateurs pour un même temps d'observation, des pas de temps variables et des répartitions initiales identiques ou différentes	188

10.10	Évolution de la vitesse instantanée du nuage de marcheurs au cours du temps	189
10.11	Propagateurs en fonction du temps d'observation t	191
10.12	Évolution du moment d'ordre 2 en fonction du temps.	192
10.13	Propagateurs pour un même temps d'observation t_{Δ} et un temps initial variable.	193
10.14	Définition des angles liés au canal k défini par les nœuds m et M	194
10.15	Répartition des marcheurs stagnants (dans un seul canal) en fonction de l'inclinaison de leurs canaux	195
10.16	Propagateurs et influence du coefficient de diffusion effective dans les canaux trans- verses.	195
10.17	Comparaison des propagateurs numériques et expérimentaux pour des conditions d'écoulement similaires	197
10.18	Comparaison de l'évolution du moment d'ordre 2 en fonction du temps pour une simulation numérique et une expérience RMN	197
B.1	Réglage de l'amplitude du pulse radio-fréquence de sélection de tranche.	218
B.2	Réglage de l'amplitude du gradient de rephasage.	219
C.1	Action du zero-filling sur le propagateur d'un signal acquis partiellement	222
D.1	Interface graphique du programme d'Analyse des Echos de Diffusion.	224
D.2	Interface graphique du programme de traitement des mesures des propagateurs.	225
E.1	Image micro-scanner et réseau de pores extrait d'un empilement de grains de carbure de silicium.	228
E.2	Histogramme des niveaux de gris d'un grès de Fontainebleau et seuil utilisé pour la segmentation de l'image 3D	229
E.3	Les trois premières étapes du partitionnement du squelette.	230
E.4	Volume d'un seuil de pore : aire A_{seuil} , périmètre P_{seuil} et rayon minimal $r_{min_{seuil}}$	231
E.5	Représentation schématique du canal connectant deux pores (Bauer <i>et al.</i> , 2011).	232
E.6	Variation de la longueur hydraulique et de la longueur géométrique le long de la série de cylindres représentant le canal.	233

Liste des tableaux

3.1	Porosité des empilements Fleury et Azancheev (2006)	68
5.1	Valeurs de gradients fournis par la constructeur	91
5.2	Récapitulatif de la calibration des gradients	92
5.3	Rapport de la longueur caractéristique d'advection et de la longueur caractéristique de diffusion en fonction du débit pour un temps d'observation de 50 <i>ms</i>	97
6.1	Évolution des critères d'établissement du régime asymptotique en fonction du temps d'observation pour les milieux 8 μm et 110 μm et un débit de 500 $ml.h^{-1}$	118
6.2	Valeurs des exposants a et η en fonction du débit.	122
6.3	Tableau récapitulatif des valeurs de $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$ en fonction du temps et du débit	123
6.4	Tableau récapitulatif des valeurs de $\frac{L_D}{dg}$ en fonction du temps	123
10.1	Nombre de nœuds traversé par les marcheurs stagnants.	194

Liste des symboles

Pe	Nombre de Peclet
Re	Nombre de Reynolds
D	Coefficient de dispersion
D_m	Coefficient de diffusion moléculaire
$D_{m_{eff}}$	Coefficient de diffusion moléculaire effectif
D_{eff}	Coefficient de dispersion effective
v_0	Vitesse de Darcy, c-a-d vitesse interstitielle
$\langle v \rangle$	Vitesse moyenne mesurée expérimentalement et équivalente à la vitesse de Darcy
v_{moy}	Vitesse moyenne dans un tube ou dans canal du réseau de pore
Q	Débit de fluide
ξ	Déplacement des molécules d'eau ou des marcheurs
ξ_0	Déplacement moyen des molécules d'eau ou des marcheurs calculé à partir de v_0
$\langle \xi \rangle$	Déplacement moyen des molécules d'eau ou des marcheurs
σ^2	Moment d'ordre deux des déplacements
t_Δ	Temps d'observation $t_\Delta = t_2 - t_1$
d_g	Taille des grains d'un empilement de grains, équivalente dans ces milieux à la taille de pore
ϕ	Porosité d'un milieu poreux
S	Section d'un milieu poreux
L_D	Longueur caractéristique de diffusion moléculaire $L_D = \sqrt{2D_mt}$

Liste des acronymes

<i>ANR</i>	Agence Nationale de la Recherche
<i>TRAM</i>	Transport anormal en milieu poreux
<i>CEA</i>	Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
<i>ADE</i>	Équation d'Advection-Diffusion
<i>MIM</i>	Mobile-Immobile Model
<i>RMN</i>	Résonance Magnétique Nucléaire
<i>PNM</i>	Pore Network Model, c-a-d Modèle de type réseau de pores
<i>PFGE</i>	Séquence RMN : Pulsed Field Gradient Spin Echo
<i>APFG – SSE</i>	Séquence RMN : Alternating Pulsed Field Gradients - Stimulated Spin Echo
<i>FID</i>	Séquence RMN : Free Induction Decay
<i>DFT</i>	Transformée de Fourier directe
<i>SiC</i>	Carbure de Silicium

Introduction Générale

1 Contexte de l'étude

La compréhension et la prévision des écoulements et du transport de matière en milieux poreux saturé ou insaturé, est un domaine de recherche extrêmement vaste et essentiel, ayant de nombreux débouchés au niveau technique dans les domaines du pétrole, du gaz mais aussi de l'eau et de l'environnement. Ces écoulements et transports ont été étudiés de manière approfondie par de nombreux chercheurs mais font toujours l'objet d'un effort de recherche important.

La théorie classique du transport de traceur en milieu poreux est basée sur l'équation d'advection-dispersion (ADE) :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -v \frac{\partial c}{\partial x} + D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1)$$

où c est la concentration locale en traceur à la position x au temps t , v la vitesse locale du fluide, et D le coefficient de dispersion.

Le transport vérifie alors la loi de Fick, les courbes de percée et profils de concentration sont gaussiens. La dispersion est gaussienne et dite normale.

Toutefois, et ce quel que soit le type d'écoulement considéré, il a été mis en évidence des phénomènes de dispersion anormale, *c-a-d* de dispersion non gaussienne (Koch et Brady, 1985, Charlaix *et al.*, 1988, Berkowitz et Scher, 1997, Bruderer et Bernabe, 2001, Bekri et Adler, 2002, Bacri *et al.*, 1990). Cortis et Berkowitz (2004) montrent l'existence de la dispersion anormale à l'échelle de l'échantillon de milieu poreux homogène et insaturé (Figure 1). Ils comparent courbes de percée et simulations par l'équation d'advection-dispersion et par marche aléatoire de type Continuous Time Random Walk (CTRW), et montrent ainsi que l'équation d'advection-dispersion ne décrit pas de façon satisfaisante la réalité expérimentale. Les courbes de percée présentent une persistance du traceur dans le milieu, ce qui se traduit par des sorties tardives de traceur, c'est ce qu'on appelle l'effet de mémoire du milieu poreux, certaines molécules de traceur sont retardées dans des zones de faible écoulement et sont progressivement remobilisées par la diffusion moléculaire. D'autres molécules de traceur subissent un transport accéléré ; elles empruntent des chemins d'écoulements préférentiels et sortent du milieu plus rapidement que prévu.

La dispersion anormale a aussi été mise en évidence *in situ* en milieu insaturé par Gouze *et al.* (2008) (Figure 2). Gouze *et al.* (2008) ont mesuré des courbes de percée dans un aquifère insaturé

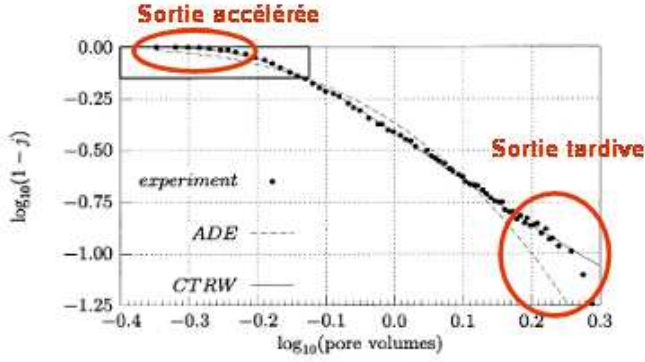


FIGURE 1 – Courbes de percée expérimentales et comparaison avec les résultats de l'équation d'advection dispersion et de simulations par marche aléatoire de type Continuous Time Random Walk (CTRW) (Berkowitz *et al.*, 2006). Mesures sur un empilement de sable homogène insaturé (Saturation de 27 %). j : la concentration moyenne. *Pore volume* : le volume de fluide sorti du milieu poreux (en unité de volume de pore).

(eau-air), fortement hétérogène à petite échelle mais homogène à grande échelle. Les auteurs observent des courbes de percée asymétriques présentant des sorties retardées significatives. Les sorties retardées sont expliquées en évoquant la capture du traceur au niveau des films, dans lesquels la vitesse d'écoulement serait quasi-nulle, les molécules de traceur ne pouvant s'en échapper que par mouvement diffusif. La distribution des phases en milieu poreux insaturé influence la dispersion des molécules de traceur et peut engendrer des dispersions anormales.

Les phénomènes de dispersion anormale ont aussi été mis en évidence pour des milieux saturés hétérogènes, à l'échelle de l'échantillon (Coats et Smith, 1964, Gist *et al.*, 1990) comme à l'échelle du réservoir (Benson *et al.*, 2000).

La dispersion anormale intervient à toutes les échelles, dans des milieux saturés fortement hétérogènes et dans des milieux insaturés. Elle est dépendante des hétérogénéités de structure du milieu poreux et des hétérogénéités de distribution de phase. La relation entre ces hétérogénéités et la dispersion anormale de traceur est un sujet peu renseigné mais essentiel à étudier pour mieux comprendre et prévoir la dispersion du traceur en milieu hétérogène saturé ou en milieu insaturé.

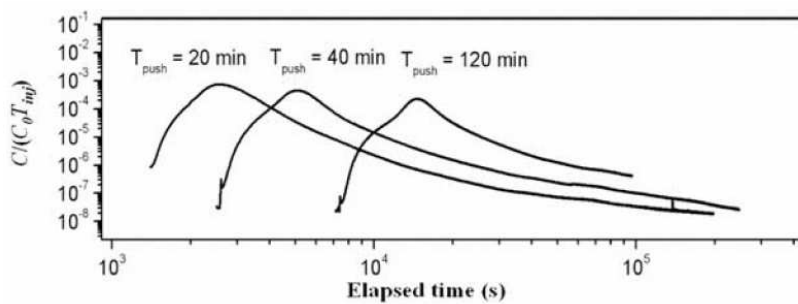


FIGURE 2 – Courbes de percée pour un traceur de type saumure par cycle injection-pompage en puits unique dans un réservoir homogène à grande échelle et très hétérogène à petite échelle (Gouze *et al.*, 2008). T_{push} correspondant au temps d'injection de fluide non traçant après l'injection du traceur. On mesure l'évolution de la concentration en traceur dans le fluide sortant en fonction de la durée du pompage et l'on observe des courbes de percée non gaussiennes.

La plupart des expériences indiquent que les trainées observées sur les courbes de percée pourraient être de type "loi de puissance" et de nombreuses théories ont été développées pour tenter de

rendre compte de cette dispersion anormale. Les plus connues de ces théories sont certainement les modèles stochastiques basés sur les marches aléatoires de type Continuous Time Random Walk (Berkowitz, 2002, Berkowitz et Scher, 2001, Berkowitz *et al.*, 2006, Berkowitz et Scher, 2009, Bijeljic et Blunt, 2006, Bijeljic *et al.*, 2004, Margolin et Berkowitz, 2004) et les théories des équations aux dérivées fractionnaires (Benson *et al.*, 2000, Lenormand, 1992, Néel *et al.*, 2008, 2009, Gorenflo et Mainardi, 2000). Il convient d'être prudent sur ce point, car le trait le plus marquant de ces modèles est la longue et épaisse trainée des courbes de percée, aux grands temps. Or on n'est jamais certain d'avoir des mesures précises aux grands temps. Ces théories permettent d'expliquer les courbes de percée ou profils de concentration anormaux de manière plus satisfaisante que l'équation d'advection-dispersion (Figure 1). Cependant, il y a peu d'ancrage des paramètres de ces théories à des mesures expérimentales.

Les marches aléatoires simulant le déplacement des molécules de traceur en milieu poreux sont effectuées dans un espace libre (Berkowitz *et al.*, 2006, Banton *et al.*, 1997a,b) (les molécules de traceur pouvant se déplacer dans toutes les directions sans rencontrer d'obstacles), mais aussi dans des réseaux de pores représentant la géométrie de milieux poreux (Sorbie et Clifford, 1991, Lebon *et al.*, 1997), voir directement dans l'image du milieu poreux (Bekri et Adler, 2002, Blunt *et al.*, 2012). L'étude de la dispersion dans l'espace poral réel (directement dans l'image du milieu poreux obtenue par micro-scanner) est lourde et génère de grands temps de calcul, notamment dans le cas d'écoulements diphasiques. L'approche par réseaux de pores simplifiant la géométrie du milieu poreux permet une résolution rapide des marches aléatoires et de la répartition des phases en écoulements diphasiques. Les réseaux de pores ou pore network, sont synthétiques (Sahimi *et al.*, 1986a,b) ou extraits d'échantillons de milieu poreux (Picard et Frey, 2007). Dans ce contexte, une approche développée à IFPEN utilise des réseaux de pores extraits d'échantillons de milieu poreux par des méthodes d'imagerie micro-scanner ($\mu-CT$) et de traitement d'image (Youssef *et al.*, 2007) (Figure 3). La simulation de marches aléatoires dans ces réseaux permet de retrouver certains aspects expérimentaux de la dispersion des molécules de traceur et en particulier la distribution des vitesses dans le milieu poreux (Picard et Frey, 2007, Berkowitz *et al.*, 2006, Rhodes et Blunt, 2006, Sorbie et Clifford, 1991).

Si les marches aléatoires dans des réseaux de pores sont couramment employées pour étudier la dispersion de manière numérique, les méthodes expérimentales de résonance magnétique nucléaire (RMN) sont plus rarement utilisées. Celles-ci permettent pourtant d'obtenir une information expérimentale unique en son genre, comme la distribution des déplacements des molécules de traceur dans le milieu poreux (aussi appelée propagateur des déplacements). Quelques auteurs ont utilisé la RMN et la mesure du propagateur pour étudier l'influence sur la dispersion à petite échelle de nombreux paramètres physiques (Lebon *et al.*, 1997, 1996, Bruderer-Weng *et al.*, 2004, Manz *et al.*, 1999).

Lebon *et al.* (1997) étudient les propagateurs pour différents empilements de billes de verres. Les propagateurs sont obtenus pour trois empilements de billes ; un milieu composé de billes de 800 μm , un autre de billes de 145 μm et enfin un dernier composé de billes de 81 μm . Ces propagateurs sont présentés Figure 4. Les auteurs ont effectué des mesures à différents temps d'observation t_{Δ} pour un débit à peu près constant pour chaque milieu. Les trois cas étudiés montrent des propagateurs diffé-

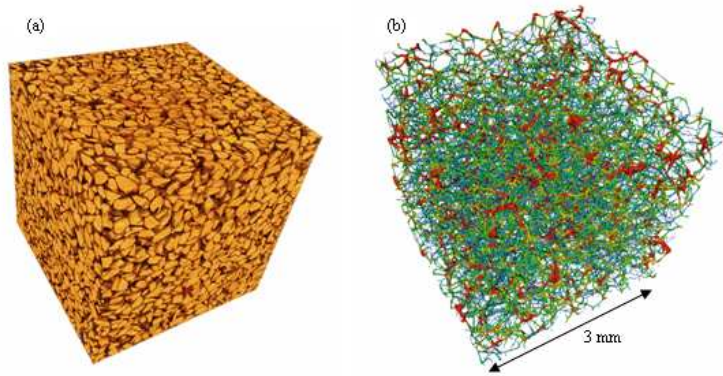


FIGURE 3 – Imagerie micro-scanner et extraction du réseau de pores (Youssef *et al.*, 2007). (a) Image 3D d'un empilement de grains de SiC de taille $150 \mu m$ obtenue par $\mu - CT$. (b) réseau de pores correspondant.

rents, symptomatiques de régimes de dispersion différents. Les propagateurs observés par Lebon *et al.* (1997) pour des déplacements inférieurs à la taille de pore (Figure 4.a) sont liés à des mouvements de type advectifs. Tandis que les propagateurs observés pour des déplacements supérieurs à la taille de pore (Figure 4.c) sont liés à des déplacements de types diffusifs. Les propagateurs observés pour des conditions intermédiaires (Figure 4.b) montrent la transition entre les deux régimes. L'explication détaillée de ces résultats peut être trouvée dans le rapport bibliographique réalisé au début de la thèse (Guillon *et al.*, 2010).

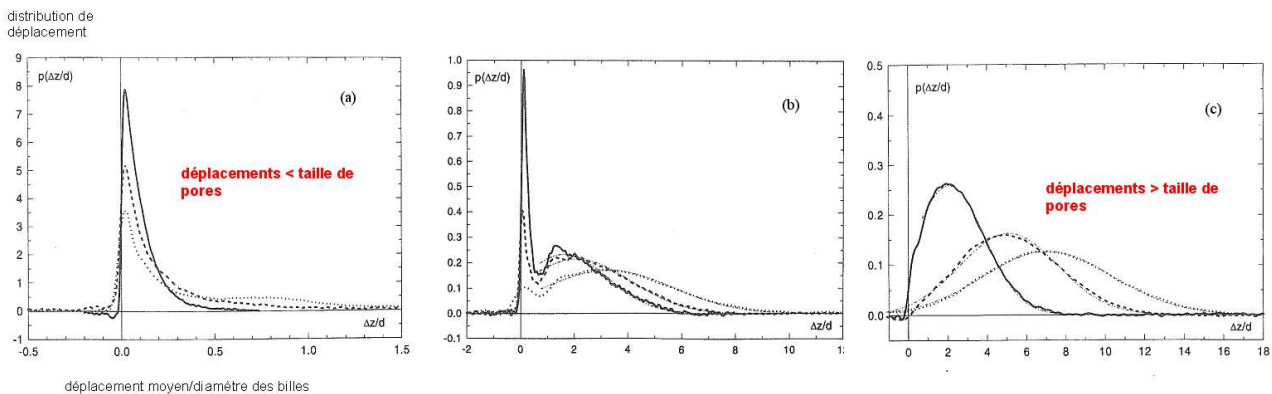


FIGURE 4 – Propagateurs obtenus dans différents empilements de billes de verre (Lebon *et al.*, 1997). Propagateurs normalisés $P(\Delta z/d_g)$ par la longueur caractéristique du milieu poreux (ici la taille de grains d_g) exprimé en fonction du déplacement Δz normalisé par la taille de grains.

La comparaison des propagateurs RMN avec les résultats des différentes théories et simulations comme les CTRW, les théories aux équations aux dérivées fractionnaires ou les marches aléatoires dans des réseaux de pores existent pour des milieux saturés (Lebon *et al.*, 1997, Zhao *et al.*, 2010) (Figure 5). Zhao *et al.* (2010) montrent (Figure 5) que l'on peut faire coïncider les résultats numériques du PNM avec les résultats expérimentaux de la RMN en agissant sur un seul paramètre de la simulation PNM (b le facteur de retardement des molécules de traceur aux noeuds du PNM). Ils retrouvent la

forme générale du propagateur expérimental à l'exception du pic pour les déplacements très faibles. La simulation numérique pour des réseaux saturés engendre toutefois une stagnation anormale qui se traduit par un pic du propagateur pour les déplacements faibles (Lebon *et al.*, 1997).

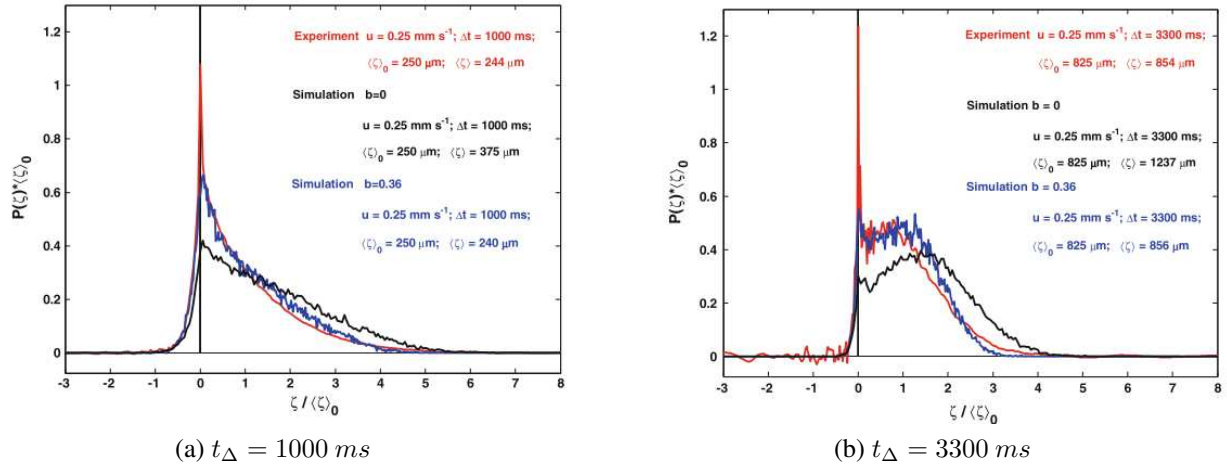


FIGURE 5 – Comparaison des propagateurs RMN et PNM pour un calcaire saturé (Zhao *et al.*, 2010). (a) : le temps d'observation Δ est de 1000 ms , (b) : $t_\Delta = 3300 \text{ ms}$. b est un facteur de retardement aux noeuds permettant de simuler des volumes de noeuds différents. $b = 0$ correspond à un noeud sans volume.

Les expériences de ce type sont rares en milieu insaturé, bien que ce soient les milieux où la dispersion anormale semble intervenir le plus fréquemment.

2 Objectifs de la thèse et programme de travail

L'objectif de la thèse est de mieux comprendre la dispersion en milieu poreux saturé, et l'influence des hétérogénéités de distribution de phase sur la dispersion en milieu poreux insaturé. Cette thèse s'inscrit dans le projet TRAM (Transport Anormal en Milieu Poreux), financé par l'ANR, qui rassemble des partenaires comme *IFP Energies nouvelles*, le CEA, l'INRA d'Avignon et l'université d'Avignon.

Pour répondre à la problématique il est proposé une double approche contenant une approche expérimentale et une approche numérique, ces approches seront reliées, dans le cadre du projet TRAM, à des approches théoriques comme les modèles MIM (Mobile-Immobile Model), MIM-fractal et des équations aux dérivées fractionnaires adaptées à l'étude par résonance magnétique nucléaire (RMN) de la dispersion. L'approche expérimentale utilise les propriétés de la résonance magnétique nucléaire du proton de l'eau pour obtenir des distributions de déplacement des molécules d'eau dans des échantillons de milieux poreux, des moments caractéristiques de la dispersion comme le déplacement moyen et le moment d'ordre deux σ^2 (variance des déplacements), ainsi que des informations comme la porosité et la saturation d'un milieu poreux. La RMN permet aussi de mesurer, dans le cas d'une expérience de traçage, des courbes de percées locales. Ces mesures RMN permettent de relier

l'approche classique de la dispersion (par étude de la dispersion d'un traceur) et l'approche RMN (étude de la dispersion locale des molécule d'eau). Les distributions et les moments caractéristiques de la dispersion seront comparés à des résultats de simulations de type marche aléatoire dans un réseau de pores obtenu par imagerie micro-scanner du milieu poreux étudié en RMN. Les résultats seront quant à eux comparés à des modèles stochastiques plus généraux que le seul mouvement Brownien, particulièrement des équations aux dérivées partielles incluant des dérivées d'ordre non entier (c-a-d dérivées fractionnaires).

Ce document présente dans une première partie l'état de l'art du sujet et les outils utilisés pour répondre à la problématique. Cette première partie s'attache notamment à décrire les connaissances générales sur la dispersion en milieu poreux saturés et insaturés, les éléments de RMN indispensables, les méthodes expérimentales développées ou utilisées et enfin des généralités sur les modèles de réseaux de pores et les marches aléatoires dans ces modèles servant à l'étude de la dispersion.

La seconde partie de ce document est consacrée aux résultats expérimentaux, en particulier, la validation des mesures expérimentales par les méthodes décrites dans la première partie et la caractérisation des milieux utilisés, les résultats obtenus sur des milieux saturés et enfin les résultats obtenus sur des milieux insaturés.

La troisième et dernière partie du document traite des marches aléatoires dans des réseaux de pores extraits des milieux poreux étudiés expérimentalement par imagerie micro-scanner. L'algorithme de marche aléatoire est tout d'abord décrit puis vérifié, les résultats des marches aléatoires dans un réseau de pores extrait d'un empilement de grains de sable de Fontainebleau étudié par RMN sont *in fine* présentés.

Première partie

Outils et État de l'art

Cette partie rappelle les éléments indispensables à la compréhension et à l'étude du sujet. Un état de l'art de la dispersion en milieu poreux est présenté dans le Chapitre 1. Ce chapitre rappelle la théorie classique de la dispersion asymptotique, synthétise les différentes mises en évidence de la dispersion anormale et conclut sur les critères d'établissement du régime pré-asymptotique de dispersion. Des éléments succincts mais indispensables de résonance magnétique nucléaire sont rappelés dans le Chapitre 2, tandis que le Chapitre 3 s'attache à décrire les différentes méthodes expérimentales utilisées au cours de la thèse. Le dernier chapitre de cette partie, le Chapitre 4, fait un bref résumé de l'état de l'art dans le domaine des modèles de réseau de pore et notamment du transport de particules dans ceux-ci.

Chapitre 1

Dispersion en milieu poreux saturé et insaturé

Sommaire

1.1	Dispersion classique	32
1.1.1	Rapports typiques pour l'étude de la dispersion	32
1.1.2	Lois fondamentales d'écoulement et de transport en milieu poreux	34
1.1.2.1	Loi de Fick	34
1.1.2.2	Équation d'Advection-Dispersion	35
1.1.2.3	Écoulement de Poiseuille et dispersion de Taylor	35
1.1.3	Mécanismes de dispersion	36
1.2	Dispersion anormale	37
1.2.1	Mise en évidence expérimentale	38
1.2.1.1	Mise en évidence expérimentale en laboratoire	38
1.2.1.2	Mise en évidence expérimentale in Situ	41
1.2.1.3	Conclusion sur la mise en évidence expérimentale du transport anormal	42
1.3	Dispersion pré-asymptotique : problématique RMN	43
1.4	Conclusion	44

Dans un fluide au repos, on observe que les solutés forment un nuage s'étalant au cours du temps du fait de la diffusion moléculaire. La diffusion moléculaire est un phénomène dispersif permanent, sa combinaison avec un champ de vitesse engendre des dispersions spécifiques du soluté. La dispersion de soluté a initialement été étudiée dans les fluides libres. Dans les milieux poreux, la forme de l'espace poral dans lequel circule le fluide génère des écoulements complexes.

La dispersion d'un nuage de molécules en milieu poreux est due à l'advection par le champ de vitesse et à la diffusion moléculaire. Historiquement, l'étude de la dispersion d'un nuage de traceurs (c'est à dire l'évolution de celui-ci au sein du milieu poreux) se base sur le coefficient de dispersion

D , qui peut-être, suivant les cas, constant dans le milieu poreux ou varier spatialement ou temporellement. Dans les milieux poreux, la dispersion met un certain temps à atteindre son état asymptotique, le coefficient de dispersion asymptotique est mesuré pour des temps longs (cf. Équation 1.4). Le régime de dispersion durant cet établissement est nommé pré-asymptotique.

Il a été montré qu'il existe deux sortes de dispersion asymptotique :

- la dispersion classique gaussienne (c-a-d l'évolution de la concentration en traceur pour un temps donné en fonction de la position dans le milieu suit une loi Normale),
- la dispersion anormale (c-a-d non gaussienne).

Dans ce chapitre sont présentés la dispersion classique, la dispersion anormale ainsi que la dispersion en milieu insaturé.

1.1 Dispersion classique

1.1.1 Rapports typiques pour l'étude de la dispersion

Il existe deux rapports adimensionnels essentiels pour la caractérisation des régimes d'écoulement et de transport. Pour la caractérisation des régimes de transport, il s'agit du nombre de Peclet (Pe) et pour la caractérisation des régimes d'écoulement, du nombre de Reynolds (Re).

Le nombre de Peclet (Pe) traduit le régime de transport de masse. La dispersion d'un traceur dans un fluide s'effectue, soit par diffusion moléculaire, soit par advection. Le flux diffusif de traceur $J_{diffusif}$ vérifie :

$$J_{diffusif} = -D_m \nabla(\rho_A) \approx D_m \frac{\rho_A}{L} \quad (1.1)$$

où D_m le coefficient de diffusion moléculaire du traceur dans le fluide de transport, ρ_A la masse de traceur par volume de fluide et L une longueur caractéristique de l'écoulement.

Le flux advectif de traceur $J_{advectif}$ vérifie lui :

$$J_{advectif} = \rho_A v \quad (1.2)$$

avec v la vitesse caractéristique de l'écoulement fluide.

Le nombre de Peclet est définit comme le rapport du flux advectif sur le flux diffusif :

$$Pe = \frac{J_{advectif}}{J_{diffusif}} = \frac{vL}{D_m} \quad (1.3)$$

Il a été montré par de nombreux auteurs (Guyon *et al.*, 1988, Bruderer et Bernabe, 2001, Maier *et al.*, 2000, Sahimi, 1995, 1993) une relation de dépendance entre nombre de Peclet et dispersion des traceurs. La Figure 1.1 représentant l'évolution de la dispersion longitudinale en fonction du nombre de Peclet permet de définir différents régimes de dispersion. Elle utilise le coefficient de dispersion D , qui est défini à partir des moments du nuage de traceurs selon l'équation suivante :

$$D = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{2} \frac{d(\sigma^2)}{dt} = \text{Constante} \quad (1.4)$$

où $\sigma^2(x, t)$ est la variance du nuage de particules (moment d'ordre 2) donnée par l'équation suivante :

$$\sigma^2(x, t) = \langle (x(t) - \langle x(t) \rangle)^2 \rangle \quad (1.5)$$

où $x(t)$ est la position des particules au temps t , et $\langle x(t) \rangle$ est la position moyenne des particules au temps t .

Le coefficient de dispersion D est communément décomposé en deux termes : le coefficient de dispersion longitudinale D_L et le coefficient de dispersion transversale D_T . Ce qui permet de définir l'évolution du traceur respectivement dans le sens de l'écoulement et perpendiculairement au sens d'écoulement.

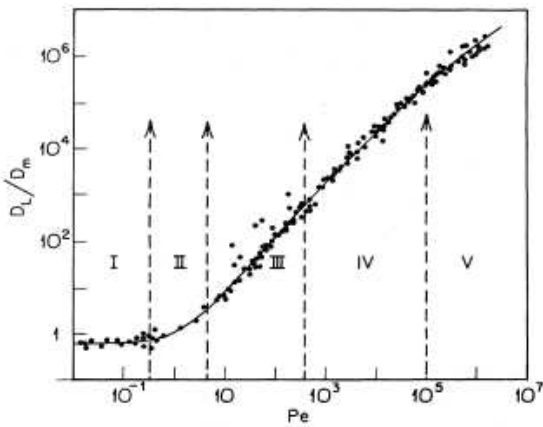


FIGURE 1.1 – Évolution du coefficient de dispersion longitudinale en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement (Sahimi, 1993).

Dans le cadre de la dispersion classique, deux mécanismes de transport sont à l'œuvre :

- La diffusion moléculaire, provenant du mouvement brownien des particules, est le seul mouvement intervenant en l'absence d'écoulement. Les particules se déplacent à cause de l'agitation moléculaire (autodiffusion en RMN), ou d'un gradient de concentration (loi de Fick, lors de la dispersion de traceur).
- L'advection, qui provient elle de la vitesse du fluide transportant les traceurs. Les traceurs se déplacent en suivant le champ de vitesse environnant.

Souvent, ces deux mécanismes agissent conjointement sur la dispersion des particules, le nombre de Peclet est fondamental pour étudier l'influence de ces deux types de transport. Le coefficient de dispersion D traduit la dispersion du traceur liée à ces deux types de transport, tandis que le coefficient de diffusion moléculaire D_m ne traduit que la dispersion liée à la diffusion moléculaire. Tracer l'évolution de la dispersion en fonction du nombre de Peclet (Pe) permet de distinguer l'importance relative des deux mécanismes de transport cités ci-dessus dans la dispersion des traceurs (Figure 1.1).

Ainsi, lorsque $Pe < 0.3$, la diffusion domine et l'advection est négligeable. Dans ce cas, le coefficient de dispersion D croît comme le carré du nombre de Peclet $D \propto Pe^2$. Le temps de corrélation τ est alors diffusif et est tel que $\tau \propto o(\frac{L^2}{D})$ (Guyon *et al.*, 1988). τ le temps de corrélation (autrement appelé temps d'auto corrélation lagrangien) correspondant au temps au delà duquel les variations

de vitesse du traceur ne sont plus corrélées. On dit aussi que pour un temps supérieur au temps de corrélation, le traceur perd la mémoire de sa position initiale.

Lorsque $5 < Pe < 300$, l'advection devient dominante mais la dispersion n'est pas encore négligeable. Le coefficient de dispersion D croît en puissance de Peclet $D \propto Pe^\beta$. β est défini pour la dispersion longitudinale comme β_L et pour sa valeur moyenne est de 1.2. β_T (valeur pour la dispersion transverse) est en moyenne de 0.9.

Lorsque $300 < Pe < 10^5$, la diffusion moléculaire devient négligeable devant l'advection et le coefficient de dispersion D croît linéairement par rapport au Peclet $D \propto Pe$. Le temps de corrélation est convectif et est tel que $\tau \propto o(\frac{L}{U})$ (Guyon *et al.*, 1988).

Le nombre de Reynolds (Re) permet de différencier et de caractériser les régimes d'écoulement : visqueux, laminaire et turbulent. Ce nombre représente le rapport entre les forces d'inerties et les forces visqueuses, il peut également s'exprimer en fonction du transport de quantité de mouvement. Dans un écoulement fluide, le transport de quantité de mouvement (donc le déplacement du fluide), de la même façon que le transport de matière, est soumis à deux mécanismes : advection et diffusion (c-a-d diffusion moléculaire). Le flux advectif de quantité de mouvement est de l'ordre de ρv^2 avec ρ la masse volumique du fluide considéré et v une vitesse caractéristique de l'écoulement. Le flux diffusif de quantité de mouvement est lui de l'ordre de $\frac{\eta v}{L}$ avec η la viscosité dynamique du fluide et L la dimension caractéristique de l'écoulement. Le nombre de Reynolds est le rapport entre ces deux flux :

$$Re = \frac{\rho v L}{\eta} = \frac{v L}{\nu} \quad (1.6)$$

avec ν la viscosité cinématique du fluide.

Les écoulements en milieu poreux sont principalement des écoulements à faibles nombres de Reynolds, c'est-à-dire laminaires.

1.1.2 Lois fondamentales d'écoulement et de transport en milieu poreux

Dans cette sous-partie sont présentées les lois fondamentales des écoulements et du transport de traceur en milieu poreux à l'échelle microscopique.

1.1.2.1 Loi de Fick

La première Loi de Fick énonce que le flux diffusif de matière $J_{diffusif}$ est proportionnel au gradient de concentration $\nabla C(x, t)$, au coefficient de dispersion D près :

$$J_{diffusif}(x, t) = -D \nabla C(x, t) \quad (1.7)$$

Ainsi la concentration en solution tend à s'homogénéiser avec le temps écoulé et l'espace parcouru. Cette loi est essentielle à la compréhension de la dispersion dans le sens où elle caractérise

plus particulièrement la diffusion moléculaire. C'est une loi microscopique, donc valable localement, tout comme les processus de diffusion. Cette loi est exacte uniquement lorsque D est constant et ne varie pas en fonction du temps. D est le coefficient de dispersion total (advection et diffusion pris en compte).

1.1.2.2 Équation d'Advection-Dispersion

L'ADE (Advection Dispersion Equation) est fréquemment utilisée dans de nombreux domaines scientifiques notamment dans l'étude des écoulements en milieux poreux, sa formulation est la suivante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -v \frac{\partial c}{\partial x} + D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (1.8)$$

où c est la concentration locale en traceur à la position x au temps t , v la vitesse locale du fluide, et D le coefficient de dispersion.

D'après cette équation, l'évolution de la concentration en fonction du temps en tout point de l'espace étudié résulte des flux advectifs et diffusifs décrits au Paragraphe 1.1.1. Cette formulation suppose l'existence d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER), c'est à dire d'un volume de milieu poreux pour lequel le milieu poreux peut être considéré comme homogène. Elle suppose aussi un milieu saturé dans lequel la loi de Fick s'applique. Les variations spatiales de la vitesse au sein du VER doivent être négligeables.

La solution de cette équation est une gaussienne, la dispersion décrite par cette équation est qualifiée de "normale" et est gaussienne. Dans ce cas, la relation entre écart-type et coefficient de dispersion peut s'écrire sous la forme (Guyon *et al.*, 1988, Metzler et Klafter, 2000) :

$$\sigma = \sqrt{2D_{eff}t} \quad (1.9)$$

où D_{eff} le coefficient de dispersion effective et t le temps.

1.1.2.3 Écoulement de Poiseuille et dispersion de Taylor

Avant d'étudier la dispersion en milieu poreux proprement dit, la dispersion de fluides dans des modèles de géométrie simple comme des cylindres a été étudiée, notamment par Taylor (1954), qui a établi modèle local simple de dispersion à partir d'un écoulement de Poiseuille (Poiseuille, 1840a,b) dans un cylindre de grand rapport d'aspect $d \ll L$ (d est le diamètre du tube et L sa longueur). Ce modèle est fondateur et fréquemment utilisé dans les simulations numériques de dispersion en milieu poreux. Ces simulations utilisant pour la plupart une représentation simplifiée du milieu poreux sous forme de canaux reliés entre eux par des pores.

Dans le cas d'un écoulement laminaire ($Re \ll 2000$ pour un fluide newtonien), le profil de vitesse du fluide est parabolique. Le profil parabolique du champ de vitesse nécessite une certaine longueur pour s'établir, cette longueur d'établissement est notée l_{Pois} et vaut $\frac{1}{4} Re d$. La loi de Poi-

seuille pour un tube cylindrique, exprimant le débit en fonction du diamètre du tube, de sa longueur et de la différence de pression ΔP entre les deux extrémités, s'écrit :

$$Q = \frac{\pi}{128\eta} \frac{\Delta P}{L} d^4 \quad (1.10)$$

Taylor montre, dans le cas d'un écoulement de Poiseuille, que la dispersion radiale est due uniquement à la diffusion moléculaire. La dispersion axiale résulte à la fois de la diffusion et de l'advection. Il en déduit alors une expression du coefficient de diffusion effectif asymptotique :

$$D_{eff} = D_m \left(1 + \frac{Pe_d^2}{192D_m} \right) \quad (1.11)$$

où Pe_d le nombre de Peclet basé sur le diamètre du canal d et D_m le coefficient de diffusion moléculaire.

La dispersion de Taylor est établie lorsque $d \ll L$ et que la longueur du canal est suffisante pour vérifier l'Équation 1.12. C'est une loi asymptotique.

$$L \gg \frac{Pe_d d}{4} \quad (1.12)$$

La dispersion du nuage de traceur associée à la dispersion de Taylor et à son établissement sont représentés schématiquement en Figure 1.2.

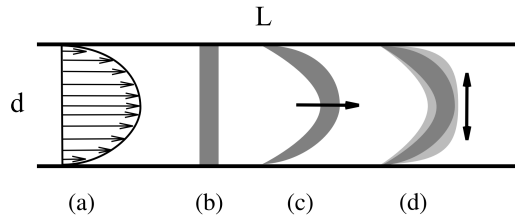


FIGURE 1.2 – Évolution d'un nuage de traceur dans un écoulement de Poiseuille. (a) profil de Poiseuille, (b) concentration initiale de traceur, (c) étalement axial par gradient de vitesse, (d) diffusion moléculaire radiale. Extrait du Cours sur les écoulement en milieu poreux de M.Nicolas IUSTI 2003.

1.1.3 Mécanismes de dispersion

Il existe, selon Guyon *et al.* (1988), trois mécanismes de dispersion par advection occurrents en milieu poreux : la dispersion mécanique, le piégeage et la dispersion en couche limite. Le quatrième mécanisme de dispersion est la diffusion moléculaire et n'est pas lié au champ de vitesse.

La dispersion mécanique, correspond à la dispersion due aux hétérogénéités du champ de vitesse. Les hétérogénéités du champ de vitesse entraînent une dispersion accrue des particules. Ce régime mécanique est discuté par Guyon *et al.* (1988) et Koch et Brady (1985). Ce type de dispersion arrive pour des nombres de Peclet (Pe) élevés. Dans ce cas, le transport advectif est majoritaire par rapport

au transport diffusif et le coefficient de dispersion (D) est grand (i.e. ce mécanisme engendre une forte dispersion) et $D \propto Pe$.

Les phénomènes de piégeage (hold-up) correspondent à une « capture » des particules dans le milieu. Les particules capturées sont par la suite remises ou non en circulation. Ces phénomènes sont liés à la structure du réseau poreux, et ont lieu dans les cul-de-sac du réseau (Dead-end), par exemple à cause d'une double porosité ou de zones stagnantes, ou plus généralement dans toutes les zones où l'advection est négligeable devant la diffusion moléculaire. Guyon *et al.* (1988) décrit alors le coefficient de dispersion D comme proportionnel au carré du nombre de Peclet : $D \propto Pe^2$.

Dans les zones où l'advection a plus d'importance que la diffusion, il existe, dans la plupart des cas, un régime particulier aux parois du milieu poreux, c'est le phénomène de la couche-limite. Cette couche limite est une lame fluide permettant à la vitesse du fluide de passer continuellement de sa valeur (non nulle) dans les canaux à la valeur zéro sur les parois. C'est une zone où l'advection et la diffusion sont en compétition. Guyon *et al.* (1988) montre que, dans ce cas, $D \propto Pe \ln(Pe)$.

La diffusion moléculaire, provenant du mouvement brownien des particules, est le seul mouvement intervenant en l'absence d'écoulement et à température uniforme et constante. Cette dispersion est toujours présente, il s'agit en quelque sorte de la dispersion "minimale". Les particules se déplacent à cause de l'agitation moléculaire, ce type de mouvement est fortement lié à la température du milieu. La dispersion caractéristique liée à la diffusion moléculaire est traduite par le coefficient de diffusion moléculaire D_m et est de type gaussien. En particulier, la moyenne des déplacements dus à la diffusion moléculaire est nulle.

En milieu poreux la diffusion moléculaire est contrainte par la géométrie de l'espace poral : le mouvement des particules est limité par les interfaces solides. Il en résulte un coefficient de diffusion moléculaire dit effectif $D_{m_{eff}}$, plus faible que le coefficient de diffusion moléculaire standard D_m .

1.2 Dispersion anormale

Dans certains cas, le schéma classique de dispersion ne répond pas de manière satisfaisante à la réalité observée. La dispersion peut-être non gaussienne dans deux cas : soit le régime est pré-asymptotique (le régime asymptotique n'est pas encore atteint), soit le régime est asymptotique. On parle de dispersion anormale dans le cas où le régime asymptotique est atteint. De nombreux auteurs se sont intéressés aux régimes pré-asymptotiques ainsi qu'aux régimes asymptotiques "anormaux".

On peut en général établir que σ^2 est proportionnel à une puissance du temps (Metzler et Klafter, 2000) :

$$\sigma^2 \propto t^a \quad (1.13)$$

La relation 1.13 permet de distinguer différents domaines de dispersion (Guyon *et al.*, 1988, Metzler et Klafter, 2000) comme le montre la Figure 1.3.

Lorsque $0 < a < 1$, on parle de régime sous-diffusif, de régime gaussien ou de dispersion normale

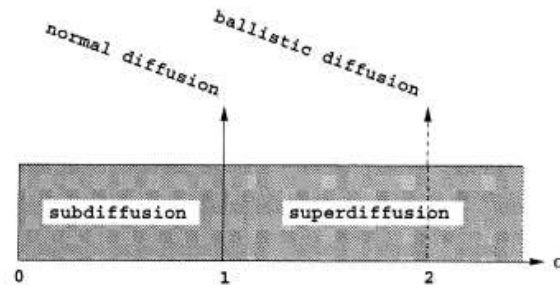


FIGURE 1.3 – Domaines de dispersion et relation avec $\sigma^2 \propto t^a$ (Metzler et Klafter, 2000).

pour $a = 1$, de régime super-diffusif pour $1 < a < 2$, et de régime balistique pour $a > 2$.

La dispersion anormale provient principalement (en milieu saturé) de l'hétérogénéité structurale du milieu poreux, ce qui influence notamment le champ de vitesse du fluide transportant le traceur. La forte hétérogénéité structurale d'un milieu poreux peut a priori produire des zones stagnantes où les particules sont retardées et des zones d'écoulement préférentiel où elles sont accélérées. On explique ainsi l'apparition de sorties accélérées ou tardives de traceur (observées expérimentalement, Paragraphe 1.2.1). Cependant, de plus en plus de travaux mettent en évidence la présence de dispersion anormale en milieux homogènes saturés (Li *et al.*, 2006, Zhang et Liu, 2007, Levy et Berkowitz, 2003). Hoffman *et al.* (1996), Oswald *et al.* (1997) montrent par imagerie RMN que les empilements homogènes de grains présentent des variations locales de conductivité hydraulique entraînant une hétérogénéité générant un transport faiblement anormal.

La modélisation du transport anormal présente des enjeux importants et est donc fortement étudiée. Parmi les méthodes utilisées, on retrouve les marches aléatoires comprenant les Continuous Time Random Walk (CTRW) (Berkowitz et Scher, 1997, Berkowitz *et al.*, 2006, Berkowitz, 2002, Berkowitz et Scher, 2009, Margolin et Berkowitz, 2004, Berkowitz et Scher, 2001, 1998, Levy et Berkowitz, 2003, Dentz et Tartakovsky, 2006, Scher *et al.*, 2002), les Time Domain Random Walk (TDRW) de (Bodin *et al.*, 2007, 2003, Banton *et al.*, 1997a,b) et les marches aléatoires en réseau de pore (Picard et Frey, 2007, Berkowitz et Scher, 1997, Bruderer et Bernabe, 2001, Sahimi *et al.*, 1986a). Une autre façon de modéliser le transport anormal utilise les équations aux dérivées fractionnaires (Scalas *et al.*, 2004, Lenormand, 1992, Gorenflo et Mainardi, 2000, Néel *et al.*, 2008, Krepyshcheva *et al.*, 2006).

1.2.1 Mise en évidence expérimentale

1.2.1.1 Mise en évidence expérimentale en laboratoire

L'existence d'un régime pré-asymptotique de dispersion à l'échelle du pore rend difficile la mise en évidence du transport anormal à l'échelle du laboratoire. Ainsi, il a été mis en évidence un régime de dispersion non gaussien à des temps et des échelles de déplacement faibles (Koch et Brady, 1985, Scheven, 2005). Koch et Brady (1985) observent un transport anormal aux temps courts en lits de

billes fixées. Le transport macroscopique dans un tel milieu s'est avéré Gaussien dans la limite des temps longs, la dispersion observée était donc pré-asymptotique. Dans le cas d'un milieu insaturé, Bacri *et al.* (1990) ont étudié expérimentalement le transport non-gaussien par une méthode acoustique dans un sable insaturé. Ils concluent que le transport anormal qu'ils observent est uniquement dû aux effets de taille finie de l'échantillon : ce dernier est trop petit pour obtenir le régime asymptotique.

Charlaix *et al.* (1988) étudient la dispersion d'un traceur dans un réseau saturé de capillaires (un milieu 1 de structure carrée, bien connectée avec des largeurs de canaux aléatoires (courbe supérieure) et un milieu 2 partiellement connectée et de structure hexagonale). Les résultats expérimentaux du modèle 1 (Figure 1.4 (a)) présentent une dépendance linéaire de D par rapport au nombre de Peclet, le transport y est donc classique (Fickien); alors que les résultats expérimentaux pour le milieu 2 ne sont pas gaussiens et montrent une relation logarithmique quelque soient les vitesses considérées. Pour des nombres de Peclet égaux, Charlaix *et al.* (1988) mettent en évidence le fait que le front de dispersion est beaucoup plus important dans le milieu hétérogène (partiellement connecté) que dans le milieu carré (bien connecté). Charlaix *et al.* (1988) ont mis en évidence le transport anormal dans un milieu partiellement connecté, donc possédant de fortes hétérogénéités au niveau de son champ de vitesse.

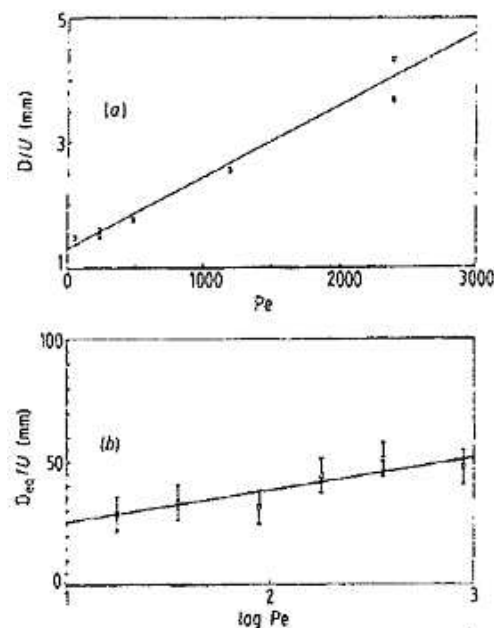


FIGURE 1.4 – Variation du coefficient de dispersion D en fonction du Peclet (Charlaix *et al.*, 1988). (a) milieu 1. (b) milieu 2.

Cortis et Berkowitz (2004) reprennent les expériences effectuées par Scheidegger (1959). Ces expériences consistent à étudier le déplacement d'un fluide miscible en milieu poreux de type grès de Berea, argiles de Aiken, et sable d'Oakley, que ce soit en saturé ou en insaturé. Scheidegger (1959) obtient des courbes de percées sur les différents échantillons qui sont entièrement saturés par un traceur non miscible puis lavés. Le traceur est poussé en dehors du grès par le fluide de lavage.

Scheidegger (1959) effectue la comparaison entre ses mesures expérimentales et les résultats obtenus par résolution de l'équation d'advection-diffusion (ADE) et conclut à la non représentativité de l'ADE pour ce type de transport. Cortis et Berkowitz (2004) montrent aussi que l'ADE ne décrit pas de façon satisfaisante la réalité expérimentale et valident leur modèle de transport de type Continuous Time Random Walk (CTRW). Les courbes de percées montrent une persistance du traceur dans le milieu, ce qui se traduit par des sorties tardives de traceur. Elles montrent aussi une sortie accélérée de traceur (Figure 1.5).

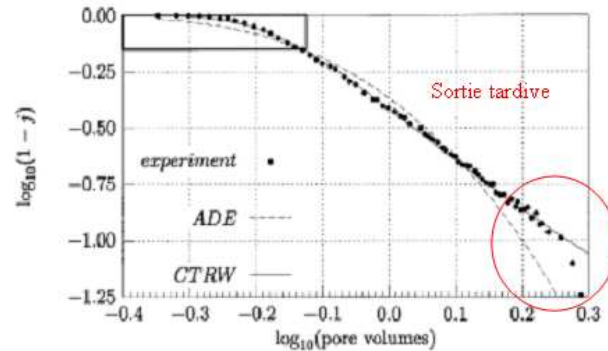


FIGURE 1.5 – Courbes de Percées expérimentales sur une colonne de sable et comparaison avec l'ADE et la CTRW (Cortis et Berkowitz, 2004) (j est le le flux sortant de traceur). Longueur de la colonne utilisée 30 cm. Vitesse moyenne du fluide 1.03 cm/s.

Ces sorties retardées de traceur sont une expression du transport anormal et sont clairement mises en évidence par les résultats rappelés ci-dessus. Toutefois le transport anormal n'est pas seulement confiné aux sorties tardives mais peut aussi correspondre à des sorties accélérées de traceurs (cadre noir sur la Figure 1.5). Cortis et Berkowitz (2004) émettent toutefois des réserves sur la faible longueur des milieux poreux étudiés qui peuvent empêcher l'observation du régime asymptotique de dispersion.

Fourar *et al.* (2005) ont publié une série de résultats expérimentaux de suivi de traceur par micro-scanner aux rayons X, dans des échantillons de diverses roches carbonatées saturées. Ils ont pu calculer le flux de traceur en tout point à tout moment à partir d'une mesure de concentration par micro-scanner et des équations standard de conservation de la masse.

Les expériences ont montré que le coefficient de dispersion n'est souvent pas constant et peut dépendre de l'espace (Figure 1.6). Le fait que le coefficient de dispersion ne soit pas constant et qu'il présente une dépendance en espace suggère un transport anormal.

La dispersion non gaussienne a été clairement observée, à l'échelle du laboratoire, dans des milieux hétérogènes ou insaturés. Ce type de dispersion a aussi été observé en milieu homogène saturé (Levy et Berkowitz, 2003, Li *et al.*, 2006, Zhang et Liu, 2007).

A l'échelle du laboratoire, le régime de dispersion non gaussien a été mis en évidence, que ce soit dans le cadre de la dispersion pré-asymptotique, ou dans le cadre de la dispersion asymptotique. Il est toutefois difficile de conclure à une réelle observation du transport anormal du fait de faibles

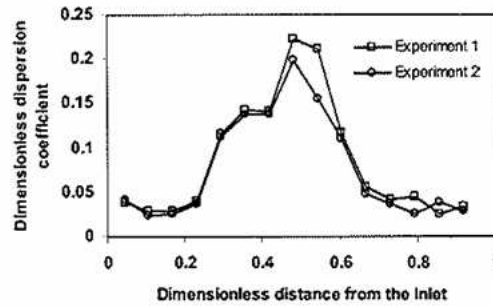


FIGURE 1.6 – Évolution du coefficient de dispersion le long d'un échantillon de carbonate (38 mm de diamètre et 80 mm de long) (Fourar *et al.*, 2005).

longueurs d'échantillons. Il est nécessaire d'obtenir une stabilisation du régime de dispersion avant de conclure à l'observation d'une dispersion asymptotique anormale. Il est important de noter que quelques auteurs mettent en doute la possibilité d'observer le régime de dispersion asymptotique et de mesurer les coefficients de dispersion effectifs à l'échelle du laboratoire (Lowe, 1995, Koch *et al.*, 1998). De fait, l'ensemble des résultats présents dans la littérature (en dehors de Scheven et Sen (2002)) ne montrent pas clairement l'obtention du régime asymptotique de dispersion, et ce même dans des milieux homogènes saturés.

1.2.1.2 Mise en évidence expérimentale in Situ

La mise en évidence du transport anormal à l'échelle du réservoir est moins soumise à caution du fait des dimensions du domaine d'étude. Benson *et al.* (2000) travaillent en milieu saturé sur l'aquifère du Cap Cod dans le Massachusetts (USA). Cet aquifère est composé de sables et de gravier et est considéré comme homogène. En juillet 1985 a été largué dans cet aquifère $7.6m^3$ de traceur inerte (du bromure, Br^-), l'évolution du nuage de traceur a ensuite été suivie durant plusieurs mois à l'aide d'un ensemble de piézomètres répartis sur l'aquifère. Les données recueillies ont permis d'établir des profils de concentration en traceur suivant la distance au point d'injection. Ces résultats sont présentés dans la Figure 1.7.

Benson *et al.* (2000) ont comparé les profils de concentration à des gaussiennes. Leurs résultats (Figure 1.7), montrent clairement l'existence de trainées. Ils expliquent ces trainées par une petite proportion de molécules emportées loin et vite en fonction de la microstructure et d'autres molécules stagnant, au contraire, dans des zones à très faible écoulement. Ces résultats suggèrent l'existence du transport anormal à l'échelle du réservoir en milieu homogène saturé, en relation avec des hétérogénéités de structures à petite échelle.

En milieu insaturé et à l'échelle du réservoir, Gouze *et al.* (2008) montrent l'existence du transport anormal. Gouze *et al.* (2008) travaillent sur un aquifère insaturé (eau-air), fortement hétérogène à petite échelle mais homogène à grande échelle. La technique utilisée repose sur un cycle d'injection-pompage mono-puits. Ces auteurs injectent un pic de traceur (Saumure ou Uranine) puis de l'eau

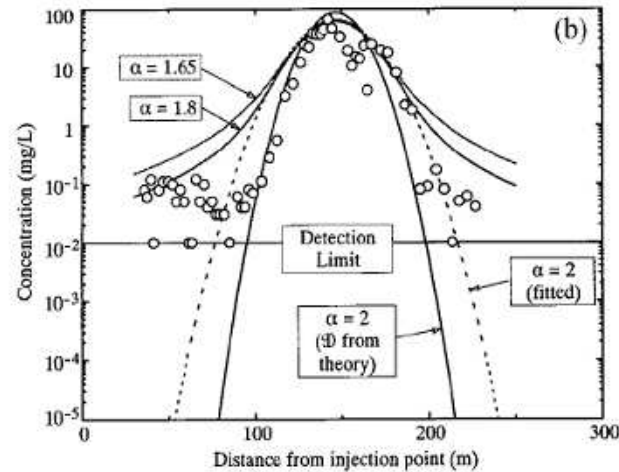


FIGURE 1.7 – Profil de concentration expérimental (points) et comparaison avec des profils obtenus par simulation numérique (lignes continues) (Benson *et al.*, 2000) : aquifère de sable et gravier très hétérogène, traceur passif. $\alpha = 2$ correspond à une gaussienne.

pour disperser le traceur, stoppent l'injection, attendent un temps fixé la dispersion du traceur puis pompent. On mesure alors la variation de la concentration en traceur au cours du pompage, ce qui correspond à une courbe de percée. Gouze *et al.* (2008) montrent que, quelque soit le traceur utilisé, les courbes de percées font apparaître des trainées (Figure 1.8). Ce qui est cohérent avec le fait qu'une partie du traceur diffuse dans des zones où le fluide est immobile et y reste piégé. Les courbes nettement non gaussiennes suggèrent un transport anormal à l'échelle du réservoir en milieu partiellement saturé.

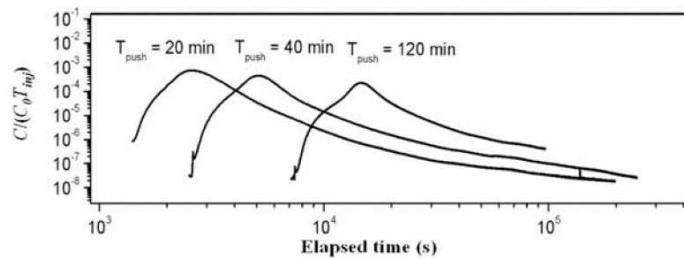


FIGURE 1.8 – Courbes de percées pour un traceur Saumure par cycle injection-pompage en puits unique (Gouze *et al.*, 2008) : Réservoir homogène à grande échelle et très hétérogène à petite échelle. T_{push} correspondant au temps d'injection de fluide non traçant après l'injection du traceur. L'abscisse des graphique correspond à la durée du pompage. On observe l'évolution de la concentration en traceur dans le fluide sortant en fonction de la durée du pompage.

1.2.1.3 Conclusion sur la mise en évidence expérimentale du transport anormal

Le transport anormal a été mis en évidence à l'échelle du réservoir, en milieu saturé et insaturé, homogène et hétérogène ; par des courbes de percées ou des profils de concentration non gaussiens et

des coefficients de dispersion non linéaires par rapport au temps et à l'espace.

La mise en évidence du transport anormal à l'échelle du laboratoire a, pour l'instant, toujours été sujette à caution. La dispersion anormale se confond en effet souvent avec la dispersion pré-asymptotique du fait de la taille des échantillons. Les expériences classiques de traceur ne permettent pas d'observer efficacement la dispersion pré-asymptotique à l'échelle du pore, celle-ci étant cachée par les effets d'injections. La RMN permet une mesure locale de la dispersion qui n'est pas soumise aux effets d'entrée. Du point de vue de la RMN, quelques auteurs ont essayé de quantifier le passage entre dispersion pré-asymptotique et dispersion asymptotique afin de pouvoir conclure définitivement à l'observation du régime asymptotique anormal à l'échelle du laboratoire. Les critères de transition obtenus font l'objet du paragraphe suivant.

1.3 Dispersion pré-asymptotique : problématique RMN

La mise en évidence du régime pré-asymptotique ayant déjà été présentée, ce paragraphe traite des critères permettant de définir l'obtention du régime asymptotique dans les conditions d'écoulement compatibles avec les mesures par RMN. Alors que la dispersion pré-asymptotique lors d'expériences classiques de tracage est dominée par les effets d'injection de traceur en entrée de colonne, la RMN permet d'étudier la dispersion locale en s'affranchissant des effets d'entrée (lorsque la zone étudiée est suffisamment petite devant la longueur du milieu poreux).

La dispersion pré-asymptotique est un régime de dispersion non gaussien transitoire se produisant aux temps courts, comme il l'a brièvement été montré au Paragraphe 1.2.1. Ce régime correspond au temps que les particules de traceur mettent à échantillonner l'ensemble des vitesses de déplacements présentes dans le milieu poreux (Lebon *et al.*, 1996, 1997). La transition entre régime pré-asymptotique et régime asymptotique a surtout été étudié par RMN, cette méthode permettant une mesure locale de distributions de vitesses ou de déplacement dans un milieu poreux en fonction du temps (cf. chapitres 2 et 3).

Scheven et Sen (2002) montrent que le régime asymptotique gaussien est atteint, en milieu saturé, dans un milieu composé de billes de verre de diamètres de 152 ± 12 ou $215 \pm 15 \mu m$, lorsque le déplacement moyen des molécules d'eau $\langle \xi \rangle$ est supérieur à dix fois la taille de grains dg et que la longueur de déplacement due à la diffusion $L_D = \sqrt{2D_m t}$ est supérieur à 0.3 fois la taille de grains :

$$\begin{aligned} \langle \xi \rangle &> 10dg \\ L_D &> 0.3dg \end{aligned} \tag{1.14}$$

où D_m est le coefficient de diffusion moléculaire de l'eau dans l'eau et t le temps d'observation durant lequel la RMN mesure le déplacement des molécules d'eau.

Une des caractéristiques du régime asymptotique gaussien de dispersion est que le déplacement des molécules est indépendant de leurs déplacements passés, ce qui se traduit par une fonction de

corrélation de vitesse nulle. Khrapitchev (2003) mesurent la fonction de corrélation de vitesse par RMN dans un empilement de sphères de $500\ \mu\text{m}$ dans une cellule de $10\ \text{mm}$ de diamètre, et montrent que cette fonction s'annule pour de grands temps. L'annulation de celle-ci est caractéristique du régime de dispersion gaussien et permet donc d'établir clairement l'obtention du régime de dispersion asymptotique normal. Ce type de mesure n'est toutefois pas facile à réaliser, elle doit être réalisée sur des écoulements à grands nombres de Peclet ($> 10^3$).

1.4 Conclusion

Ce chapitre a présenté les grands principes de la dispersion classique en milieu poreux, notamment le nombre de Peclet dont on a vu qu'il pouvait servir à décrire de manière universelle le coefficient de dispersion pour les différentes vitesses d'écoulement. L'étude de la dispersion dans un cylindre, à travers la loi de Poiseuille définissant le profil des vitesses et de Taylor décrivant la dispersion d'un nuage de traceur au cours du temps, est utile pour comprendre la dispersion dans les milieux poreux. Dans le cas simple d'une dispersion de traceur dans un écoulement dans un cylindre, Taylor (1954) montre que le régime gaussien classique de dispersion est un régime asymptotique nécessitant une certaine longueur d'établissement. Il met en évidence un régime de dispersion pré-asymptotique et une transition vers le régime asymptotique gaussien. De nombreux auteurs mettent en évidence un phénomène identique dans le cas de milieux poreux. La dispersion classique gaussienne met un certain temps à s'établir, elle est donc appelée asymptotique et il existe un régime de dispersion pré-asymptotique non gaussien.

L'étude approfondie de la dispersion en milieu poreux a permis de montrer que celle-ci est régie par différents mécanismes liés soit au champ de vitesse soit à la diffusion moléculaire. Ces mécanismes sont concomitants, mais leurs influences relatives varient en fonction du nombre de Peclet. La connaissance et la compréhension de ces mécanismes est essentielle à la compréhension de la dispersion en milieu poreux.

Nonobstant l'importance de la dispersion classique, de nombreux auteurs ont mis en évidence des dispersions anormales, notamment en milieux poreux hétérogènes ou insaturés, et ce, à toutes les échelles d'observation. Néanmoins, la mise en évidence de la dispersion anormale à l'échelle du laboratoire reste souvent sujette à caution du fait de la difficulté d'observer un régime de dispersion asymptotique. Les conditions expérimentales restreignent en effet souvent l'étude de la dispersion à celle du régime pré-asymptotique.

La transition entre régime pré-asymptotique et asymptotique, si elle est connue, n'a pas permis de dégager des critères chiffrés clairs et universels. Un des critères les plus efficaces serait de mesurer la fonction de corrélation des vitesses, le régime asymptotique gaussien étant caractérisé par une perte de corrélation des vitesses, ce critère est universel et efficace. La fonction de corrélation des vitesses dans un milieu poreux est toutefois difficile à obtenir, en particulier pour des milieux poreux peu perméables. Des auteurs comme Lebon *et al.* (1997) et Scheven et Sen (2002) ont essayé de définir des critères d'établissement du régime asymptotique du point de vue de la RMN (mesure locale de la

dispersion des molécules d'eau pour un temps donné) pour des empilements de sphères ou de sable à partir de valeurs facilement mesurables comme la vitesse moyenne, la taille des grains, ou le coefficient de diffusion moléculaire. Les critères de Scheven et Sen (2002) prenant en compte l'ensemble de ces critères semblent mieux à même de quantifier la transition entre régime pré-asymptotique et régime asymptotique.

Chapitre 2

Rappels de RMN

Sommaire

2.1	Évolution de l'aimantation et pulses radio-fréquence	48
2.1.1	Basculement de l'aimantation	48
2.1.2	Types d'impulsions radio-fréquence	49
2.2	Phénomènes de relaxation	50
2.3	Codage spatial de l'aimantation	52
2.3.1	Codage des déplacements des spins	53
2.3.2	Sélection de tranche	55
2.3.3	Profil de densité des spins	56
2.4	Conclusion	57

La résonance magnétique nucléaire (RMN) se base sur une des propriétés quantiques des atomes, le moment de spin, qui correspond à un moment cinétique du noyau. Certains atomes possèdent un spin non nul, propriété qui va être exploitée dans les mesures par RMN. La RMN utilisée dans le cadre de ce travail se base sur le noyau d'hydrogène de la molécule d'eau, que l'on appelle proton. Celui-ci a pour nombre de spin $1/2$ et possède un moment dipolaire magnétique, qui est la principale manifestation physique du spin.

La mesure RMN consiste à plonger un ensemble de spins dans un champ statique $\vec{B}_0$, ce qui a pour effet de créer, à l'équilibre, une aimantation macroscopique de l'échantillon, colinéaire à $\vec{B}_0$. La détection de cette aimantation très faible n'est possible qu'en utilisant une technique de résonance, qui consiste à injecter de l'énergie à une fréquence particulière, la fréquence de Larmor $\vec{\omega}_{Larmor} = \gamma \vec{B}_0$. Le coefficient γ est le moment gyromagnétique du noyau considéré (Pour le noyau d'hydrogène il est de $26.75 \cdot 10^7 \text{ rad.T}^{-1}.\text{s}^{-1}$).

L'aimantation macroscopique résultante peut ensuite être manipulée et en particulier codée spatialement pour détecter des variations de positions ou faire des images.

Seuls les éléments nécessaires à la compréhension des séquences RMN utilisées pour l'obtention des propagateurs, des porosités et des saturations sont présentées brièvement dans ce chapitre : il s'agit

du basculement de l'aimantation et des impulsions radio-fréquence, des phénomènes de relaxation, des impulsions de gradients de champ, et enfin, du codage spatial de l'aimantation.

2.1 Évolution de l'aimantation et pulses radio-fréquence

2.1.1 Basculement de l'aimantation

Dans l'approche classique des équations de Bloch, les impulsions radio-fréquence permettent de basculer l'aimantation dans des directions autres que la direction de $\vec{B}_0$ (Figure 2.1).

Dans le référentiel du laboratoire R $((\vec{x}, \vec{y}, \vec{z}))$ avec $\vec{z}$ orienté selon $\vec{B}_0$, une impulsion radio-fréquence $\vec{B}_{RF}$, oscillant à la pulsation de Larmor $\vec{\omega}_0$ (Paragraphe 2.1.2), fait précesser l'aimantation macroscopique $\vec{M}$ à une pulsation $\vec{\omega}_{RF} = \gamma \vec{B}_{RF}$. L'évolution de l'aimantation $\vec{M}$ vérifie l'Équation 2.1 :

$$\left(\frac{d\vec{M}}{dt} \right)_R = \gamma \vec{M} \wedge \vec{B} \quad (2.1)$$

où $\vec{B} = \vec{B}_0 + \vec{B}_{RF}$.

Dans le référentiel R_T tournant à la vitesse $\vec{\omega}$ autour de $\vec{B}_0$, l'évolution de l'aimantation devient :

$$\left(\frac{d\vec{M}}{dt} \right)_{R_T} = \left(\frac{d\vec{M}}{dt} \right)_R + \vec{M} \wedge \vec{\omega} = \vec{M} \wedge [(\vec{\omega} - \vec{\omega}_0) - \vec{\omega}_{RF}] \quad (2.2)$$

Dans le cas des impulsions radio-fréquence RMN, on se place à la condition de résonance $\vec{\omega} = \vec{\omega}_0$. Le mouvement de précession de l'aimantation $\vec{M}$ se fait alors uniquement autour de $\vec{B}_0$ à la pulsation $\vec{\omega}_{RF} = \gamma \vec{B}_{RF}$.

Lors d'une impulsion radio-fréquence d'amplitude B_{RF0} et de durée T , l'angle de rotation de $\vec{M}$, α , est relié aux paramètres du pulse RF par la formule suivante :

$$\alpha = \gamma B_{RF0} T \quad (2.3)$$

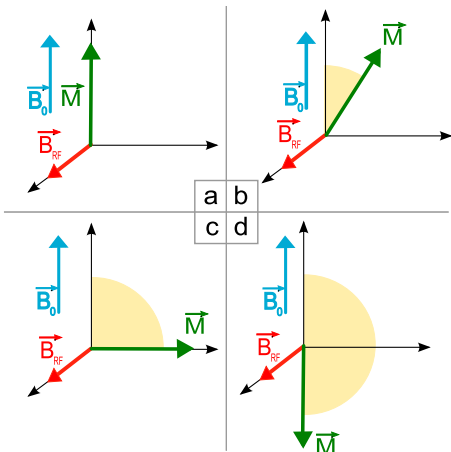


FIGURE 2.1 – Les pulses radiofréquence permettent de faire varier l'orientation de l'aimantation macroscopique dans le référentiel du laboratoire.

- **a** . A l'équilibre, l'aimantation $\vec{M}$ est colinéaire à $\vec{B}_0$.
- **b** . Lors de l'impulsion radio-fréquence, l'aimantation bascule en fonction de la durée de l'impulsion, au temps t , le basculement est de $\gamma \vec{B}_{RF} t$.
- **c** et **d** correspondent à des durées d'impulsion permettant d'obtenir des angles de rotation de $\frac{\pi}{2}$ et π .

Tant qu'il subsiste une aimantation transverse, il est possible de coder les déplacements des porteurs de spin. Ce point sera développé au Paragraphe 2.3, une fois que nous aurons vu comment basculer l'aimantation macroscopique afin, justement, de pouvoir détecter l'influence de ces mouvements sur la précession.

Les séquences RMN commencent classiquement avec une impulsion radio-fréquence d'angle $\frac{\pi}{2}$ permettant de basculer l'aimantation $\vec{M}$ dans le plan transverse. Ce pulse est utilisé car il génère un signal maximal.

Kimmich (1997) montre que l'évolution de l'aimantation $M(t)$ dans le référentiel tournant R_T après un tel pulse est un signal complexe et est relié au déphasage au cours du temps, uniforme dans l'espace, de l'aimantation des spins $\phi(t)$:

$$\vec{M}(t) = \vec{M}_x + i\vec{M}_y = M_0 \exp(-i\phi(t)) \quad (2.4)$$

2.1.2 Types d'impulsions radio-fréquence

Il existe deux principaux types d'impulsions radio-fréquence, les pulses courts (Hard pulses) et les pulses longs (Soft pulses).

Pulses courts : Le pulse court est un pulse de forte puissance. Sa pulsation doit être la plus proche possible de celle de Larmor. Son enveloppe est carrée mais non contrôlée car dépendante des caractéristiques de l'appareil utilisé. Ces pulses agissent sur tous les spins présents dans le système.

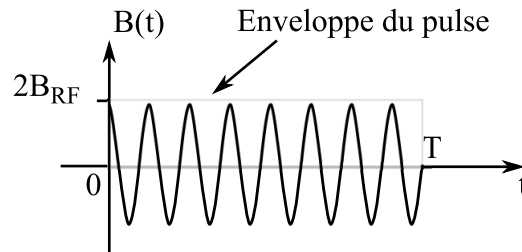


FIGURE 2.2 – Génération d'un pulse radio-fréquence court d'enveloppe carrée non contrôlée.

Le pulse court est défini par sa durée T , son amplitude B_{RF} et sa phase φ . Du point de vue expérimental, l'amplificateur radio-fréquence qui génère les pulses radio-fréquence a besoin d'un certain temps pour atteindre l'amplitude maximale B_{RF0} . Ce temps de montée définit l'enveloppe du pulse court et son potentiel de rotation de l'aimantation.

On trouve deux principaux types de pulses courts :

- Les pulses basculant $\vec{M}$ d'un angle $\pi/2$ (cf. Figure 2.1.c). La durée de ces pulses est de $T = \pi/(2\gamma B_{RF0})$.
- Les pulses basculant l'aimantation d'un angle π (cf. Figure 2.1.d). Leur durée est de $T = \pi/(\gamma B_{RF0})$.

La durée des pulses radio-fréquence de type $\pi/2$ et π est relativement courte (Hard pulses), de l'ordre de quelques microsecondes.

Pulses longs : Les pulses longs ou soft pulses, sont des impulsions radio-fréquence donc l'enveloppe n'est pas carrée et est contrôlée dans le but de sélectionner une bande de fréquence, et dont la durée est de l'ordre de la dizaine à la centaine de milliseconde. Contrairement aux pulses courts qui utilisent des champs $\vec{B}_{RF}$ élevés (et donc, ont des durées courtes), les pulses longs utilisent des champs $\vec{B}_{RF}$ plus faibles. De manière grossière, on estime que $\vec{B}_{RF}$ influence les spins sur la gamme de fréquence de résonance $\Delta\vec{\omega} = \pm \frac{\gamma}{2\pi} \vec{B}_{RF}$ de la fréquence de résonance exacte. Si l'on reprend l'exemple donné par Freeman (1997), un pulse long $\pi/2$ de 10 ms a une largeur effective en terme de fréquence $\Delta\vec{\omega}$ de ± 25 Hz, alors qu'un pulse court $\pi/2$ de 10 μs a une largeur effective de ± 25 kHz. Ce type de pulse bascule l'aimantation plus lentement que les pulses durs, ce qui entraîne l'augmentation de la durée du pulse.

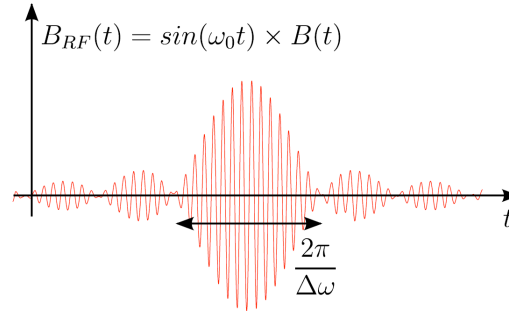


FIGURE 2.3 – Exemple d'enveloppe de pulse long.

La forme de cette enveloppe est le produit d'un sinus haute fréquence ($\vec{\omega}_0 = \vec{\omega}_{Larmor}$) et d'une forme $\vec{B}(t) = \text{sinc}(\frac{\Delta\vec{\omega}t}{2\pi})$.

2.2 Phénomènes de relaxation

Dans le cas d'un système de spins, le mouvement de précession de l'aimantation à $\gamma\vec{B}_0$ n'est pas parfait. Les interactions dipolaires dans le système entraînent l'évolution progressive de l'aimantation dans le repère du laboratoire R ($(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ et $\vec{z}$ orienté selon $\vec{B}_0$). L'évolution de l'aimantation, dans le cas d'un système non soumis à la diffusion où à l'advection, est décrite par l'équation de Bloch (Bloch, 1946, Bloch *et al.*, 1946) :

$$\left(\frac{d\vec{M}}{dt} \right) = \gamma \vec{M} \wedge \vec{B}_0 - \frac{\vec{M}_x}{T_2} \vec{x} - \frac{\vec{M}_y}{T_2} \vec{y} - \frac{\vec{M}_z - \vec{M}_0}{T_1} \vec{z} \quad (2.5)$$

L'équation de Bloch peut aussi être exprimée sous la forme d'un système d'équation dans le repère tournant R_T :

$$\left(\frac{d\vec{M}_x}{dt}\right) = -\frac{\vec{M}_x}{T_2} \quad (2.6)$$

$$\left(\frac{d\vec{M}_y}{dt}\right) = -\frac{\vec{M}_y}{T_2} \quad (2.7)$$

$$\left(\frac{d\vec{M}_z}{dt}\right) = -\frac{\vec{M}_z - \vec{M}_0}{T_1} \quad (2.8)$$

Dans ces équations sont définis les temps de relaxation T_1 (longitudinal) et T_2 (transversal), qui sont caractéristiques du retour à l'équilibre de l'aimantation dans les directions longitudinales et transversales.

L'aimantation macroscopique $\vec{M}$ se décompose en une composante longitudinale $\vec{M}_{\parallel}$ ($\vec{M}_{\parallel} = \vec{M}_z$) et une composante transversale $\vec{M}_{\perp}$ ($\vec{M}_{\perp} = \vec{M}_x + \vec{M}_y$). L'évolution de $\vec{M}_{\parallel}$ et $\vec{M}_{\perp}$ lors du retour à l'équilibre, et les liens avec l'équation de Bloch et les temps de relaxation T_1 et T_2 sont décrits dans la Figure 2.4.

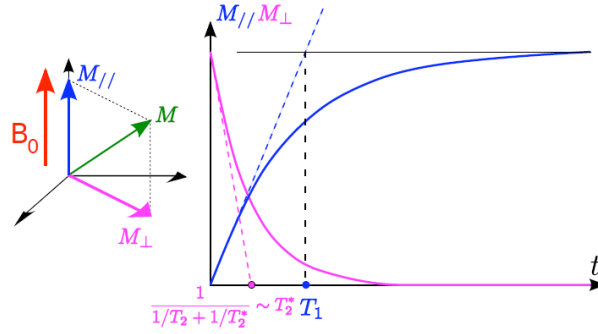


FIGURE 2.4 – Retour spontané de l'aimantation à l'équilibre. T_1 correspond au temps de retour à l'équilibre (temps de relaxation) de l'aimantation $\vec{M}_{\parallel}$. T_2 et T_2^* correspondent aux temps de relaxation de $\vec{M}_{\perp}$.

Lorsqu'initialement l'aimantation est basculée dans le plan transverse, on peut observer le retour à l'équilibre de $\vec{M}$ en fonction du temps à travers l'évolution de $\vec{M}_{\parallel}$ et $\vec{M}_{\perp}$.

Plusieurs phénomènes influencent le retour à l'équilibre de l'aimantation macroscopique :

– *La relaxation spin-réseau*

Le temps de relaxation T_1 est associé à la relaxation spin-réseau. Elle traduit la tendance des spins à retourner vers les populations d'équilibre sur les deux niveaux d'énergie $+1/2$ et $-1/2$. Ce qui correspond à un retour de $\vec{M}_{\parallel}$ vers la valeur d'équilibre $\vec{M}_{\parallel 0}$, ce retour se faisant suivant une courbe en $\left(1 - 2 \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right)\right)$. La perte d'énergie associée à cette relaxation se fait sous forme d'échange de chaleur. Le temps T_1 est caractéristique du milieu (environ 3s pour de l'eau libre).

– *La relaxation spin-spin*

Les interactions spin-spin engendrent une défocalisation des spins qui va progressivement annihiler l'aimantation transversale $\vec{M}_\perp$, ce suivant une courbe en $\exp\left(-\frac{t}{T_2}\right)$. Cette relaxation n'est pas liée à une perte d'énergie mais à une augmentation de l'entropie du système. Elle est caractéristique du milieu et est d'autant plus rapide que le milieu favorise les interactions entre spins. Le temps T_2 est inférieur ou égal au temps T_1 .

– *La relaxation due à l'inhomogénéité de $\vec{B}_0$*

Le temps de relaxation T_2^* provient lui de l'inhomogénéité du champ statique $\vec{B}_0$. cette inhomogénéité entraîne des variations locales de précession des spins et donc la disparition progressive de l'aimantation transversale $\vec{M}_\perp$. Cette relaxation dépend donc de l'appareil utilisé. Sur l'imageur DRX 20MHZ, T_2^* est de l'ordre de quelques millisecondes.

Les temps de relaxation T_1 et T_2 caractérisent le milieu et son environnement. Ils sont dépendants de la température, de la valeur de la pulsation de Larmor (donc de $\vec{B}_0$) ainsi que de la présence d'espèces paramagnétiques pouvant interagir avec les protons de l'eau.

En milieu poreux, les interactions spin-réseaux et spin-spin sont augmentées, la relaxation est accentuée par la présence de solide, ce qui augmente les interactions entre les spins et la matrice du milieu poreux. Les temps de relaxation sont d'autant plus courts que la taille des pores est petite.

2.3 Codage spatial de l'aimantation

La RMN permet de coder la position des porteurs de spins, mais aussi de sélectionner spatialement les spins à exciter, donc l'endroit de l'échantillon où les mesures sont faites. Le codage s'effectue par l'intermédiaire de gradients de champ magnétique.

Les gradients de champ magnétique peuvent-être considérés comme des inhomogénéités spatiales contrôlées du champ magnétique. Si l'on considère l'application d'un gradient de champ magnétique $\vec{g}$ dans le système de spins soumis au champ magnétique $\vec{B}_0$, dans le référentiel du laboratoire $((\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ avec $\vec{z}$ orienté selon $\vec{B}_0$) le champ magnétique résultant s'écrit :

$$\vec{B} = \vec{B}_0 + \vec{g} \cdot \vec{r} \quad (2.9)$$

où $\vec{r}$ est le vecteur position et $\vec{g}$ est orienté suivant $\vec{x}$, $\vec{y}$, ou $\vec{z}$.

Ainsi, selon l'Équation 2.9, le champ magnétique varie en fonction de la position dans l'espace considéré. Les spins sont donc soumis à un champ spatialement inhomogène. La vitesse de précession des spins change et devient fonction de leur position dans l'espace : $\vec{\omega} = -\gamma \vec{B}$. L'application d'un gradient de champ de durée δ entraîne donc un déphasage de l'aimantation des spins en fonction de leur position dans l'espace : $\phi_{\vec{r}} = \gamma \delta \vec{g} \cdot \vec{r}$.

L'enchaînement de gradients et de pulses radio-fréquence permet de coder le déplacement des spins, de sélectionner une partie des spins présents dans un échantillon (sélection de tranche), ou de coder la position des spins et de mesurer leur densité spatiale.

2.3.1 Codage des déplacements des spins

La mesure des déplacements par RMN est rendue possible par le codage de la position des spins à un instant donné. Cette mesure des déplacement est liée à l'expression du changement de phase de l'aimantation généré par le système impulsion radio-fréquence / gradient de champ magnétique (Stapf et Han, 2006). Ce changement de phase ϕ est propre à l'aimantation située en $\vec{r}$ au temps t :

$$\phi(\vec{r}, t) = \int_{\delta} \vec{\omega}(t) \cdot \vec{r}(t) dt = \int_{\delta} \gamma \vec{g}(t) \cdot \vec{r}(t) dt \quad (2.10)$$

Les mesures de déplacement en RMN sont classiquement effectuées à l'aide de la séquence d'écho de Hahn légèrement modifiée (Figure 2.5) (Carr et Purcell, 1954, Price, 1997).

Le premier gradient code la position initiale au temps t_1 , tandis que le deuxième gradient décode la position finale des spins au temps $t_1 + t_{\Delta}$, t_{Δ} est le temps d'observation, c-a-d la durée sur laquelle sont mesurés les déplacements. Le premier pulse $\pi/2$ bascule l'aimantation à l'équilibre $\vec{M}_0$ dans le plan transversal. Au temps t_1 est appliqué un gradient d'amplitude $\|\vec{g}\|$ et de durée δ . Lors de l'application de ce premier gradient, l'aimantation à la position $\vec{r}$ subit un changement de phase de $\phi(\vec{r}) = \gamma \delta \vec{g} \cdot \vec{r}$. L'impulsion radio-fréquence π inverse l'aimantation, le déphasage devient alors $\phi(\vec{r}) = -\gamma \delta \vec{g} \cdot \vec{r}$. Le second gradient, opposé au premier engendre lui un déphasage de $\phi(\vec{r}') = \gamma \delta \vec{g} \cdot \vec{r}'$.

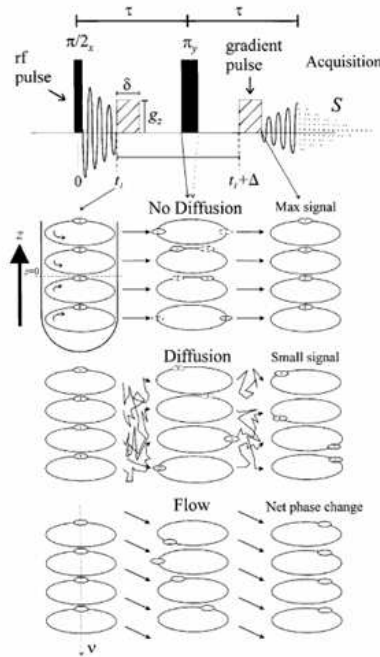


FIGURE 2.5 – Séquence d'écho de spin à gradients de champ pulsés (PFGSE). C'est une séquence simple de mesure des déplacements des spins. D'après Price (1997) ($\Delta = t_{\Delta}$, le temps d'observation).

Ainsi le déphasage de l'aimantation durant t_{Δ} (Barberon, 2001, Stapf et Han, 2006, Price, 1997) est défini par :

$$\begin{aligned} \phi(\vec{R}, t_{\Delta}) &= \gamma \delta \vec{g} \cdot (\vec{r}' - \vec{r}) \\ &= -2\pi \vec{q} \cdot \vec{R} \end{aligned} \quad (2.11)$$

où $\vec{q} = \frac{\gamma\delta}{2\pi}\vec{g}$ et $\vec{R} = \vec{r}' - \vec{r}$

Dans les séquences utilisées sur l'imageur, un stockage de l'aimantation selon $\vec{z}$ durant le temps d'observation t est pratiqué, ce qui se fait en séparant le pulse π en deux pulses $\pi/2$ (Figure 2.6). Ce stockage en $\vec{z}$ permet de rendre l'aimantation non réactive à la relaxation T_2 durant une partie de t_Δ , et donc de pouvoir augmenter les temps d'observation.

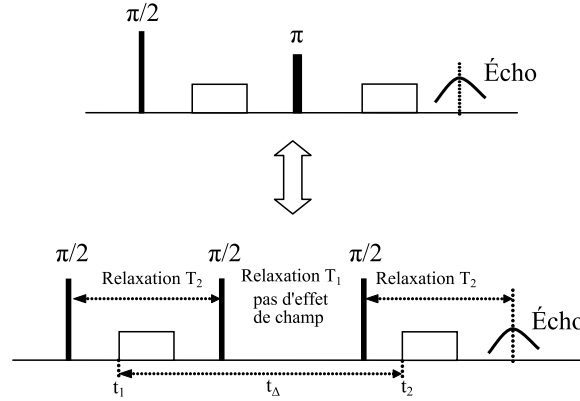


FIGURE 2.6 – Le passage de la séquence simple à la séquence avec stockage en $\vec{z}$ se fait en séparant le pulse π en deux pulses $\pi/2$, ce qui permet de ne pas accumuler de déphasages dans le plan transverse, donc de pouvoir utiliser des temps d'observation longs.

In fine, le déphasage de l'aimantation des spins durant t_Δ reste le même (Équation 2.11), et l'on peut définir le signal comme fonction de $\phi_{(\vec{R}, t_\Delta)}$ ou de $\vec{q}$ intégrés sur le volume de mesure (Kimmich, 1997, Cotts *et al.*, 1989) (cf. Paragraphe 2.1.1) :

$$E(\vec{q}, t_\Delta) = \langle \exp(i\phi_{(\vec{R}, t_\Delta)}) \rangle = \langle \exp(-2\pi i \vec{q} \cdot \vec{R}) \rangle \quad (2.12)$$

où, $\vec{R} = \vec{r}' - \vec{r}$, $\vec{r}$ la position à $t = t_1$ du spin considéré et $\vec{r}'$ sa position à $t = t_2$, $\langle \rangle$ est la moyenne sur le volume de mesure.

L'équation de Bloch (Équation 2.5) ne prend en compte ni l'influence de la diffusion, ni l'influence de l'advection sur l'évolution de l'aimantation au cours du temps. Torrey (1956) puis Stejskal et Tanner (1965) généralisent l'équation de Bloch dans le cas d'un système de spins subissant une diffusion moléculaire (de coefficient D) et une advection par un champ de vitesse $\vec{v}$:

$$\left(\frac{\partial \vec{M}}{\partial t}\right) = \gamma \vec{M} \wedge \vec{B}_0 - \frac{\vec{M}_x \vec{x} + \vec{M}_y \vec{y}}{T_2} - \frac{\vec{M}_z - \vec{M}_0}{T_1} \vec{z} + D \Delta \vec{M} - \vec{M}(\vec{\nabla} \cdot \vec{v}) - (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{M} \quad (2.13)$$

La résolution de cette équation de Bloch-Torrey-Stejskal dans le cas général (mouvement advectif et diffusif) pour le cas d'une séquence telle que celle présentée Figure 2.5, montre que l'on peut relier le signal RMN $E(\vec{q}, t_\Delta)$ dans l'Équation 2.12 au propagateur des déplacements $P(\vec{R}, t)$ par la relation 2.14, dont la démonstration complète peut-être trouvée dans la thèse de Javelot (1994).

$$E(\vec{q}, t_\Delta) = \int P(\vec{R}, t_\Delta) \exp[i2\pi\vec{q}\cdot\vec{R}] d\vec{R} \exp[-t/T_{(1,2)}] \quad (2.14)$$

Dans cette équation, le propagateur est la densité de probabilité du déplacement $\vec{R}$. De plus, $-t/T_{(1,2)} = -\tau/T_2 + \ln(1 - \exp(-\Delta'/T_1)(1 - \exp(-\tau/T_2)))$, τ et Δ' sont définis au Chapitre 3, Paragraphe 3.2. La décroissance exponentielle en $[-t/T_{(1,2)}]$ montre l'intérêt d'effectuer un stockage en $\vec{z}$, mais explique aussi l'impossibilité de mesurer les signaux RMN pour des temps d'observation trop grands.

Le propagateur des déplacements $P(\vec{R}, t)$ est la transformée de Fourier inverse du signal RMN. Ce propagateur $P(\vec{R}, t_\Delta)$ correspond à la distribution des déplacements, et plus précisément à la densité de probabilité qu'un spin à la position $\vec{r}$ au temps t_1 arrive à la position $\vec{r}'$ au temps t_2 .

Il a de plus été montré que, dans le cas où le propagateur est gaussien, la relation entre le signal RMN $E(\vec{q}, t_\Delta)$ et le coefficient de dispersion D est la suivante (Carr et Purcell, 1954, Stejskal et Tanner, 1965) :

$$E(\vec{q}, t_\Delta) = \exp(-\gamma^2 \delta^2 \bar{g}^2 D t_\Delta) \quad (2.15)$$

la transformée de Fourier analytique du signal RMN (Équation 2.14) est alors connue, et le propagateur s'écrit sous la forme (Carr et Purcell, 1954, Price, 1997) :

$$P(\vec{R}, t_\Delta) = (4\pi D t_\Delta)^{-3/2} \exp\left(-\frac{\vec{R}^2}{4D t_\Delta}\right) \quad (2.16)$$

La pente de $\ln(E(\vec{q}, t_\Delta))$ exprimé en fonction de $\bar{q}^2 t_\Delta = \gamma^2 \delta^2 \bar{g}^2 t_\Delta$ est égale au coefficient de dispersion D . Dans le cas où il n'y a pas d'écoulement, le coefficient de dispersion mesuré correspond au coefficient de diffusion moléculaire D_m .

2.3.2 Sélection de tranche

La sélection de tranche s'effectue en superposant une impulsion radio-fréquence longue de largeur spectrale $\Delta\omega$ centrée en ω_0 , d'amplitude B_{RF0} et de durée T , avec un gradient de champ magnétique d'amplitude g (Figure 2.7).

L'application d'un gradient de champ magnétique induit une variation spatiale de la fréquence de précession ω des spins suivant la relation $\omega = \gamma(gz + B_0)$. Le pulse radio-fréquence excite les spins dont la fréquence de précession ω appartient à la largeur spectrale du pulse $\Delta\omega$, grossièrement $\Delta\omega = \pm \frac{\gamma}{2\pi} B_{RF}$. Le pulse long a une largeur spectrale $\Delta\omega$ faible comparé à un pulse court (cf. partie 2.1.2). Ainsi, lors de l'application conjointe d'un gradient de champ magnétique g et d'un pulse radio-fréquence long B_{RF} , les spins excités sont sélectionnés en fonction de leur position dans l'échantillon ; et comme $\omega_0 = \gamma(gz_0 + B_0)$, la partie du milieu sélectionnée est centrée sur z_0 et de largeur $\Delta z = \frac{\Delta\omega}{\gamma g}$. Ce résultat a été démontré par Barberon (2001) à partir de l'équation de Bloch (Équation 2.5).

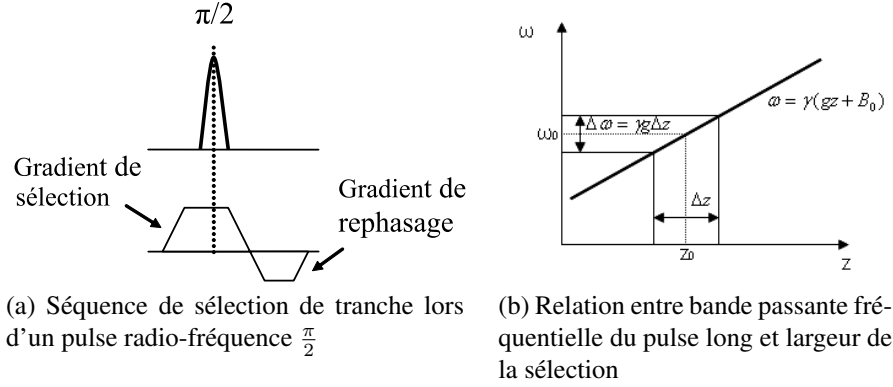


FIGURE 2.7 – Séquence de sélection de tranche lors d'un pulse radio-fréquence $\frac{\pi}{2}$. Le premier gradient, d'amplitude g , est sélectif. Tandis que le deuxième sert à rephaser les spins après le basculement de l'aimantation de $\pi/2$, il est appelé gradient de rephasage. La fenêtre spectrale du pulse radio-fréquence $\Delta\omega$ est centrée sur ω_0 . L'application d'un gradient de champ magnétique lors d'un pulse radio-fréquence change la fréquence de précession ω en suivant la relation $\omega = \gamma(gz + B_0)$. Si un gradient de champ magnétique d'amplitude g est appliqué durant le pulse radio-fréquence, alors $\omega_0 = \gamma(gz_0 + B_0)$, ce qui revient à sélectionner une tranche centrée en z_0 et de largeur $\Delta z = \frac{\Delta\omega}{\gamma g}$.

La forme de l'enveloppe du pulse radio-fréquence long détermine la forme de la sélection de tranche.

Nous avons vu comment mesure le propagateur (c-a-d la densité de probabilité des déplacements). La RMN permet aussi de mesurer la densité des positions des porteurs de spins.

2.3.3 Profil de densité des spins

La RMN permet de coder la position des spins dans l'échantillon à un instant fixé et de remonter à leur densité spatiale selon la direction de l'espace dans laquelle sont appliqués les gradients. La séquence qui mesure cette densité spatiale (Kimmich, 1997, Callaghan, 1991) est présentée Figure 2.8.

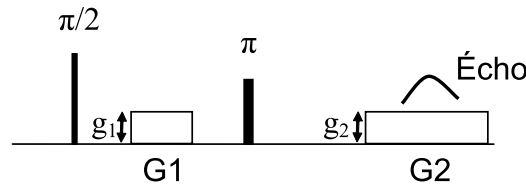


FIGURE 2.8 – Séquence RMN de mesure du profil.

Il a été montré (Kimmich, 1997, Callaghan, 1991) que le signal $S_Z(t)$ engendré par cette séquence est :

$$S_z(t) = \int \rho(z) \exp[-2\pi i z (k_{G2}(t) - k_{G1})] dz \quad (2.17)$$

où $k_{G1} = \frac{1}{2\pi} \int g_1(t)dt$ et $k_{G2} = \frac{1}{2\pi} \int g_2(t)dt$. $S_Z(t)$ permet de remonter à la densité spatiale des spins, c'est à dire d'eau, dans l'échantillon selon la direction z ($\rho(z)$) par une transformée de Fourier.

2.4 Conclusion

La RMN bas-champ repose sur les propriétés des spins des atomes d'hydrogène présents dans la molécule d'eau. Ces spins sont manipulés à l'aide d'impulsions radio-fréquence et de gradients de champ magnétiques. La RMN permet de sélectionner une partie de l'échantillon dans laquelle seront faites les mesures. Elle peut aussi renseigner sur la densité spatiale des spins, ce qui permettra d'obtenir la porosité et la saturation d'un échantillon, ainsi que la densité d'un traceur. Des séquences RMN spécifiques permettent de mesurer les distributions de déplacements et de vitesses dans les échantillons, ainsi que le coefficient de diffusion moléculaire. Les méthodes expérimentales utilisant la théorie des mesures RMN rappelée dans ce chapitre, seront présentées dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Méthodes expérimentales

Sommaire

3.1	Mesure de la porosité et de la saturation	60
3.1.1	Mesure du profil de porosité ou de saturation	60
3.1.2	Mesure de la valeur moyenne de la porosité ou de la saturation dans une tranche	61
3.2	Séquences RMN de vélocimétrie	62
3.3	Tranche utilisée	64
3.4	Traitement du signal RMN	64
3.5	Montages expérimentaux	65
3.5.1	Appareils RMN	65
3.5.2	Cellules d'écoulement	66
3.5.2.1	Pour l'appareil 2 MHz	66
3.5.2.2	Pour l'imageur 20 MHz	67
3.5.3	Milieux poreux et fluides	67
3.5.3.1	Milieux poreux	67
3.5.3.2	Fluides	69
3.5.4	Pompes	70
3.5.5	Co-injection eau-huile	71
3.5.6	Expérience d'injection de traceur dans un milieu poreux	72
3.6	Conclusion	73

Un certain nombre de méthodes expérimentales propres à la RMN conduisent à des informations aussi variées que les distributions de vitesses ou les profils de porosité et de saturation d'un échantillon. La théorie des mesures RMN a été rappelée au Chapitre 2. La mesure par RMN des distributions de vitesses se base sur des séquences codant le déplacement des molécules d'eau. La mesure de la densité spatiale des spins donne accès à la porosité ou à la saturation de l'échantillon. Les mesures par RMN permettent de plus d'étudier de manière classique (expériences de traceur) la dispersion en milieu poreux.

Les méthodes expérimentales déjà présentes sur les anciens appareils RMN ont dû être réadaptées pour un nouvel Imageur DRX 20 MHz récemment acquis par le département Pétophysique d'IF-PEN. Cet imageur permet, à la différence des autres appareils, de mesurer un signal RMN dans les trois directions de l'espace. Il possède par ailleurs un rapport signal sur bruit excellent et montre des échos de très bonne qualité. L'atténuation maximale du signal RMN dans des conditions optimales est de deux décades. Suite à ce changement d'appareil, il a fallu mettre en place un certain nombre de stratégies pour pouvoir effectuer les mesures RMN sur les nouvelles cellules, comme la sélection de tranche, ou la co-injection eau-huile.

Dans cette partie sont décrites l'ensemble des méthodes expérimentales utilisées ou mises en place durant la thèse dans le laboratoire RMN du département Pétophysique : la méthode de mesure de la porosité et de la saturation d'un échantillon, les séquences RMN de velocimétrie, et la tranche utilisée dont les réglages sont présentés dans l'Annexe B, le traitement du signal RMN, puis les montages expérimentaux utilisés (cellules, milieux poreux, fluides, pompes), l'installation de l'insaturation eau-huile par co-injection et enfin les expériences locales de traceur de Deutérium par suivi RMN.

3.1 Mesure de la porosité et de la saturation

La RMN permet de mesurer la porosité de manière locale de deux façons différentes : en mesurant un profil de porosité, ou en mesurant une valeur moyenne dans un volume connu.

3.1.1 Mesure du profil de porosité ou de saturation

La RMN permet de mesurer la densité spatiale des spins dans un échantillon (ou une tranche de l'échantillon) selon une direction (cf. Paragraphe 2.3.3 et Équation 2.17) (Fleury et Azancheev, 2006). Le rapport d'amplitude du profil d'un échantillon référence (mêmes dimensions que l'échantillon étudié mais contenant uniquement de l'eau) et du profil de l'échantillon saturé donne la porosité de l'échantillon (Figure 3.1).

Dans l'expérience présentée Figure 3.1, le témoin est un tube à fond plat de 24 mm de diamètre rempli d'eau sur une hauteur de 3.2 cm . L'échantillon qui lui est comparé est un empilement de grains de SiC de taille de grains 150 μm . Cet empilement a été effectué dans une cellule identique à celle du témoin, sur une hauteur de 3 cm . La mesure de la porosité montre que le milieu est faiblement tassé, sa porosité est d'environ 50 %. Ce faible tassement est dû au fait que l'échantillon a été empilé dans de l'eau. Les empilements en cellules sont moins poreux car empilés à sec et fortement tassés par vibration. On peut observer la présence d'un surnageant sur l'empilement, correspondant au pic de porosité de l'empilement.

La mesure de la densité spatiale des spins dans un échantillon permet aussi, en comparant le profil d'un échantillon saturé et le profil du même échantillon désaturé, d'obtenir la saturation de l'échantillon désaturé. Dans le cas d'un mélange d'eau avec un autre fluide non miscible, la même

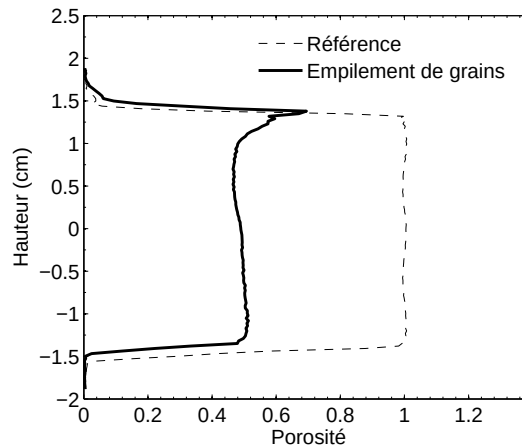


FIGURE 3.1 – Mesure de la porosité d’un empilement de grains de taille $150\ \mu m$. Le témoin correspond à la porosité d’un tube de $3\ cm$ de diamètre rempli d’une hauteur d’eau de $3\ cm$ (100 %). L’empilement de grains a les mêmes dimensions que le témoin et est préparé dans un tube identique. La porosité de l’empilement de grains est d’environ 50 %, le tassement gravitaire de l’empilement a entraîné la formation d’un surnageant que l’on observe sur le profil de porosité.

séquence RMN permet d’obtenir les saturations des deux fluides dans l’échantillon (Fleury et Azancheev, 2006).

3.1.2 Mesure de la valeur moyenne de la porosité ou de la saturation dans une tranche

La RMN permet aussi de mesurer une porosité moyenne dans un échantillon ou dans une tranche. La mesure de la porosité moyenne s’effectue à l’aide d’une séquence FID (Free Induction Decay) simple présentée Figure 3.2. Cette séquence, en basculant et focalisant les spins transversalement au champ $\vec{B}_0$ génère une aimantation macroscopique $\vec{M}$ des spins selon l’axe de $\vec{B}_{RF}$ (Farrar et Becker, 1971), et l’amplitude M du signal RMN mesuré à un temps donné est directement liée au nombre de porteurs de spins présents dans la tranche excitée.

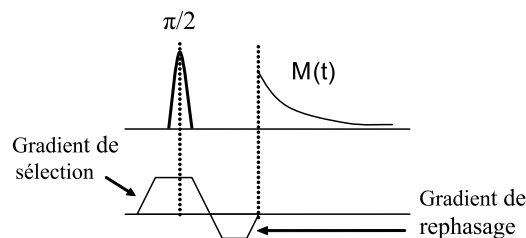


FIGURE 3.2 – Séquence FID avec pulse long sélectif : $M(t)$ est l’évolution de l’aimantation en fonction du temps.

En comparant les valeurs obtenues pour un milieu poreux saturé M et une valeur référence obtenue dans la même cellule mais sans milieu poreux M_{100} , on obtient directement la valeur moyenne de

la porosité dans la tranche considérée :

$$\phi = \frac{M}{M_{100}} \quad (3.1)$$

Cette méthode s'applique aussi à la mesure de la saturation locale moyenne, la valeur de référence utilisée étant la valeur obtenue pour le milieu poreux saturé.

3.2 Séquences RMN de vélocimétrie

La mesure de déplacement peut se faire avec différentes séquences. Les séquences développées dans le laboratoire RMN du département pétrophysique d'*IFP Energies nouvelles* sont des séquences à gradients bipolaires inversés. Ce sont des séquences de type APFG-SSE (Alternating Pulsed Field Gradients - Stimulated Spin Echo).

Deux séquences sont utilisées, la première étant la séquence de base (Figure 3.3), la seconde sélectionnant une tranche de l'échantillon (Figure 3.4).

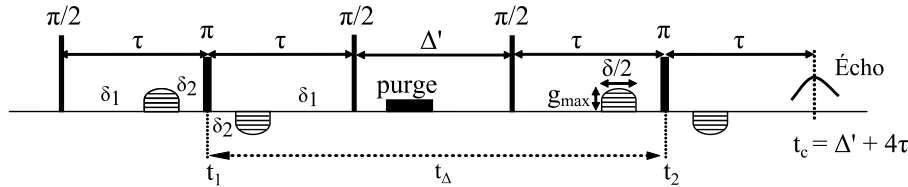


FIGURE 3.3 – Séquence APFG-SSE de mesure de déplacements sans sélection de tranche. Le déplacement est mesuré durant le temps d'observation $t_\Delta = \Delta' - 2\tau - \frac{1}{3}\delta - \delta_2$. Le gradient de purge est appliqué selon les directions x et y et a une durée 1 ms et une amplitude de 0.34 G cm^{-1} en x et 0.48 G cm^{-1} en y . Les pulses de gradient de codage, dont l'amplitude varie, sont appliqués dans une direction x ou y et ont une durée $\frac{\delta}{2}$ de 2 ms et une amplitude maximale g_{max} . τ est fixe et vaut 3000 ms.

La séquence 3.3 mesure le déplacement des spins durant le temps d'observation $t_\Delta = t_2 - t_1 = \Delta' - 2\tau - \frac{1}{3}\delta - \delta_2$, $-\frac{1}{3}\delta - \delta_2$ est la correction correspondant à la durée des pulses de gradient, cette correction est inférieure à 1 ms. Au cours de cette durée de déplacement l'aimantation macroscopique est stockée selon l'axe $\vec{z}$ et un gradient de purge est appliqué selon les directions $\vec{x}$ et $\vec{y}$, gradient de purge qui supprime les aimantations parasites. Cette séquence présente toutefois l'inconvénient d'agir sur toute la zone de l'échantillon présente dans la zone de mesure de l'appareil RMN. Ainsi, lors de mesure sur des échantillons dont la taille dépasse le volume de l'antenne RMN, on note la présence d'un écho parasite dû à l'excitation non maîtrisée des spins en bordure de la zone stable du champ $\vec{B}_0$. La séquence avec sélection de tranche (Figure 3.4) permet de sélectionner une zone du milieu étudié bien définie et de petite taille (8 mm).

La séquence 3.4 a été mise en place pour pouvoir observer et comparer les propagateurs locaux, dans une tranche. Les pulses longs $\pi/2$ appliqués à l'échantillon conjointement à des pulses de gradients excitent préférentiellement une partie des spins de l'échantillon (cf. Paragraphe 2.3.2). La sé-

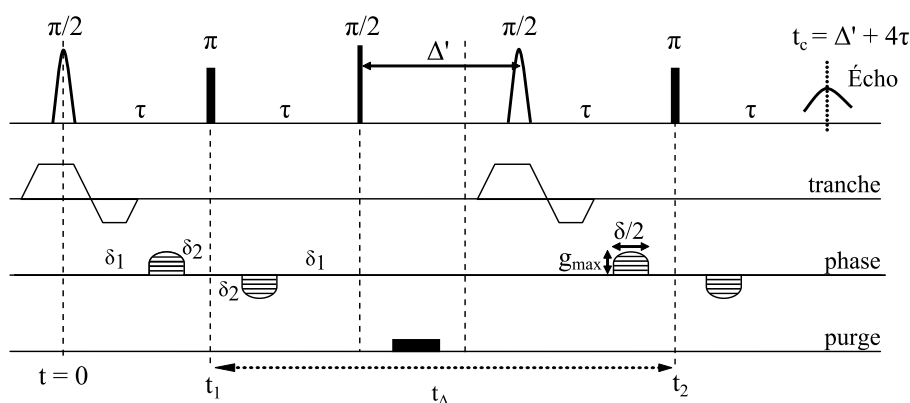


FIGURE 3.4 – Séquence APFG-SSE de mesure de déplacements avec sélection de tranche. Le déplacement est mesuré durant le temps d’observation $t_{\Delta} = \Delta' - 2\tau - \frac{1}{3}\delta - \delta_2$. La séquence est composée de l’enchaînement des pulses radio-fréquence $\pi/2$ et π , longs (parabole) et courts (rectangle fin noir). Le gradient de purge est appliqué selon les directions x et y et a une durée 1 ms et une amplitude de 0.34 G cm^{-1} en x et 0.48 G cm^{-1} en y . Les pulses de gradient de codage, dont l’amplitude varie, sont appliqués dans une direction x ou y et ont une durée $\frac{\delta}{2}$ de 2 ms et une amplitude maximale $g_{\max}$. τ est fixe et vaut 3000 ms . De nouveaux gradients appliqués durant certains pulses longs $\pi/2$ permettent de sélectionner une tranche de l’échantillon.

quence est composée de l’enchaînement des pulses radio-fréquence $\pi/2$ et π , longs (parabole) et courts (rectangle fin noir). Le gradient de purge est appliqué selon les directions x et y et a une durée 1 ms et une amplitude de 0.34 G cm^{-1} en x et 0.48 G cm^{-1} en y . Les pulses de gradient de codage, dont l’amplitude varie, sont appliqués dans une direction transverse choisie et ont une durée de 2 ms . Les gradients de sélection s’appliquent dans la direction z . Les valeurs des gradients de sélection sont présentées en Annexe B. Lors des expériences, seuls l’amplitude maximale $g_{\max}$ des pulses de gradients bipolaires et le temps d’observation $t_{\Delta} = t_2 - t_1$ varient. Cette séquence est répétée plusieurs fois pour des paramètres identiques pour accumuler le signal RMN.

Les pulses de gradients codant la position des molécules sont de type bipolaire (de même aire, de même forme mais de signes opposés) et ont une forme $G(t) = \frac{\|g\|}{2} \left[1 - \cos\left(\frac{4\pi}{\delta}t\right) \right]$, où $0 < t < \delta$. Cette forme permet d’éviter les effets de montée et de descente de gradient. Ils minimisent aussi les gradients de champs internes aux échantillons et les courants induits (Fleury et Azancheev, 2006).

La zone de l’échantillon qui est sélectionnée est contrôlée par le réglage de la fréquence de résonance de l’appareil RMN, la durée et l’amplitude des pulses radio-fréquence et des gradients, et la forme de l’impulsion radio-fréquence. La fréquence de résonance de l’appareil permet de régler la hauteur à laquelle la tranche va être sélectionnée (en $\vec{y}$). La forme de l’impulsion radio-fréquence est liée à la forme de la tranche sélectionnée par sa transformée de Fourier. Le reste des paramètres gère la largeur de la tranche.

Ces séquences ont été testées et validées, notamment par la mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l’eau dans l’eau (cf. Chapitre 5).

3.3 Tranche utilisée

La tranche RMN utilisée durant les différentes expériences est constante. L'impulsion radio-fréquence associée a pour forme un sinus cardinal à sept lobes. Cette forme permet d'obtenir une tranche la plus carrée possible, tout en ne présentant pas trop d'oscillations en dehors de la zone intéressante (Figure 3.5). Elle est constituée de 128 points répartis sur 500 *ms*.

Le profil de la sélection de tranche utilisée dans les expériences RMN de mesure du propagateur est présentée Figure 3.5.

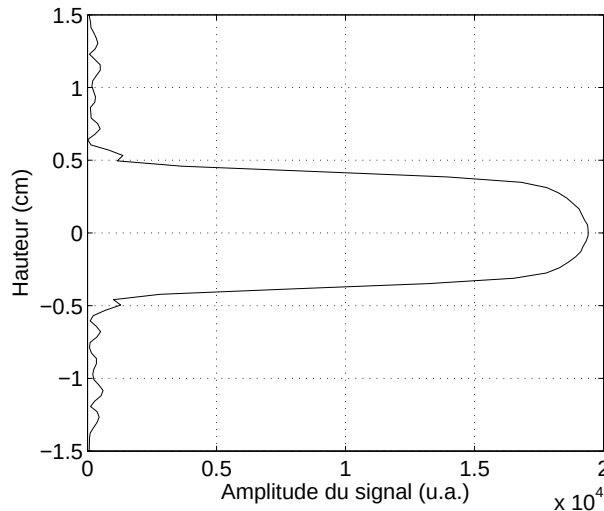


FIGURE 3.5 – Profil d'une sélection de tranche. La largeur de la tranche (hauteur) est définie par sa largeur à mi-hauteur, soit 8 *mm* pour cette tranche. L'amplitude du signal est exprimée en unités arbitraires.

La largeur de la tranche est définie par sa largeur à mi-hauteur, soit 8 *mm* dans le cas présent. Ce qui correspond à un gradient de sélection d'amplitude 4.8 G cm^{-1} et de durée 700 *ms*, et à un gradient de rephasage d'amplitude -5.6 G cm^{-1} et de durée 250 *ms*.

3.4 Traitement du signal RMN

Le traitement du signal RMN est effectué par deux logiciels développés au laboratoire RMN du département Pétraphysique d'*IFPEN* et présentés dans l'Annexe D. Il repose, pour l'obtention des propagateurs, sur la transformée de Fourier rapide (FFT) (Max, 1985, Freeman, 1997) et la transformée de Fourier Directe (DFT) présentées Annexe C, et pour l'étude des moments des déplacements des molécules d'eau sur l'analyse du signal.

Le signal RMN acquis dans les expériences de mesure de déplacement $E(q, t) = \langle \exp(iq\xi) \rangle$ (cf. Équation 2.12, $\langle \rangle$ est la moyenne sur les déplacements de chaque molécule) est un signal complexe (Cotts *et al.*, 1989). Kubo *et al.* (1991) montrent que le logarithme népérien du signal peut être décomposé en partie réelle et imaginaire :

$$\ln(\langle \exp(iq\xi) \rangle) = \ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle| + i\theta(q) \quad (3.2)$$

où $\theta(q)$ est la phase du signal.

Or d'après Kubo *et al.* (1991), en posant X_j le moment d'ordre j ,

$$\ln(\langle \exp(iq\xi) \rangle) = \sum_{j=1}^{\infty} \frac{(iq)^j}{j!} X_j \quad (3.3)$$

Le logarithme népérien du signal RMN peut donc s'exprimer sous la forme précédente :

$$\ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle| + i\theta(q) = \sum_{j=1}^{\infty} \frac{(iq)^j}{j!} X_j \quad (3.4)$$

La phase du signal RMN est asymétrique par rapport à $q = 0$, tandis que le logarithme népérien de l'amplitude du signal ($\ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle|$) est symétrique. Les trois premiers moments ont des significations physiques. Le premier moment correspond au déplacement moyen : $X_1 = \langle \xi \rangle$. Le second moment est la variance : $X_2 = \sigma^2 = \langle (\xi - \langle \xi \rangle)^2 \rangle$. Le moment d'ordre trois est un facteur d'asymétrie : $X_3 = \gamma^3 = \langle (\xi - \langle \xi \rangle)^3 \rangle$. Pour de faibles valeurs de gradient q , on considère que les moments d'ordres supérieurs à trois sont négligeables, le développement de Taylor s'écrit alors :

$$\ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle| + i\theta(q) = iqX_1 - \frac{1}{2}q^2X_2 - i\frac{q^3}{6}X_3 + o(q) \quad (3.5)$$

Soit,

$$\ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle| = -\frac{1}{2}\sigma^2q^2 \quad (3.6)$$

$$\theta(q) = \langle \xi \rangle q - \frac{1}{6}\gamma^3q^3 \quad (3.7)$$

Les moments sont obtenus en ajustant les courbes $\ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle| = f(q^2)$, $\theta(q) = f(q)$ et $\theta(q) - \langle \xi \rangle q = f(q^3)$ (Figure 3.6). En pratique, la gamme de gradient utilisée dépend du moment que l'on souhaite obtenir. Dans le cas σ^2 et $\langle \xi \rangle$, les gammes sont choisies pour que les points expérimentaux forment une droite, tandis que pour γ^3 , la gamme est choisie pour que les points expérimentaux forment une courbe cubique.

3.5 Montages expérimentaux

3.5.1 Appareils RMN

Deux appareils RMN sont utilisés :

- Un appareil RMN classique de 2 MHz d'Oxford Instrument a été utilisé pour de premières mesures, réalisées sur des empilements de grains déjà existants. Le diamètre de la zone de

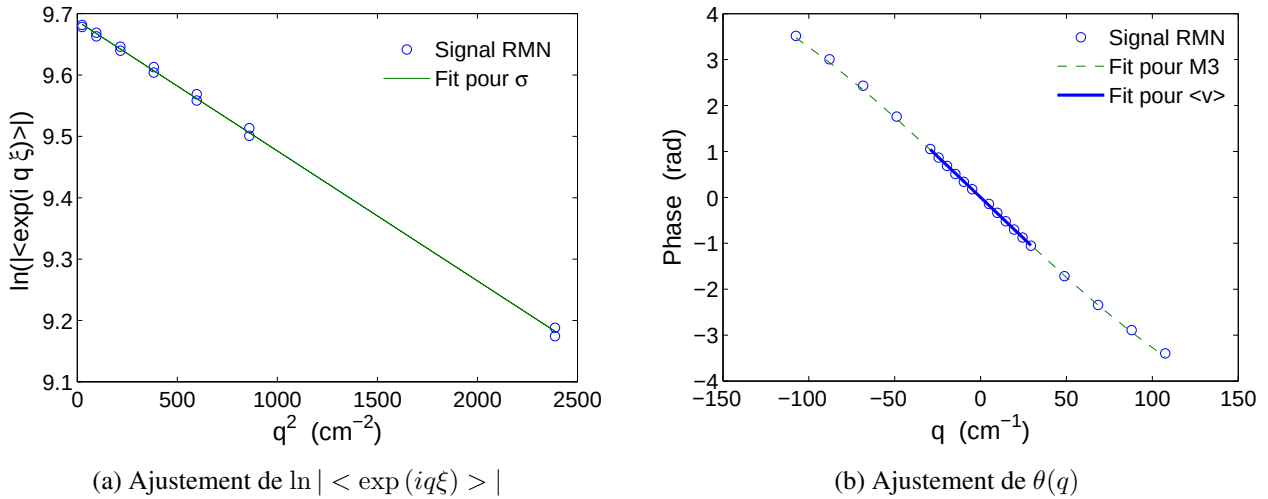


FIGURE 3.6 – Ajustement du signal RMN pour le calcul des moments : signal RMN d'un écoulement à débit 200 ml.h^{-1} dans un empilement de grains de SiC de taille $30 \mu\text{m}$ et pour un temps d'observation $t_\Delta = 200 \text{ ms}$; les moments sont obtenus en ajustant les courbes $\ln |\langle \exp(iq\xi) \rangle| = f(q^2)$, $\theta(q) = f(q)$ et $\theta(q) = f(q^3)$

mesure de cet appareil est de 50mm. Cet appareil ne peut mesurer les déplacements que dans la direction longitudinale.

- Un imageur DRX 20MHz d'Oxford Instrument, livré début janvier 2010, a nécessité une longue prise en main, ainsi qu'une adaptation des procédures de calibration, de réglages des paramètres et des séquences RMN. Le diamètre interne de la zone de mesure est de 30 mm . Cet appareil permet d'effectuer des mesures de propagateur dans les trois dimensions, offre un bon rapport signal sur bruit.

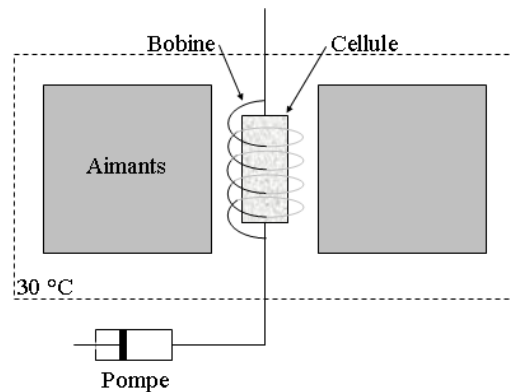
3.5.2 Cellules d'écoulement

Plusieurs types de cellules sont utilisées. Il existe par exemple des tubes à essais à fond plat de 30 mm de diamètre externe, dans lesquelles sont faites des expériences de réglages et la calibration des mesures de diffusion moléculaire. Les cellules d'écoulements spécifiques à l'appareil utilisé sont présentés, tout d'abord pour l'appareil RMN 2 MHz , puis pour l'imageur 20 MHz .

3.5.2.1 Pour l'appareil 2 MHz

Les cellules utilisées avec l'appareil RMN classique de 2 MHz sont des cylindres de 40 mm de diamètre pour 70 mm de long en incluant les embouts. La hauteur disponible au milieu poreux est de 50 mm . le montage expérimental et les cellules utilisées dans cet appareil sont présentés Figure 3.7. Les cellules sont non-traversantes et totalement comprises dans la zone de mesure, embouts d'injection compris (Figure 3.7a).

La totalité du milieu poreux est contenu dans la zone de mesure de l'appareil RMN 2 MHz .



(a) Montage expérimental



(b) Cellule d'écoulement.

FIGURE 3.7 – Montage expérimental et cellule d'écoulement pour l'appareil 2 MHz : les cellules utilisées dans le 2 MHz font 7 cm de longueur pour 40 mm de diamètre. Elles sont totalement contenues dans la zone de mesure de l'appareil déterminée par l'homogénéité du champ $\vec{B}_0$.

3.5.2.2 Pour l'imageur 20 MHz

Plusieurs cellules ont été développées pour répondre aux différents besoins expérimentaux, ces cellules sont toutes utilisées verticalement (Figure 3.8). L'appareil RMN 20 MHz est traversant (Figure 3.8a), ce qui permet d'étudier les propagateurs pour de longues cellules, ainsi que de déplacer la zone de mesure. De plus, le rapport signal sur bruit de cet appareil est cent fois plus élevé que le rapport signal sur bruit de l'appareil 2 MHz , ce qui permet de mesurer le signal RMN dans la tranche de 8 mm précédemment décrite (Paragraphe 3.3).

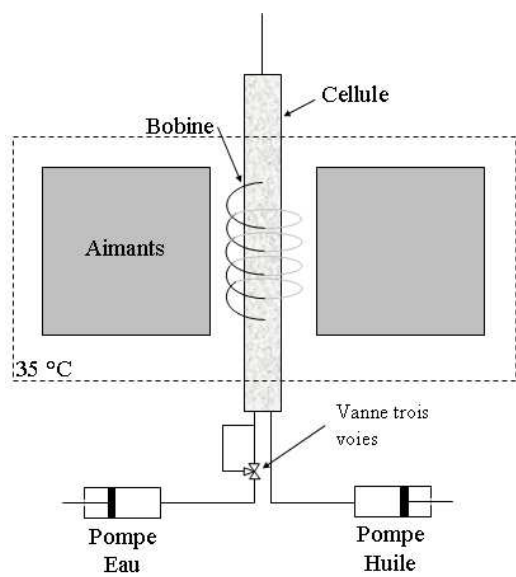
Des cellules traversantes de 27 cm de long ont été réalisées avec des possibilités de doubles injections, qui serviront pour la co-injection lors de l'étude en milieu diphasique (Figure 3.8b). Ces cellules ont un diamètre externe de 30 mm , leur diamètre interne est de 24.2 mm .

3.5.3 Milieux poreux et fluides

Les différentes expériences sont menées soit dans des empilements de grains (milieux poreux), soit en fluide seul (Bulk), et ce avec différents fluides.

3.5.3.1 Milieux poreux

Les milieux utilisés sont des empilements de grains de SiC (Carbure de Silicium) de granulométrie connue et anguleux, qui ont été caractérisés et utilisés par Fleury et Azanchev (2006), un empilement de grain de sable de Fontainebleau et un empilement de billes de verres.



(a) Montage expérimental traversant.



(b) Cellule d'écoulement à double injection.

FIGURE 3.8 – Montage expérimental et cellule d'écoulement pour l'imageur 20 MHz : Cellule d'écoulement à double injection. La cellule a un diamètre de 24 mm et de longueur 27 cm,

Empilement de grains de SiC Les photographies par microscopie électronique à balayage des grains de SiC, prises par P. Gueroult d'IFPEN, montrent une structure clairement anguleuse (Figure 3.9). L'empilement de ce type de grains engendre une tortuosité et des champs de vitesses très différents d'un empilement classique de grains sphériques comme les billes de verre.



FIGURE 3.9 – Photographie de SiC 150 μm par microscopie électronique à balayage. Photographie de P. Gueroult IFPEN.

Taille des grains (μm)	Porosité (%)	Perméabilités (Darcy)
8	49.4	0.028
18	42.9	0.094
30	40.1	0.290
50	40.4	-
80	38.8	2.37
110	37.7	5.40

TABLE 3.1 – Porosité des milieux poreux de 8, 18, 30, 50, 80 et 110 μm. La porosité diminue avec l'augmentation de la taille des grains (c-a-d taille de pore), au contraire de la perméabilité.

Les grains sont nettoyés de manière approfondie avant leur utilisation dans des mesures RMN. De

fait, les grains non nettoyés contiennent beaucoup de fines et d'éléments paramagnétiques qui compromettent les mesures RMN. La procédure de nettoyage des grains est longue et contient plusieurs étapes de lavage acide et de chauffage. La procédure complète dure deux mois. Ces milieux nettoyés étaient présents initialement dans le laboratoire.

On dispose de six milieux poreux déjà empilés pour l'appareil 2 MHz , chaque milieu est un empilement de grains de SiC de taille identique (8, 18, 30, 50, 80 et 110 μm). Ces milieux possèdent des porosités différentes, qui sont dues aux problèmes d'empilement des grains. Les très petites tailles de grains sont difficilement empilables, ce qui génère des porosités élevées. Alors que les grandes tailles de grains s'empilent facilement et se compactent bien par vibration, ce qui engendre une porosité plus faible (Table 3.1).

Un empilement dans une colonne de 27 cm de long et 24.2 mm de diamètre a été fait avec du SiC de taille 30 μm , afin d'étudier la dispersion loin de l'influence de la zone d'injection. La porosité moyenne mesurée par pesée est de 43 % (cf. Paragraphe 5.2). La différence observée avec l'empilement de SiC de taille équivalente dans la petite cellule (40 %) est due à des difficultés d'empilement dans la grande colonne. La petite cellule possède un système de serrage des embouts par vis qui permet de mieux empiler le milieux. Cette petite cellule a De plus un plus grand diamètre et une moins grande longueur ce qui facilite la compaction de l'empilement de grains.

Empilement grains de Sable de Fontainebleau Les grains de sable de Fontainebleau proviennent du CEA où ils sont utilisés pour des expériences de traceur classique en grande colonne (1 m de long). Ce sable est monodisperse, anguleux et de granulométrie moyenne de 80 μm (4 % des grains ont un diamètre inférieur à 63 μm et 8 % ont un diamètre supérieur à 100 μm). Ce sable a été empilé dans la colonne de 27 cm de long.

Empilement de billes de verres Pour les mesures de coefficient de diffusion moléculaire des fluides utilisés, des empilements de billes de verres de 5 mm de diamètre sont utilisés. Les billes servent à empêcher la formation de cellules de convection lors de la mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau dans l'eau en bulk, sans agir de manière significative sur ce coefficient. Ces empilements sont de faible hauteur (environ 1 cm) pour obtenir une température homogène. Ils sont réalisés dans des tubes RMN à fond plat d'environ 30 mm de diamètre.

3.5.3.2 Fluides

Plusieurs fluides sont utilisés pour étudier la dispersion :

- De l'eau distillée dans les empilements de grains,
- De l'eau distillée additionnée de sulfate de cuivre ($CuSO_4$) en absence de milieu poreux,
- Un mélange de saumure $NaCl$ (à 30 g/l) et de glycérol (respectivement 36% – 64%),
- Une saumure $NaCl$ à 150 g/l ,
- Du Deutérium à 99,1 % de pureté.

L'eau distillée présentant un temps de relaxation transversal T_2 de 3 secondes, pour accélérer les mesures RMN en bulk, on lui ajoute du $CuSO_4$. Le $CuSO_4$ permet de diminuer le temps de relaxation T_2 , sans altérer les mesures de déplacements. Dans le cas d'un écoulement ou de présence d'un milieu poreux comme les empilements de SiC, l'eau distillée est utilisée seule. En effet, le T_2 diminue dans ces conditions et le $CuSO_4$ risque de se déposer et de contaminer le milieu. Le coefficient de diffusion moléculaire de l'eau mesuré à $33.8^\circ C$ (la température dans la sonde RMN lors de la mesure) est de $2.83 \cdot 10^{-9} m^2 s^{-1}$ (Holtz *et al.*, 2000). A la température du laboratoire, $25^\circ C$, la viscosité cinématique de l'eau est $\nu = 2.6 \cdot 10^{-5} m^2 s^{-1}$, sa masse volumique $\rho = 1000 kg/m^3$, sa viscosité dynamique $\mu = 9.1 \cdot 10^{-4} Pa s^{-1}$, et $D_m = 2.3 \cdot 10^{-9} m^2 s^{-1}$.

Le mélange saumure-glycérol (64% glycerol, 36% eau) est utilisé pour diminuer l'impact de la diffusion moléculaire sur les propagateurs RMN. La mesure du coefficient de diffusion moléculaire à $34.7^\circ C$ (la température dans la sonde RMN lors de la mesure) donne un coefficient de diffusion moléculaire de $2.00 \cdot 10^{-10} m^2 s^{-1}$. A $25^\circ C$, la viscosité cinématique du mélange est $\nu = 1.2 \cdot 10^{-4} m^2 s^{-1}$, sa masse volumique $\rho = 1166 kg/m^3$ et sa viscosité dynamique $\mu = 2.25 \cdot 10^{-2} Pa s^{-1}$ (Dorsey, 1940).

La saumure $NaCl$ à $150 g/l$ est utilisée pour les expériences de traceur afin d'égaliser les densités avec le Deutérium pur. La densité de cette saumure est de 1.135 à $30^\circ C$.

Le Déutérium pur à 99.1% est un fluide utilisé comme traceur dans le cas des expériences de traceur. À $25^\circ C$ son coefficient de diffusion moléculaire est légèrement plus faible que celui de l'eau et vaut $1.87 \cdot 10^{-9} m^2 s^{-1}$, sa viscosité dynamique est de $1.25 \cdot 10^{-3} Pa s^{-1}$ et sa masse volumique de $1104.5 kg m^{-3}$. Sa densité à $30^\circ C$ est de 1.105 .

Deux types de fluides sont utilisés en coinjection avec de l'eau distillée pour désaturer le milieu poreux :

- De l'huile Fluorinert $FC - 43$,
- De l'huile Fluorinert $FC - 72$.

Ces huiles Fluorinert n'engendrent pas de signal RMN car ne contiennent pas d'hydrogènes, et sont immiscibles avec l'eau. Les caractéristiques techniques de ces huiles sont données par le fabricant. Elles sont présentées en Annexe A.

La tension interfaciale entre ces huiles et l'eau et ces huiles et la saumure ont été mesurées par la méthode de l'anneau et sont, à $30^\circ C$, de $47 mN.m^{-1}$ pour le mélange eau-huile $FC - 43$; $43 mN.m^{-1}$ pour le mélange saumure-huile $FC - 43$; et $43 mN.m^{-1}$ pour le mélange eau-huile $FC - 72$.

3.5.4 Pompes

Trois pompes à flux continu ont été utilisées pour l'injection de fluide :

- une multi-pompe ISCO à deux pistons,
- une pompe QUIZIX,
- une pompe PHARMACIA.

La multi-pompe Isco possède deux pistons et un contrôle de débit de type vanne à air. Ce type de pompe permet un contrôle fin des débits et assure la continuité du débit lors des changements de piston sans saut de pression, ce qui est essentiel pour les expériences RMN de mesure de déplacement. Les débits accessibles varient en fonction des fluides utilisés et de la pression de consigne qui est fixée à 10 *bar* pour protéger les montages expérimentaux :

- Pour l'eau, additionnée ou non de $CuSO_4$, le débit maximal autorisé est de 4000 $ml.h^{-1}$.
- Pour le mélange glycérol-eau, la consigne de pression fixe le débit maximal à 1000 $ml.h^{-1}$.

Une calibration de la pompe avec de l'eau distillée a été faite pour différents débits. L'erreur moyenne entre les débits montrés par la pompe et les débits obtenus par la calibration est de 0.52 %.

La pompe Quizix est plus compacte que la précédente mais remplit le même office avec les mêmes propriétés. Elle permet une injection continue et stable, sans sauts de pressions.

La pompe Pharmacia a servi à injecter le fluide inerte servant à désaturer le milieu poreux.

Des pompes ISCO monocylindre de 500 *ml* ont aussi été utilisées de manière temporaire.

3.5.5 Co-injection eau-huile

La méthode de mise en saturation partielle de l'échantillon est une méthode de "steady-state". Cette méthode est tirée des expériences de mesure des perméabilités relatives dans un milieu poreux par méthode directe. Les deux fluides sont injectés en entrée de colonne avec des débits constants. Lorsque l'écoulement est stabilisé, la saturation de l'échantillon ne varie plus (Lombard, 1992, Avraam et Payatakes, 1995), les deux fluides se déplacent de manière simultanée et leurs débits respectifs sont identiques en entrée et sortie de colonne. Le régime d'écoulement est stationnaire.

Tallakstad *et al.* (2009) montrent que dans le cas d'une co-injection eau - air dans une cellule de Hele-Shaw remplie de billes de verre, l'air ne forme pas une phase continue et se déplace sous forme de bulles lorsque le régime permanent est atteint. Avraam et Payatakes (1995) étudient la co-injection eau - huile dans un micro-modèle 2D représentatif d'un sable en fonction de différents paramètres représentatifs d'un écoulement insaturé : le nombre capillaire $Ca = \frac{v\mu}{\sigma}$ (v la vitesse moyenne de l'écoulement, μ la viscosité dynamique et σ la tension interfaciale), le rapport des débits huile-eau q_o/q_w , la saturation S_w , le rapport de viscosité κ . Ils montrent que dans la majorité des cas étudiés, la phase mouillante (eau) est continue. La phase non mouillante (huile) se répartit de différentes façons suivant les valeurs des paramètres. Avraam et Payatakes (1995) observent que la phase non-mouillante est continue uniquement pour des nombres capillaires élevés (entre $5 \cdot 10^{-6}$ et 10^{-5}), ce régime d'écoulement étant favorisé par de faibles saturations en huile et de forts rapports de viscosité. Dans la plupart des cas l'huile circule sous forme discontinue (gouttes ou ganglions). Avraam et Payatakes (1995) montrent que le passage d'un régime d'écoulement à un autre dépend du nombre capillaire, du rapport de viscosité et de la saturation. Dans le cas d'un écoulement en phase continue pour les deux fluides, Avraam et Payatakes (1995) observent la formation de ganglions ou de gouttes d'huile à l'interface entre l'eau et l'huile. Toutefois, d'après Avraam et Payatakes (1995), la répartition de la phase non-mouillante lorsqu'elle est connectée est relativement stable. Ce type d'observations

en milieu poreux réel 3D ne sont, pour l'instant, pas documentées dans la littérature.

3.5.6 Expérience d'injection de traceur dans un milieu poreux

Les expériences de traceur en milieu poreux mises en place durant la thèse se basent sur les propriétés du Deutérium, eau lourde (D_2O). Le deutérium est miscible à l'eau et n'émet pas de signal RMN lorsqu'il est soumis à la RMN du proton. Sa présence dans de l'eau (H_2O) provoque une perte de signal RMN proportionnelle à la concentration. On peut ainsi mesurer la quantité de Deutérium présent dans la tranche de milieu poreux étudiée et ce au cours du temps, pour cela il suffit de comparer le signal lorsqu'il n'y a pas de Deutérium au signal avec Deutérium. Pohlmeier *et al.* (2009) ont montré la faisabilité de telles mesures en étudiant la dispersion d'un nuage de Deutérium dans un sable hétérogène par imagerie RMN. Klemm *et al.* (2002) utilisent la différence de signal RMN entre Deutérium et eau pour étudier la diffusion de l'eau dans un micro-modèle poreux 2D par imagerie RMN. Berne *et al.* (2009) effectuent les mêmes mesures de diffusion dans un échantillon de roche carbonaté. Ce type de méthode est couramment utilisée au laboratoire IFPEN. Dans le cas d'expérience de traceur classique, la mesure de l'amplitude maximale du signal RMN dans la tranche considérée est effectuée à l'aide de la séquence d'écho de spin avec sélection de tranche présentée au Paragraphe 3.1.2 et permet d'obtenir la concentration en Deutérium (en %) dans la tranche.

Un bouchon de Deutérium correspondant à environ 10 % du volume de pore est injecté en entrée de colonne, l'amplitude du signal RMN est ensuite enregistrée en fonction du temps à un endroit de la colonne, ce qui permet d'obtenir une courbe de percée locale de Deutérium. Le montage expérimental utilisé (Figure 3.10) doit permettre d'injecter le traceur sans arrêter l'une ou l'autre des pompes ce qui provoquerait une modification de la saturation. L'échantillon de milieu poreux est saturé et soumis à un écoulement d'eau à débit constant. Une dérivation contient un bouchon de Deutérium. Le remplissage de cette dérivation se fait de manière indépendante. Une fois remplie, l'injection d'eau est transférée vers la dérivation contenant le traceur par un jeu de vannes, ce qui pousse le Deutérium dans la colonne. La distance entre le début du bouchon de Deutérium et l'entrée de la colonne a été minimisée afin d'éviter une dispersion initiale du traceur. L'enregistrement du signal RMN commence lors de l'injection du traceur.

Le résultat d'une expérience de traceur par RMN est l'évolution au cours du temps de l'amplitude maximale du signal RMN (A_S). La Figure 3.11 montre le résultat brute d'une expérience de traceur au Deutérium pour un débit de 100 ml.h^{-1} ($\diamond$). La référence à 100 % (A_{S100}) d'eau correspond à la ligne en tirets. On nomme cette ligne, ligne de base. La ligne de base ne subit que de faibles variations au cours du temps et se retrouve après le passage du traceur. Le signal de référence à 100 % (A_{S0}) de Deutérium (ou 0 % d'eau) est nul. On peut donc remonter facilement à la concentration de Deutérium dans la tranche (C_{D_2O} en %) à chaque instant :

$$C_{D_2O} = \frac{A_{S100} - A_S}{A_{S100}} \quad (3.8)$$

En expérience de traceur classique, l'évolution de la concentration n'est pas exprimée en fonction

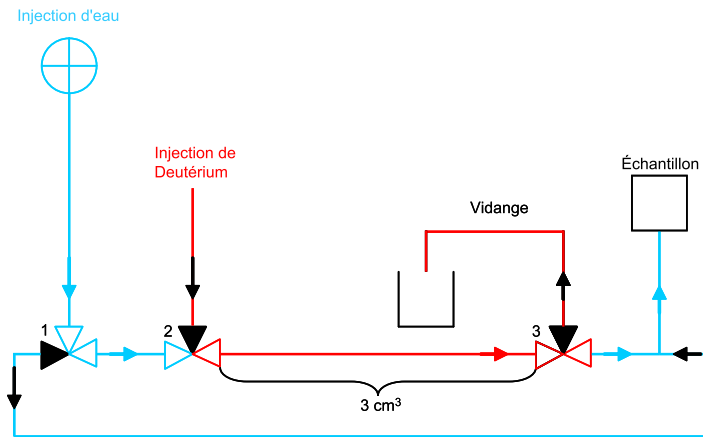


FIGURE 3.10 – Schématisation du montage expérimental d'injection d'un bouchon de deutérium (D_2O) dans le milieu poreux.

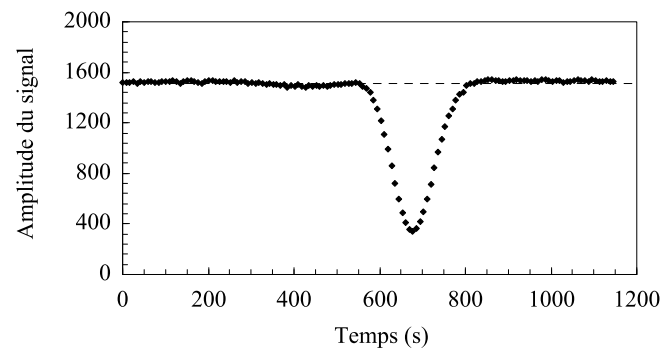


FIGURE 3.11 – Résultats bruts de l'expérience de traceur dans un empilement long de grains de SiC pour un débit de 100 ml.h^{-1} . $\diamond$ le signal RMN ; — — la ligne de base correspondant au signal 100 % d'eau.

du temps mais en fonction du volume de fluide injecté normalisé par le volume de pore. Le volume de fluide injecté V est obtenu à l'aide du débit d'injection et du temps. Le volume de pore est normalement le volume poreux sur toute la colonne, mais ici, la courbe de concentration est mesurée de façon locale (dans une tranche et non en sortie de colonne). Le volume de pore V_p utilisé dans la suite du document est le volume poreux entre l'entrée de la colonne et la zone de mesure ; ceci permet de comparer les différents débits et expériences. La Figure 3.12 montre les résultats traités correspondants aux résultats bruts de la Figure 3.11.

La validation des expériences de traceur est présentée dans le Chapitre 5 dans le Paragraphe 5.5.

3.6 Conclusion

Les méthodes expérimentales utilisées sont nombreuses. Les méthodes RMN permettent d'obtenir toutes les informations souhaitées de manière locale (dans une tranche choisie de l'échantillon) comme la porosité, la saturation le long de l'échantillon, la dispersion des molécules d'eau au cours

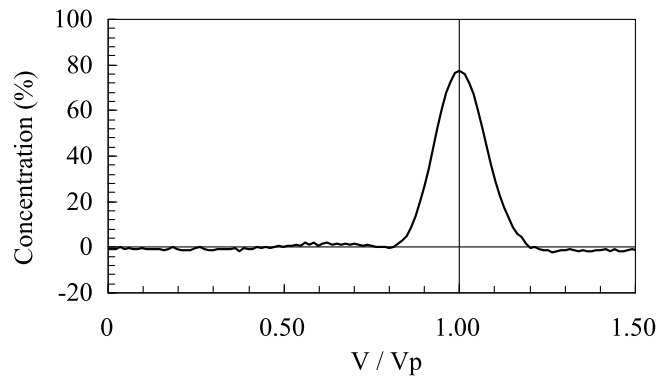


FIGURE 3.12 – Variation de la concentration de Deutérium (en %) dans la tranche au cours de l'expérience : expérience de traceur dans un empilement long de grains de SiC pour un débit de 100 ml.h^{-1} .

du temps par l'intermédiaire des propagateurs de déplacement et des moments, la concentration en traceur Deutérium au cours du temps à condition d'ajuster les densités ; et ce, que ce soit en écoulement monophasique ou diphasique. Ces informations sont obtenues pour des empilements de grains anguleux (SiC ou un sable de Fontainebleau) homogènes et constitués d'une seule taille de grains. Les caractéristiques des grains et des empilements sont connues.

Les montages expérimentaux : fluides, milieux et pompes, injection diphasique, injection de traceur, sont nombreux. Ils permettent d'étudier les écoulements monophasiques et diphasiques de manière classique (dispersion d'un traceur), ou du point de vue de la RMN (dispersion locale des molécules d'eau). La validation de ces méthodes expérimentales est décrite dans la Partie II au Chapitre 5. Les résultats expérimentaux obtenus sont décrits dans la Partie II aux Chapitres 6 et 7.

Les bases théoriques et les outils expérimentaux ayant été présentés, le chapitre suivant sera consacré à l'état de l'art de la simulation par approche Lagrangienne de la dispersion en modèles de réseau de pore (Chapitre 4).

Chapitre 4

Modèles de réseau de pores

Sommaire

4.1	Méthodes de transport dans les réseaux de pores	76
4.1.1	Méthodes semi-analytiques	77
4.1.1.1	Transport dans les canaux	77
4.1.1.2	Transport dans les nœuds	77
4.1.2	Méthodes analytiques	81
4.2	Comparaison entre réseau de pore et RMN	82
4.3	Conclusion	84

Le réseau de pores est une simplification du milieu poreux. Il est constitué d'une succession de nœuds joints entre eux par des canaux. Cette simplification structurale des milieux poreux, permet de simplifier très fortement les équations d'écoulements de fluides et de transports, et donc de diminuer les temps de calcul et de pouvoir étudier les phénomènes sur de grands milieux. Les réseaux de pores sont utilisés pour étudier les perméabilités relatives (Laroche et Vizika, 2005, Arns *et al.*, 2004) et électriques des milieux poreux (Bauer *et al.*, 2011), ainsi que pour effectuer des études de dispersion par marche aléatoire (Sahimi *et al.*, 1986a, Feyen *et al.*, 1998, Delay *et al.*, 2005, Rhodes et Blunt, 2006, Boek et Venturoli, 2010).

La plupart des réseaux présentés dans la littérature sont réguliers ou obtenus de manière stochastique (générés à partir des caractéristiques d'un milieu poreux réel). Ces modèles, de par leur simplicité, ont été étudiés de manière approfondie par une pléiade de scientifiques (Sahimi *et al.*, 1986b, Tessier *et al.*, 1997, Zhao *et al.*, 2010) et sont appliqués à l'ensemble des milieux poreux homogènes et hétérogènes. On trouve ainsi des réseaux de pores bidimensionnels et tridimensionnels ; réguliers de type carré, rectangulaire, losange (Figure 4.1a) ; irréguliers, avec ou sans cul-de-sac ; *etc.* Plus récemment, avec l'avènement de méthodes avancées d'imagerie de l'espace poral, de nouveaux types de réseaux de pores extraits directement des images 3D du milieu poreux obtenues par micro-scanner ont vu le jour, ce sont les réseaux déterministes (Figure 4.1b). Ils peuvent être extraits de toute sorte de milieux poreux : empilements de grains, de sphères, roches consolidées comme les grès ou les carbonates, *etc.*

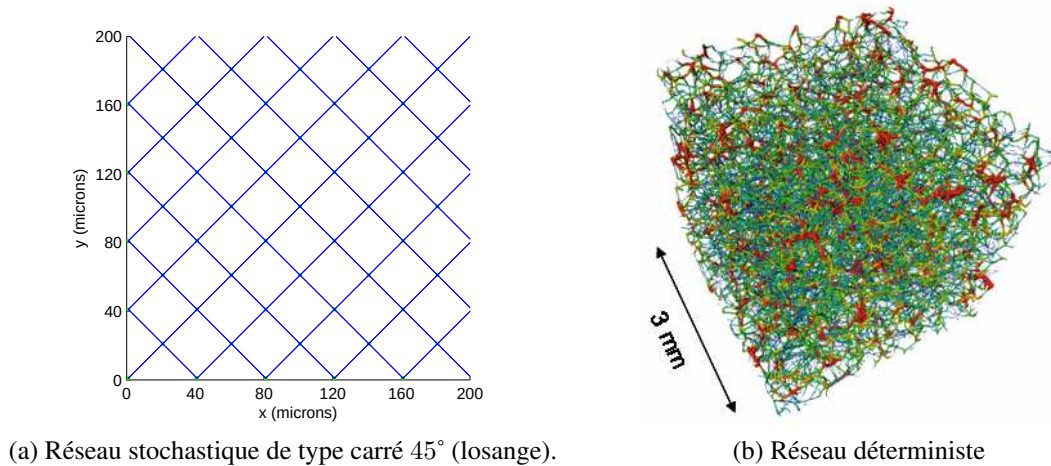


FIGURE 4.1 – Exemple de structure de réseau stochastique et déterministe.

Les modèles de réseaux de pores rassemblent les réseaux de pores et les équations qui leurs sont adjointes. Dans le cadre de la thèse, nous nous intéressons à l'étude Lagrangienne de la dispersion d'un traceur passif en utilisant un modèle de réseau de pore. Ceci permet d'approcher rapidement et simplement la dispersion dans le milieu poreux réel. Dans ce cadre, les particules sont nommées marcheurs et se déplacent suivant différentes lois de transport. On distingue deux zones du réseau de pore ayant des lois de transport différentes : les canaux, et les nœuds. Les lois de transport dans ces zones sont multiples et seront présentées dans la première partie du chapitre.

L'objectif de ces simulations de transport en réseau de pore, dans le cadre de la thèse, est de comparer les propagateurs numériques issus de marche aléatoire dans un réseau de pore aux propagateurs obtenus par expérimentation RMN directement dans le milieu poreux, notamment dans le cas d'écoulement diphasiques. Le modèle de réseau de pore présente un réel intérêt pour l'étude des écoulements diphasiques : la structure des canaux et des pores permet une mise en place rapide et simple des phases. La simulation du transport en réseau de pore doit aussi permettre d'étudier la dispersion pour de grand temps d'observation inaccessibles à la RMN. La dernière partie de chapitre présente les comparaisons entre ces deux types de résultats présents dans la littérature.

4.1 Méthodes de transport dans les réseaux de pores

Les mécanismes de transport utilisés pour l'étude de la dispersion au sein d'un réseau de pores sont multiples. Les simulations de transport en réseau de pore sont, la plupart du temps, des études Lagrangiennes (les marcheurs sont suivis un à un). Il existe différentes méthodes de transport dans des réseaux de pores, celle-ci sont de deux sortes : semi-analytiques et analytiques. Ces différentes méthodes de transport sont décrites dans cette section.

4.1.1 Méthodes semi-analytiques

Dans le cas des méthodes semi-analytiques, le champ de vitesse dans le réseau n'est que partiellement connu, et on distingue deux types de mécanismes de transport : dans les canaux, et dans les nœuds. Dans les canaux, le transport est basé sur la vitesse moyenne ou le champ de vitesse complet. Dans les nœuds, le transport est stochastique (brassage complet ou non ; répartition au prorata du débit ou de la surface) ou semi-analytique (répartition par lignes de courant). Les différents types de transport dans les canaux et les nœuds sont présentés ci-dessous.

4.1.1.1 Transport dans les canaux

Brassage transverse total Dans le cas d'un brassage transverse total, c-a-d lorsque la diffusion moléculaire est suffisamment importante par rapport à l'advection, la concentration est homogène sur toute la largeur du canal (Sorbie et Clifford, 1991). Il n'est alors plus intéressant de calculer le champ de vitesse local puisque la dispersion transversale a déjà eu lieu. Le transport des marcheurs se fait à la vitesse moyenne du fluide dans le canal, et la dispersion est longitudinale (ce qui s'apparente à la dispersion de Taylor décrite au Paragraphe 1.1.2.3). L'écoulement vérifie la loi de Poiseuille, ce qui permet d'obtenir simplement la répartition des vitesses dans les canaux du réseau à partir des pressions à l'entrée et à la sortie des canaux.

Picard et Frey (2007) utilisent une méthode semi-analytique pour simuler le transport dans un réseau de pore tiré de la structure d'un grès de Berea. Le transport se fait à vitesse moyenne constante dans les canaux. L'auteur montre que l'hypothèse permettant de considérer un transport à vitesse moyenne dans les canaux porte sur le nombre de Peclet (Pe). Le nombre de Peclet local doit être faible (c-a-d les processus de transports sont dominés par la diffusion).

Résolution analytique La résolution du champ de vitesse est analytique, la vitesse du fluide est connue en tout point du canal. Les marcheurs suivent les lignes de courant et peuvent "sauter" de l'une à l'autre de manière aléatoire (suivant une répartition de probabilité de saut) pour simuler la diffusion moléculaire transverse. Cette description du champ de vitesse a pour avantage d'être plus proche de la réalité physique et permet d'étudier la dispersion transversale dans les canaux et son impact sur la dispersion à l'échelle globale. Toutefois, cette méthode induit des temps de calculs accrus, et donc, pose des problèmes pour des systèmes de grande taille.

Bruderer et Bernabe (2001) utilisent ce type de transport dans les canaux pour étudier l'effet des hétérogénéités du champ de vitesse sur la transition entre régime pré-asymptotique et régime asymptotique (cf. Paragraphe 1.3). Le même modèle a été mis en œuvre par Sahimi *et al.* (1986a,b) pour simuler le transport de traceur en milieu poreux saturé et insaturé.

4.1.1.2 Transport dans les nœuds

Le problème du transport au niveau des nœuds est essentiel car à l'origine de la dispersion des marcheurs dans le réseau. Deux principaux types de transport dans les nœuds sont couramment utili-

sés, le troisième étant une résolution analytique du transport pour l'instant uniquement utilisé en 2D et pour des intersections particulières :

- Le mélange parfait ("perfect mixing"), $Pe \ll 10^{-1}$
- La répartition par lignes de courant ("streamline routing"), $Pe \gg 10^2$
- Le mélange par diffusion (diffusional mixing"), $10^{-1} < Pe < 10^2$

Quelques auteurs ont étudiés ces différentes possibilités de transport et de répartition dans les nœuds, par exemple Berkowitz *et al.* (1994), Park et Lee (1999), Mourzenko *et al.* (2002), Li *et al.* (2006).

Mélange parfait Le mélange parfait correspond à un brassage parfait (Figure 4.2). Les flux entrants se mélangent totalement dans le nœud pour homogénéiser les concentrations en sortie. Les canaux d'entrée et de sortie des marcheurs sont indépendants.

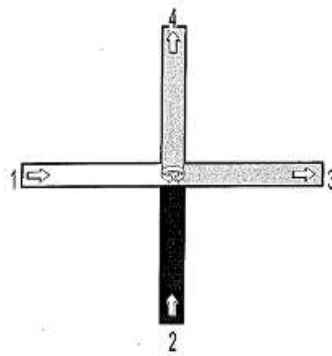


FIGURE 4.2 – Mélange parfait dans les nœuds, schématisation de Park et Lee (1999). Les différentes couleurs correspondent à des concentrations différentes. La concentration est uniformisée au niveau du nœud.

Ce type de mélange est valable pour les nombres de Peclet faibles ($Pe \ll 0.1$) dans les nœuds, c-à-d la diffusion est importante, les concentrations sont homogénéisées lors du passage dans les nœuds (Park *et al.*, 2001a). Mourzenko *et al.* (2002) définissent la limite de validité de l'hypothèse comme la limite de validité de l'équation de Stokes : $Re \ll 1$.

Dans le cas du mélange parfait il est nécessaire de choisir une règle de répartition des marcheurs dans les canaux éfférents. Bijeljic *et al.* (2004) et (Rhodes et Blunt, 2006) suivent pas à pas le déplacement des marcheurs au sein de chaque canal. Les marcheurs sont déplacés, à chaque pas de temps, par advection puis par diffusion. Les règles de mélange sont choisies en fonction de l'arrivée des marcheurs aux nœuds. Si les marcheurs arrivent lors du mouvement par advection, elles sont réparties en fonction du débit des canaux éfférents ; si les marcheurs arrivent lors du mouvement par diffusion, elles sont réparties aléatoirement en fonction de la surface des canaux.

Répartition par ligne de courant La répartition par lignes de courant, ou "streamline-routing" est basée sur une absence de mélange au niveau du nœud. Les marcheurs suivent des pseudo-lignes de

courant du fluide traversant le nœud, le canal de sortie est ainsi lié à la ligne de courant suivie. La concentration en traceur le long d'une ligne de courant est constante à travers le nœud, puis s'homogénéise au sein des canaux (Park *et al.*, 2001b).

La répartition par lignes de courant ne nécessite pas de résolution analytique, les lignes de courant ne sont pas calculées dans les pores, Bruderer et Bernabe (2001) (Figure 4.3) passent en revue l'ensemble des possibilités pour la répartition des lignes de courant au niveau des nœuds. Les trois premières configurations (a) sont appelées continues, tandis que la dernière (b), inexistante en milieu naturel est appelée discontinue. Le choix du type de configuration à utiliser peut facilement être automatisé et incorporé au code de résolution numérique. Il suffit de comparer les débits et pressions des différents canaux entrants et sortants pour savoir quelle configuration appliquer dans le nœud considéré (Park *et al.*, 2001b, Bruderer et Bernabe, 2001).

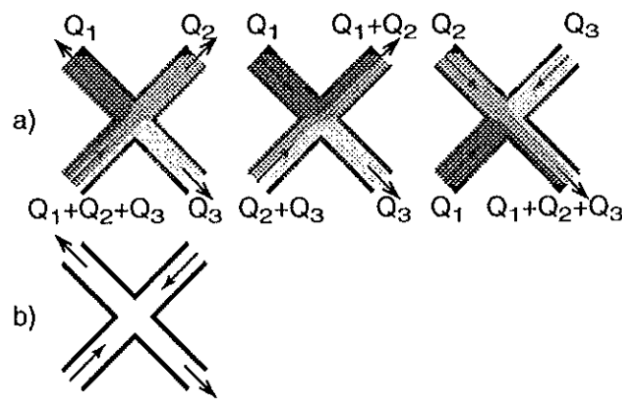


FIGURE 4.3 – Configurations possibles de répartition par ligne de courant dans les nœuds. Bruderer et Bernabe (2001) : (a) répartition des lignes de courant aux nœuds en fonction du nombre d'entrées et de sorties. (b) inexistante en milieu naturel.

Cette approche est valable pour des nombres de Peclet importants ($Pe \gg 10^2$), c-a-d la diffusion est négligeable au sein du nœud, les marcheurs sont supposés suivre exactement les lignes de courant Park *et al.* (2001a). Mourzenko *et al.* (2002) définissent la limite de validité à $Pe \gg 1$ mais montrent que cette répartition ne donne des résultats correctes que pour $Pe > 30$. Cette répartition présuppose l'homogénéité de la concentration dans les canaux afférents, et que les canaux éfférents soient suffisamment longs pour que l'on retrouve une concentration homogène. Mourzenko *et al.* (2002) montrent que, si la longueur du canal est notée Δ , cette condition s'exprime sous la forme :

$$\Delta > Pe b \quad (4.1)$$

où b est la longueur caractéristique à partir de laquelle la diffusion a rendu la concentration homogène.

Mélange par diffusion Cette troisième possibilité a été décrite consécutivement aux deux précédentes par Park *et al.* (2001a). Le marcheur suit les lignes de courant calculées cette fois-ci de manière analytique et est aussi dispersé par diffusion moléculaire (Figure 4.4).

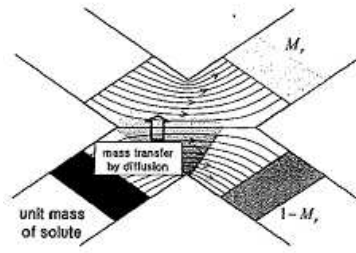


FIGURE 4.4 – Le mélange-diffusion schématisé par Park *et al.* (2001b). Les marcheurs se déplacent dans le nœud le long des lignes de courants et passent de l'une à l'autre par diffusion moléculaire.

Le mélange par diffusion permet de décrire la répartition pour des nombres de Peclet compris entre 10^{-1} et 10^2 . Dans cette gamme de Peclet, la diffusion et l'advection sont en concurrence directe. Ce type de répartition est analytique et est le plus difficile à implémenter et le plus long à résoudre. De plus l'étude du mélange -diffusion a été réalisée sur un milieu stochastique carré bidimensionnel, l'auteur conclue que la généralisation de la validité du mélange par diffusion aux réseaux tridimensionnels nécessite une vérification.

Conclusion sur la répartition aux nœuds Le choix du type de transport dans les canaux est conditionné au choix du type de transport dans les nœuds. La résolution analytique du transport dans les canaux n'est intéressante que si l'on considère la répartition des lignes de courant dans les nœuds, ou le mélange - diffusion. Dans le cas du mélange parfait dans les nœuds, la précision sur la dispersion transverse dans les canaux est perdue au niveau des nœuds, il est inutile de calculer le champ de vitesse complet dans les canaux. L'utilisation de la vitesse moyenne dans les canaux, peut se faire quelque soit le type de mélange dans les nœuds.

D'après Park *et al.* (2001a), la différence entre mélange parfait et répartition des lignes de courant ne s'avère pas significative à l'échelle d'un réseau de pore hétérogène, puisqu'elle n'est importante que pour moins de 5 % du nombre de nœuds total du réseau. L'artisan majeur de la dispersion dans un réseau hétérogène n'est pas la répartition aux nœuds mais la longueur des canaux et le nombre de connections aux nœuds (Park *et al.*, 2001b). Du fait que les nœuds sont négligeables dans les simulations de type réseau de pores, et que seule l'interconnection des nœuds est essentielle, le calcul complet des lignes de courant dans les nœuds n'est pas nécessaire Bruderer et Bernabe (2001).

Bodin *et al.* (2003) arrivent à la conclusion inverse lors de leurs études sur un réseau de fracture synthétique contenant des cul-de-sac. Les courbes de percées pour des modélisations avec mélange parfait (PM) ou répartition des lignes de courant (ST) sont présentées Figure 4.5. Si la TDRW (Time Domain Random Walk) est un modèle robuste puisque ses résultats (en triangles et points) coïncident correctement avec les résultats analytiques (en traits continus), les deux types de mélanges ne donnent absolument pas les mêmes résultats.

D'après Mourzenko *et al.* (2002), il est essentiel de prendre en compte les nombres de Peclet locaux aux nœuds et aux canaux et d'adapter les modèles de répartition au cas par cas. A noter que

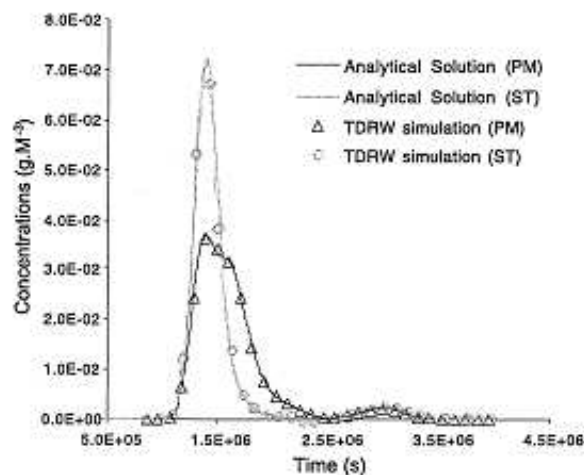


FIGURE 4.5 – Courbes de percée analytiques (traits continus) et simulée (symboles) par Time Domain Random Walk (Bodin *et al.*, 2003), pour un mélange parfait aux nœuds (PM) ou une répartition par ligne de courant (ST).

Mourzenko *et al.* (2002) travaillent sur un modèle régulier de type carré 45° .

Li (2002) étudie le mélange au niveau d'une intersection simplifiée par marche aléatoire. Il conclut sur le fait que le nombre de Peclet dans les nœuds est un paramètre clé contrôlant la répartition des marcheurs aux nœuds. Pour un nombre de Peclet très faible ($Pe < 1$), les lignes de courant n'influent plus sur le mélange, seule la diffusion intervient et on retrouve le cas de mélange parfait. Plus le nombre de Peclet croît ($Pe > 10^2$), moins le mélange s'effectue. On retrouve la répartition par lignes de courant, la diffusion devient négligeable devant l'advection. La zone entre 10^{-1} et 10^2 est une zone de transition où les effets de l'advection et de la diffusion se font sentir conjointement.

Berkowitz *et al.* (1994) court-circuitent le problème en utilisant un système de pondération par des ensembles de lignes de courants. Ils couplent une solution analytique de la fonction de courant avec un lâcher de marcheurs et obtiennent la fraction de marcheurs entrant dans un canal en fonction du nombre de Peclet. Le problème de cette méthode est qu'elle devient difficile à résoudre en l'absence de solution analytique pour la fonction de courant.

4.1.2 Méthodes analytiques

Les méthodes analytiques se basent sur une connaissance complète du champ de vitesse dans le domaine étudié. Elles consistent à résoudre les équations d'écoulement en tout point. Une fois le champ de vitesse obtenu, les marcheurs se déplacent simplement par advection. Ils suivent les lignes de courant. Quelques auteurs ajoutent à cette advection une distribution de sauts aléatoires représentant les effets de la diffusion. Ces sauts aléatoires permettent notamment aux marcheurs de passer d'une ligne de courant à une autre.

Ce type de méthode est peu utilisée, de fait les gros désavantages des méthodes analytiques sont

la durée de résolution et la quantité d'information générée. Le temps de calcul est principalement dû à la difficulté de résolution des équations de transport au niveau des nœuds. Les méthodes semi-analytiques s'affranchissent de ce problème en considérant comme négligeable l'influence du champ de vitesse au niveau des nœuds (Bruderer et Bernabe, 2001), la géométrie des lignes de courant dans les nœuds n'est pas prise en compte. Ce qui consiste à dire la même chose que Park *et al.* (2001a) : la dispersion au niveau des nœuds est négligeable par rapport à l'importance de la connectivité du réseau.

4.2 Comparaison entre réseau de pore et RMN

Les comparaisons entre résultats expérimentaux RMN et modélisation de type réseau de pore (PNM) sont principalement effectuées pour des empilements non consolidés de grains ou de sphères en conditions saturées. Récemment, des comparaisons pour des milieux consolidés hétérogènes ou insaturés ont été publiées. Cette section présentera tout d'abord les comparaisons pour des empilements de sphères ou de grains, puis les comparaisons pour les milieux consolidés.

Les empilements de grains ou de sphères sont des milieux fortement étudiés, il existe des comparaisons entre propagateurs expérimentaux obtenus par RMN et propagateurs simulés par transport dans un réseau de pore.

Lebon *et al.* (1997) ont été les premiers à effectuer ce type de comparaison, ils ont travaillé sur des empilements de billes de verre de différents diamètres (81, 145 et 800 μm). Les propagateurs présentés Figure 4.6 correspondent à un empilement de billes de verres de 81 μm pour les propagateurs RMN et un réseau de pore correspondant à un ensemble de canaux aléatoirement répartis, possédants une longueur unique (égale à la taille de grains) et des diamètres variés. L'orientation des canaux par rapport aux nœuds est aléatoire. Les marcheurs se déplacent dans les canaux suivant la vitesse moyenne et effectuent des sauts aléatoires longitudinaux pour simuler les phénomènes de diffusion. Un mélange parfait est supposé dans les nœuds.

La Figure 4.6 présente les propagateurs pour un temps d'observation de 103 ms . On observe des déplacements de l'ordre de la taille de grains. Les auteurs concluent de leur étude que les propagateurs RMN et les propagateurs PNM coïncident de manière satisfaisante. Ils notent la présence d'un pic aux alentours des déplacements nuls pour les propagateurs PNM, pic qui indique qu'il existe une proportion non négligeable de marcheurs se déplaçant à vitesse quasi-nulle, et ce quelque soit le temps d'observation. Ce pic ne se retrouve pas dans les propagateurs RMN. Les résultats montrent que le comportement asymptotique (régime Fickien) est retrouvé au temps longs. En effet les auteurs arrivent à caler de manière correcte une gaussienne sur le second pic du propagateur pour les résultats présentés Figure 4.6.b. De plus avec l'augmentation du temps d'observation, le propagateur mesuré tend vers une gaussienne, les marcheurs échantillonnant de plus en plus de milieu poreux.

L'ensemble des auteurs comparant des propagateurs RMN à des propagateurs numériques obtenus par marche aléatoire dans des réseaux de pore montrent que les propagateurs numériques présentent des pics stagnants anormaux. Ce pic est observé y compris dans le cas de réseaux de pores

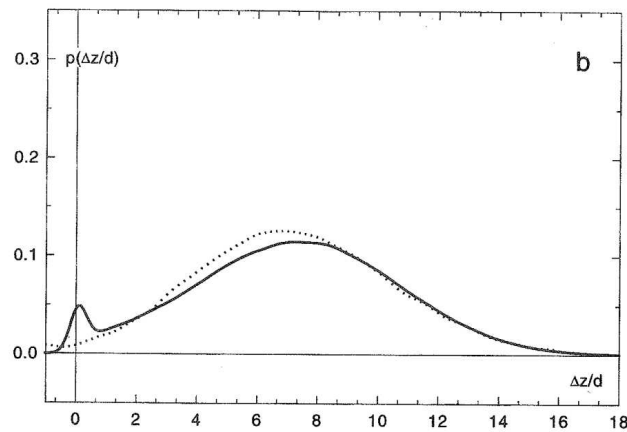


FIGURE 4.6 – Comparaison propagateur entre RMN (pointillés) et propagateur PNM (trait plein) par Lebon *et al.* (1997) : Δz est le déplacement, d la taille de grains, $z^* = 7.3$ (déplacement moyen normalisé par la taille de grains d) . temps d'observation de 103 ms , $Pe = 201$, $Re = 0.15$ et $\langle v \rangle = 5.71\text{ mm/s}$ ($\langle v \rangle$ la vitesse moyenne calculée à partir du propagateur, équivaut à la vitesse de Darcy).

stochastiques destructurés insaturés présentant des caractéristiques physiques (porosité, perméabilité, distribution des tailles de pores) identiques au milieu poreux réel (Damion *et al.*, 2000). Lebon *et al.* (1997) ont montré que le pic était indépendant de la forme des canaux et de la distribution de taille des canaux. Ne prenant pas en compte la dispersion de Taylor dans les canaux, ils émettent l'hypothèse que cela serait à l'origine du pic stagnant.

Seule la simulation par marche aléatoire effectuée directement dans l'image porale obtenue par micro-scanner montre des propagateurs numériques ne présentant pas de pic stagnant (Blunt *et al.*, 2012). La comparaison avec des propagateurs RMN n'est toutefois toujours pas quantitative. Tessier *et al.* (1997) et (Packer *et al.*, 1998) utilisent un milieu poreux consolidé reconstruit numériquement et montrent des propagateurs numériques possédant un pic anormal. Ils parviennent à diminuer le pic stagnant en agissant sur le facteur de formation $FF = D_m/D_{eff}$ (FF le facteur de formation, D_m le coefficient de diffusion moléculaire et D_{eff} le coefficient de diffusion effectif). Ils pensent que le pic vient d'une sous-estimation de la diffusivité effective dans le réseau de pores.

D'autres auteurs ont effectués cette comparaison plus récemment sur des milieux hétérogènes, c'est le cas de Zhao *et al.* (2010) qui ont travaillé sur un calcaire des dolomites. Ils ont effectués des mesures RMN de propagateur sur un échantillon du calcaire et les ont comparés avec les résultats d'une simulation PNM dans le réseau de pore extrait par micro-scanner du même calcaire. La Figure 4.7 montre les résultats obtenus pour deux temps d'observations (1000 ms et 3300 ms). La simulation et l'expérience sont effectuées avec une vitesse moyenne $\langle v \rangle = 250\text{ }\mu\text{m/s}$. La simulation utilise un PNM dont le volume des pores est géré par un paramètre b (facteur de retardement), lorsque $b = 0$ les pores ont un volume nul.

Les auteurs montrent que l'on peut faire coïncider les résultats numériques avec les résultats expérimentaux en agissant sur le paramètre b . Les formes des propagateurs sont très différentes de celles

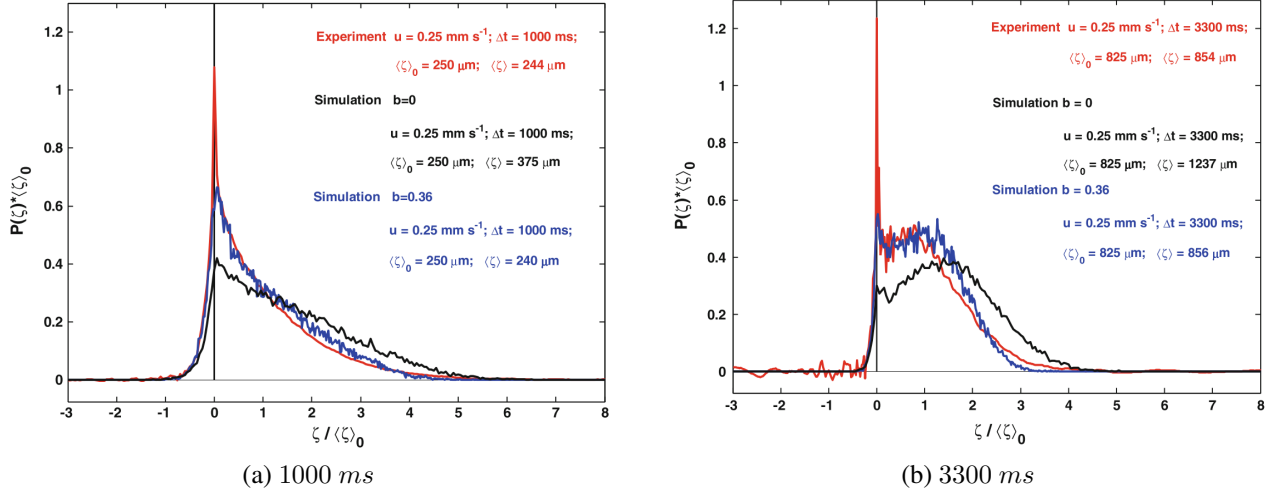


FIGURE 4.7 – Comparaison propagateurs RMN et numériques pour un calcaire (Zhao *et al.*, 2010). b est un facteur de retardement aux nœuds permettant de simuler des volumes de nœuds différents. $b = 0$ correspond à un nœud sans volume.

obtenues par Lebon *et al.* (1997), ce qui s'explique par la différence des milieux étudiés.

4.3 Conclusion

Les réseaux de pores sont des simplifications de l'espace poral du milieu poreux réel. Ils sont constitués de nœuds reliés entre eux par des canaux. Ces réseaux sont couramment utilisés pour étudier la dispersion de marcheurs. Le transport de ces marcheurs dans le réseau est soumis à plusieurs lois différentes pour les canaux et les nœuds. La méthode de transport la plus fréquemment utilisée est la méthode semi-analytique combinant déplacements à la vitesse moyenne et sauts diffusifs aléatoires dans les canaux, ainsi que brassage total dans les nœuds. Cette méthode suppose l'établissement du régime de dispersion de Taylor dans les canaux et un nombre de Peclet faible dans les nœuds.

La comparaison entre mesures RMN et simulations dans des réseaux de pores a été effectuée sur divers milieux poreux, homogènes ou hétérogènes, saturés ou insaturé, mais est peu documentée. Il a été mis en évidence, dans le cas de simulations dans des réseaux de pores représentatifs d'empilements de sphères, un pic stagnant anormal. Le réseau de pore engendre une stagnation anormale d'une partie non négligeable des marcheurs, aucune explication convaincante n'est à ce jour fournie. Les simulations en milieu hétérogène ou à double porosité montrent eux une bonne adéquation des résultats.

Deuxième partie

Résultats expérimentaux

Cette partie présente dans un premier temps, dans le Chapitre 5, les validations des mesures expérimentales par résonance magnétique nucléaire. Ces validations sont essentielles puisqu'elles permettent de vérifier le bon fonctionnement des outils expérimentaux ainsi que la validité des résultats obtenus. Dans un second temps (Chapitre 6), les résultats des mesures par RMN des déplacements obtenus pour des écoulements dans des empilements de grains non consolidés saturés, sont présentés. Ces résultats permettent de mieux comprendre les régimes pré-asymptotique et asymptotique de dispersion, de définir des critères d'établissement du régime asymptotique et de choisir un milieu qui sera utilisé pour étudier l'influence de la saturation sur les déplacements des molécules d'eau. Finalement, les résultats obtenus pour des écoulements dans un empilement de grains de SiC de $30\ \mu m$ insaturé sont présentés et discutés dans le Chapitre 7.

Chapitre 5

Validation des mesures et caractérisation des milieux utilisés

Sommaire

5.1	Mesure du coefficient de diffusion moléculaire : calibration des gradients de champ magnétique et validation des séquences de vélocimétrie	90
5.2	Validation de la mesure de porosité par RMN	93
5.3	Étude d'un écoulement de Poiseuille par RMN	95
5.3.1	Distribution de vitesse théorique d'un écoulement laminaire dans un tube cylindrique simple	95
5.3.2	Distributions de vitesse expérimentales d'un écoulement laminaire dans une cellule cylindrique de faible diamètre (7.40 mm)	96
5.4	Répétitivité et erreurs sur les mesures RMN	98
5.4.1	Répétitivité des mesures RMN	98
5.4.2	Mesure des vitesses moyennes	100
5.5	Validation des expériences de traceur par RMN	103
5.6	Caractérisation des empilements utilisés	108
5.6.1	Empilement de SiC en grande colonne	108
5.6.1.1	Temps de relaxation T_2	108
5.6.1.2	Perméabilité	109
5.6.1.3	Porosité	110
5.6.2	Empilements de sable de Fontainebleau 80 μm en grande colonne	110
5.7	Conclusion	110

L'imageur 20 MHz est un appareil arrivé au laboratoire du département Péetrophysique d'IFPEN au cours de la thèse. Il a fallu le calibrer ainsi qu'adapter ou développer les méthodes expérimentales présentées dans le Chapitre 3. Ce chapitre présente la calibration de l'imageur 20 MHz et la validation des différentes méthodes de mesures développées ou adaptées au cours de la thèse.

Dans ce chapitre sera tout d'abord abordée la mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau. Cette mesure permet de valider la séquence de mesure des déplacements, de calibrer la valeur des gradients de champ magnétique de l'appareil et d'étudier l'atténuation du signal. Puis, la validation de la mesure de la porosité par l'imageur 20 MHz est décrite. Cette validation a été réalisée en mesurant la porosité par RMN pour différents milieux de porosité connue. La séquence de mesure de déplacement dans une tranche étant nouvelle pour le laboratoire, la mesure, par cette séquence, du propagateur des déplacements a été validée en mesurant les propagateurs d'écoulements laminaires dans un cylindre et en comparant les résultats obtenus avec la solution analytique de cet écoulement. Puis, la répétitivité des mesures et les erreurs sur les vitesses moyennes calculées à partir du signal RMN seront discutées. La validation des expériences de traceur par RMN est ensuite présentée. Les milieux utilisés sont des empilements de grains, leurs caractéristiques sont connues (taille des grains, forme des grains, taille des milieux), ou ont été mesurées (porosité, perméabilité, temps de relaxation), et sont présentées dans la dernière partie de ce chapitre.

En marge de ces validations précises, de nombreuses expériences ont été réalisées afin de cerner l'influence des nombreux facteurs sur les résultats des mesures RMN, que ce soient les caractéristiques intrinsèques de l'appareil RMN, différentes pour chaque appareil (homogénéité du champ statique, des gradients de champs, caractéristiques de la sonde, des gradients et des pulses radio-fréquence, ...), ou la réaction de l'appareil aux différents systèmes expérimentaux utilisés (fluides, milieux poreux, cellules, vitesses d'écoulement, température interne des échantillons, ...). Toutes ces expériences ne peuvent être présentées dans ce document mais sont essentielles à la compréhension du fonctionnement des appareils RMN, des mesures et donc des résultats.

5.1 Mesure du coefficient de diffusion moléculaire : calibration des gradients de champ magnétique et validation des séquences de vélocimétrie

La mesure du coefficient de diffusion moléculaire D_m permet de calibrer les gradients dans les trois directions de l'espace $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ (Figure 5.1), de valider la mesure des déplacements diffusifs par les séquences de vélocimétrie (cf. Paragraphes 2.3.1 et 3.2), et enfin d'observer l'atténuation maximale du signal caractéristique du rapport signal sur bruit de l'appareil.

Lors des expériences de RMN, on règle le courant circulant dans les bobines de gradients à l'aide d'une variable G (nombre entier) qui peut-être choisie entre -32767 et $+32767$ (unités arbitraires de l'imageur). Les bobines de gradients produisent alors des gradients de champ magnétique de force $g = G/32767 G_{max}$. La calibration des gradients consiste à déterminer la force maximale des gradients G_{max} de l'appareil (g pour $G = 32767$).

Pour remplir les objectifs énoncés ci-dessus, on mesure à l'aide des séquences de vélocimétrie le déplacement des molécules d'eau lors de l'absence d'écoulement. Il a été montré au paragraphe 2.3.1, qu'en absence d'écoulement, le logarithme Néperien du signal $\ln(E(q, t_\Delta))$ exprimé en fonction de

$q^2 t_{\Delta}$ formait une droite (en ordonnée logarithmique) dont la pente est directement liée au coefficient de diffusion moléculaire D_m . L'alignement de $\ln(E(q, t_{\Delta}))$ exprimé en fonction de $q^2 t_{\Delta}$ permet, si le coefficient de diffusion moléculaire obtenu est proche de celui théorique, de valider la mesure des déplacements diffusifs par les séquences de vélocimétrie. L'atténuation maximale du signal est obtenue lorsque l'alignement des points est perdu. Et enfin, l'ajustement, à l'aide de G_{max} , du coefficient de diffusion moléculaire mesuré pour qu'il soit égal au coefficient théorique permet de calibrer les gradients. L'ajustement du coefficient de diffusion moléculaire se fait à 1 % près, ce qui valide la mesure des déplacements diffusifs par les séquences à 1 % près. La calibration et la validation sont effectuées dans les trois directions de l'espace, avec et sans sélection de tranche.

Afin de pouvoir, dans une même expérience valider les mesures et calibrer les gradients, il est nécessaire d'effectuer une pré-calibration des gradients afin que la valeur de D_m mesurée avant calibration des gradients soit la plus proche possible de la valeur théorique. Cette pré-calibration est effectuée par le fabricant, qui fournit des valeurs de gradients approchées (Table 5.1) .

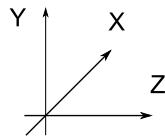


FIGURE 5.1 – Repère du laboratoire R ($(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ avec $\vec{z}$ orienté selon $\vec{B}_0$).

Direction X	$G_{max} = 107.1 \text{ G.cm}^{-1}$
Direction Y	$G_{max} = 158.8 \text{ G.cm}^{-1}$
Direction Z	$G_{max} = 149.9 \text{ G.cm}^{-1}$

TABLE 5.1 – Valeurs de gradients fournis par la constructeur

La calibration des gradients à l'aide des séquences de vélocimétrie a été effectuée sur un empilement de billes de verres de 5 mm de diamètre dans un tube de 3 cm de diamètre et sur une hauteur de 3 cm. La température de l'échantillon, mesuré par une sonde optique, est de 33.8 °C. Le coefficient de diffusion moléculaire de l'eau à cette température est de $2.83 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ (Holtz *et al.*, 2000). On ajoute à l'eau du CuSO_4 , ce qui permet de d'abaisser le temps de relaxation transversal T_2 à 240 ms, le temps d'observation t_{Δ} utilisé est de 50 ms.

La Figure 5.2 présente les résultats des mesures sous la forme $\ln(E(q, t_{\Delta}))$ exprimé en fonction de $q^2 t_{\Delta}$. La mesure du coefficient de diffusion moléculaire se fait en faisant varier la force des gradients de $-g$ à g , le signal RMN est théoriquement identique pour les gradients de signe opposés. La concordance du signal pour les gradients de même valeur absolue, l'alignement des points expérimentaux, et les valeurs de cD_m proches de la valeur théorique valident la séquence de vélocimétrie utilisée. Cette validation a été effectuée pour les deux séquences RMN précédemment présentées (paragraphe 3.2). Elle permet de tenir compte et de compenser les défauts des séquences qui seront utilisées pour mesurer les déplacements.

L'atténuation maximale du signal RMN correspond au rapport entre l'amplitude du signal aux faibles valeurs de gradients et l'amplitude du bruit. Cette atténuation se voit particulièrement bien pour les mesures de diffusion. Pour obtenir l'amplitude du bruit, on repère la valeur de gradient à partir de laquelle la linéarité est rompue. L'atténuation maximale mesurée est de plus de deux décades dans les trois directions.

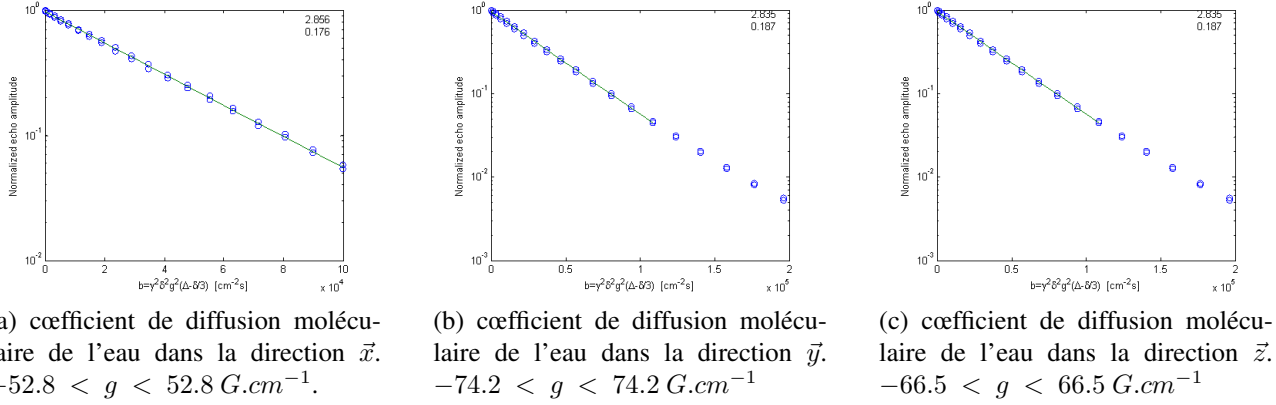


FIGURE 5.2 – Mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau dans les trois directions de l'espace. Le coefficient de diffusion moléculaire correspond à la pente de la droite (en ordonnées logarithmiques) obtenue par l'accumulation de l'amplitude des échos mesurés en fonction de la force de gradient intervenant lors de la mesure (cf. paragraphe 2.3.1).

La mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau dans la direction $\vec{x}$ a été effectuée pour des gradients $-52.8 < g < 52.8 \text{ G.cm}^{-1}$. Le gradient de champ magnétique calibré a pour force maximale 111.8 G.cm^{-1} selon la direction $\vec{x}$. Dans la direction $\vec{y}$, la mesure a été effectuée pour des gradients $-74.2 < g < 74.2 \text{ G.cm}^{-1}$ et le gradient de champ magnétique calibré a pour force maximale 156.1 G.cm^{-1} . Enfin, dans la direction $\vec{z}$ la mesure a été effectuée pour des gradients $-66.5 < g < 66.5 \text{ G.cm}^{-1}$ et le gradient de champ magnétique calibré à pour force maximale 144.0 G.cm^{-1} .

Les gradients correctement calibrés (tableau 5.2) montrent que les bobines engendrant ces gradients dans les trois directions de l'espace, ne possèdent pas les mêmes caractéristiques. La direction ayant le gradient maximal le plus faible est la direction $\vec{x}$ alors que le gradient maximal le plus fort est celui de la direction $\vec{y}$. Dans le cas de mesures transverses, la direction utilisée sera la direction $\vec{z}$, la puissance des gradients selon $\vec{z}$ est plus forte, la mesure est donc de meilleure qualité (la direction colinéaire à l'écoulement, donc verticale, est la direction $\vec{y}$).

Direction X	$G_{max} = 111.8 \text{ G.cm}^{-1}$
Direction Y	$G_{max} = 156.1 \text{ G.cm}^{-1}$
Direction Z	$G_{max} = 144.0 \text{ G.cm}^{-1}$

TABLE 5.2 – Récapitulatif des valeurs calibrées des gradients de champ magnétique par mesure du coefficient de diffusion moléculaire D_m .

Les séquences de mesures de déplacement, avec et sans sélection de tranche, ont été validées par mesure de la diffusion moléculaire. Cette validation a par ailleurs permis de calibrer les gradients de champ magnétique de manière précise (à 1 % près) et d'observer l'atténuation maximale du signal qui est supérieure à deux décades (cf. Figure 5.2).

5.2 Validation de la mesure de porosité par RMN

Cette section présente la validation de la mesure de la porosité des milieux poreux par l'imageur 20 *MHz*. La mesure de la porosité est réalisée de manière routinière sur les autres appareils du laboratoire mais l'imageur 20 *MHz* étant nouveau, il a fallu vérifier que cet appareil permet une mesure quantitative de la porosité. La mesure de la porosité de la colonne peut se faire de manière globale, par pesée, ou de manière locale par RMN. La RMN permet de mesurer le profil de porosité le long de l'échantillon (cf. paragraphe 3.1.1), ou la porosité moyenne dans la tranche considérée (cf. paragraphe 3.1.2).

La validation de la mesure de porosité par RMN a été effectuée sur l'empilement de SiC de 30 μm dans la grande cellule (de 27 *cm* de long et 2.42 *cm* de diamètre présentée au paragraphe 3.5.2). La mesure de la porosité moyenne par pesée sert de valeur référence pour la validation des mesures par RMN. Cette mesure moyenne présente une marge d'erreur faible. Elle est effectuée lors de l'assemblage de l'empilement du milieu poreux car elle nécessite de connaître le poids sec et saturé des divers éléments de la colonne et des grains constituant l'empilement.

La porosité ϕ est définie comme :

$$\phi = \frac{V_{eau}}{V_{total}} = \frac{V_{eau}}{V_{eau} + V_{solide}} \quad (5.1)$$

où V est le volume de l'élément considéré (en m^3).

Ce qui revient à :

$$\phi = \frac{m_{eau}\rho_{eau}}{m_{eau}\rho_{eau} + m_{solide}\rho_{solide}} \quad (5.2)$$

où ρ est la masse volumique de l'élément considéré (en $kg.m^{-3}$) et m sa masse (en kg).

Or les masses volumiques de l'eau et du carbure de silicium sont connues (respectivement 1 $g.cm^{-3}$ et 3.217 $g.cm^{-3}$). Le volume d'eau est corrigé du volume présent dans les embouts au moments de la pesée. La porosité obtenue par cette méthode est de 43 %.

La RMN permet de mesurer la porosité locale le long de la colonne de deux manières différentes : par mesure de profil de porosité et par mesure de la porosité moyenne dans une tranche (cf. paragraphe 3.1). Les résultats des mesures de porosité le long de l'empilement avec ces deux méthodes sont présentés Figure 5.3. Le profil de porosité le long de la colonne est constant, excepté près de l'entrée et de la sortie de la colonne où une compaction plus importante est visible. Les deux méthodes donnent des résultats similaires et une porosité moyenne d'environ 39 %. La différence entre la porosité mesurée par RMN et la porosité mesurée par pesée est de 3 à 4 %.

D'autres validations de la mesure de la porosité par l'imageur 20 *MHz* ont été effectuées suite aux observations précédentes avec différents systèmes de porosité connues. Il a été montré que l'erreur sur la porosité obtenue par mesure RMN n'est pas dépendante du volume d'eau dans le système. Il a donc été supposé que l'environnement de l'eau (le milieu poreux, la cellule) influençait la mesure de la porosité, une expérience de mesure du signal RMN d'un volume d'eau constant en fonction de

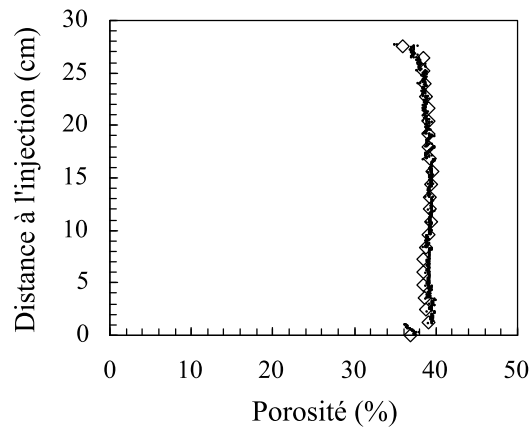


FIGURE 5.3 – Comparaison entre les deux types de mesure RMN de porosité : ($\diamond$) mesure du profil de porosité, ($\cdot$) mesure de la porosité moyenne dans une tranche.

son environnement a donc été faite (Figure 5.4). Une première mesure du signal a été effectuée pour un tube de faible diamètre emplit d'eau et contenu dans un tube plus large vide (Figure 5.4a) ; une seconde mesure a été effectuée sur le même système mais avec l'espace entre les deux tubes rempli de SiC (Figure 5.4b). Cette expérience a été conduite avec un tube extérieur en plastique Macrolon (le même tube que celui utilisé pour l'empilement de SiC $30\ \mu m$).

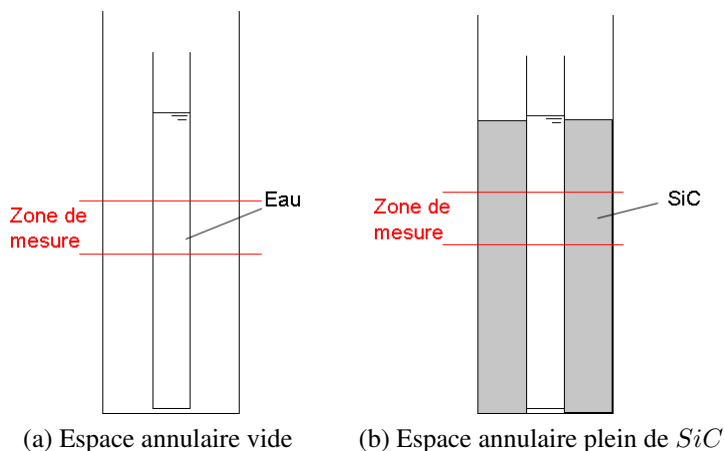


FIGURE 5.4 – Schéma des montages utilisés pour tester l'influence du système poreux sur la mesure de la porosité.

La comparaison des signaux des deux systèmes a montré que la présence du SiC conduit à un signal RMN réduit d'environ 3 à 4%. Le facteur de qualité relativement élevé de la sonde de l'imageur $20\ MHz$ est influencé par le système étudié et change suivant la présence ou non du SiC, ce facteur de qualité est réglé pour chaque type de système à l'aide d'une capacité variable. Ce réglage engendre une légère variation de l'impédance de la sonde qui se traduit par la différence de signal mesurée. Cette différence de signal est caractéristique du système et non pas de sa teneur en eau. Ainsi les mesures de saturation qui sont des mesures comparatives entre le milieu pleinement saturé et le milieu désaturé,

ne présentent-elles pas de biais.

La porosité mesurée par RMN doit-être corrigée en fonction du milieu étudié à l'aide de la porosité mesurée par pesée. Dans le cas de l'empilement de grains de SiC, cette correction est d'environ 3–4%.

5.3 Étude d'un écoulement de Poiseuille par RMN

L'étude d'un écoulement de Poiseuille par RMN a pour objectif de valider la mesure du propagateur en écoulement par l'obtention de propagateurs particuliers et reproductibles analytiquement ou numériquement. L'écoulement de Poiseuille a pour ce faire été étudié expérimentalement dans un cylindre simple (une cellule de 7.40 mm de diamètre pour 25 cm de long), pour différents temps t et différents débits.

La solution analytique de l'écoulement de Poiseuille dans un cylindre est connue. Le profil des vitesses est parabolique et engendre un propagateur analytique spécifique de forme carrée. Ce propagateur analytique sert de référence et de comparaison aux propagateurs expérimentaux. L'obtention, par RMN, du propagateur analytique valide la mesure des propagateurs en écoulements par RMN. Cette section décrit tout d'abord la distribution de vitesse théorique de cet écoulement, puis les distributions mesurées par RMN.

5.3.1 Distribution de vitesse théorique d'un écoulement laminaire dans un tube cylindrique simple

L'écoulement laminaire dans un tube cylindrique de rayon R a pour profil des vitesses une parabole d'équation (Guyon *et al.*, 2001) :

$$v(r) = v_{max} \left[1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] \quad (5.3)$$

où $r \in [0, R]$ (c-a-d $v \in [0, v_{max}]$).

Si l'on considère l'équation 5.3, la distribution de vitesse $P(v)$ de cet écoulement est :

$$P(v) = \left(-\frac{1}{\pi R^2} \right) 2\pi r \frac{dr}{dv} \quad (5.4)$$

La distribution de vitesse est une densité de probabilité, c-a-d $\int P(v)dv = 1$, ce qui est acquis par le facteur $-\frac{1}{\pi R^2}$. $2\pi r$ est la pondération par la circonférence en coordonnées cylindriques.

Or, comme pour $v \in [0, v_{max}]$, $r = R\sqrt{1 - v/v_{max}}$,

$$\frac{dr}{dv} = -\frac{1}{2} \frac{R}{v_{max}} \frac{1}{\sqrt{1 - v/v_{max}}} \quad (5.5)$$

Soit,

$$2\pi r \frac{dr}{dv} = -\pi R^2 \frac{1}{v_{max}} \quad (5.6)$$

In fine,

$$P(v) = \frac{1}{v_{max}} \quad (5.7)$$

Le propagateur d'un écoulement laminaire est uniforme entre 0 et v_{max} et a pour moyenne $v_{max}/2$.

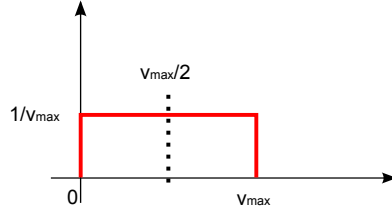


FIGURE 5.5 – Le propagateur analytique d'un écoulement laminaire est une distribution uniforme ayant pour bornes $v = 0$ et $v = v_{max}$, et pour vitesse moyenne $v_{max}/2$.

5.3.2 Distributions de vitesse expérimentales d'un écoulement laminaire dans une cellule cylindrique de faible diamètre (7.40 mm)

La mesure du propagateur de l'écoulement laminaire a été effectuée dans une cellule de 7.40 mm de diamètre interne dans l'imager 20 MHz. Le fluide utilisé est de l'eau additionnée de $CuSO_4$, le temps de relaxation T_2 du mélange dans la cellule est de 68 ms. On mesure le propagateur pour une tranche classique (présentée au paragraphe 3.3) située au centre de la cellule pour limiter l'influence de l'injection. Les mesures ont été effectuées avec différents débits allant de 50 à 1500 $ml.h^{-1}$. Soit des vitesses comprises entre $3.61 \cdot 10^{-2} cm.s^{-1}$ et $3.61 \cdot 10^{-1} cm.s^{-1}$. Le temps d'observation t_Δ pour ces mesures est constant et vaut 50 ms. Les propagateurs longitudinaux résultants de ces mesures sont présentés en Figure 5.6.

Les nombres de Reynolds sont compris entre 2.67 et 80, ce qui montre que le régime d'écoulement est laminaire ($Re < 10^3$). L'expression analytique de la distribution des vitesses en régime laminaire s'applique donc (équation 5.7) et l'on devrait observer des propagateurs uniformes entre $v = 0$ et v_{max} , ceci n'est pas le cas pour les débits 50 et 300 $ml.h^{-1}$. La forme du propagateur dépend du débit du fluide.

Le propagateur, pour le débit 500 $ml.h^{-1}$, (Figure 5.6) peut-être considéré comme quasi-uniforme, sa forme légèrement arrondie provenant de la convolution du propagateur uniforme représentatif de l'advection avec le propagateur gaussien représentatif de la diffusion moléculaire (Codd *et al.*, 1999, Lebon *et al.*, 1996).

Les propagateurs (Figure 5.6) changent de formes en fonction du débit. Au débit de 50 $ml.h^{-1}$, le propagateur est de forme gaussienne alors qu'au débit de 500 $ml.h^{-1}$ le propagateur est uniforme, le propagateur du débit 300 $ml.h^{-1}$ étant intermédiaire. On tente d'expliquer ce comportement à l'aide de la longueur caractéristique d'advection L_A et de la distance caractéristique de diffusion moléculaire L_D (Codd *et al.*, 1999, Lebon *et al.*, 1996).

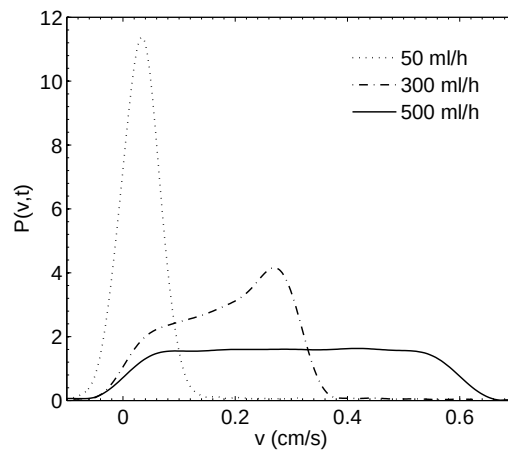


FIGURE 5.6 – Propagateurs longitudinaux pour des débits de 50, 300 et 500 $ml.h^{-1}$. Soit des vitesses moyennes (v_{moy}) de $3.61 \cdot 10^{-2}$, $2.17 \cdot 10^{-1}$ et $3.61 \cdot 10^{-1} cm.s^{-1}$. Pour un écoulement laminaire d'eau additionnée de $CuSO_4$ ($T_2 = 68 ms$ et $D_m = 2.6 \cdot 10^{-5} cm^2 s^{-1}$) dans la cellule de 7.40 mm et pour un temps d'observation t_Δ de 50 ms. La distribution des déplacements tend vers une distribution uniforme avec l'augmentation du débit.

$$L_A = v_{moy}t \quad (5.8)$$

$$L_D = \sqrt{D_m t} \quad (5.9)$$

Pour les expériences présentées Figure 5.6, la longueur caractéristique de diffusion L_D est constante et égale à $1.14 \cdot 10^{-3} cm$. Afin d'étudier l'influence relative de l'advection et de la diffusion, on définit le rapport entre L_A et L_D , les valeurs de ce rapport sont présentées dans le tableau 5.3.

Débit ($ml.h^{-1}$)	L_A (cm)	$\frac{L_A}{L_D}$
50	$1.81 \cdot 10^{-3}$	1.58
100	$3.61 \cdot 10^{-3}$	3.17
300	$1.09 \cdot 10^{-2}$	7.94
500	$1.81 \cdot 10^{-2}$	12.7

TABLE 5.3 – Rapport de la longueur caractéristique d'advection et de la longueur caractéristique de diffusion en fonction du débit pour un temps d'observation de 50 ms.

Pour le plus faible débit (50 $ml.h^{-1}$), le rapport entre la longueur caractéristique d'advection L_A et la longueur caractéristique de diffusion L_D est de 1.58. Ce rapport augmente avec les débits, ce qui traduit l'augmentation de l'influence de l'advection sur la dispersion. Lorsque ce rapport est suffisamment grand, la distribution devient uniforme, traduisant un déplacement préférentiellement advectif.

Une mesure des déplacements transverses a été effectuée pour un écoulement laminaire de débit 500 $ml.h^{-1}$ et est présentée Figure 5.7. Le propagateur obtenu est gaussien, le coefficient de

dispersion transverse a pu être mesuré (Figure 5.7b). Le coefficient de dispersion transverse est de $2.17 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. La température moyenne du laboratoire est comprise entre 20 et 25°C, soit des coefficients de diffusion moléculaire compris entre 2.02 et $2.29 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ (Holtz *et al.*, 2000). On peut donc en conclure que le déplacement transverse des molécules d'eau pour l'écoulement de 500 ml.h^{-1} dans la cellule 7.40 mm est de type uniquement diffusif. On vérifie donc l'absence de vitesse transversale, ce qui est caractéristique de l'écoulement de Poiseuille.

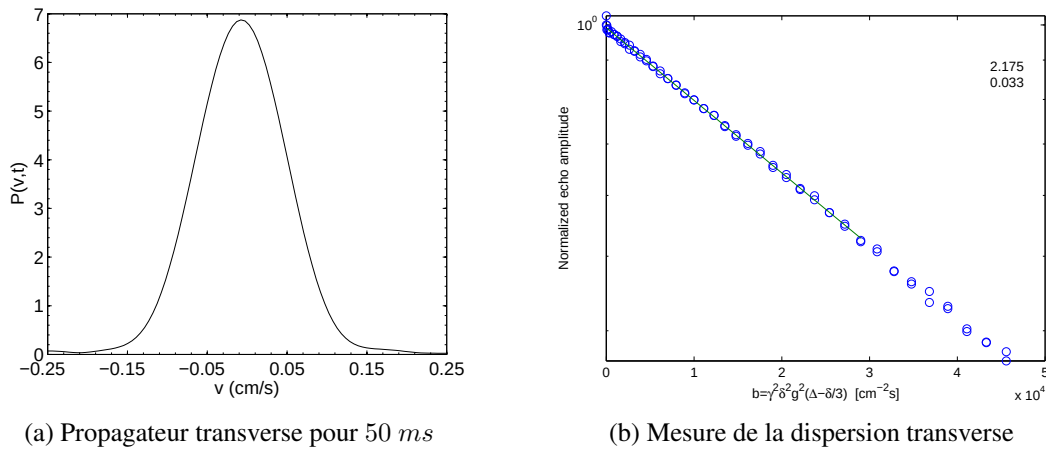


FIGURE 5.7 – Mesure de la dispersion transverse pour l'écoulement laminaire dans la cellule de 7.40 mm . Le débit d'eau additionnée de CuSO_4 est de 500 ml.h^{-1} . $t_\Delta = 50 \text{ ms}$. Le coefficient de dispersion obtenu est de $2.17 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$.

En dehors de la forme transitoire du propagateur non expliquée, l'obtention du propagateur longitudinal carré dans le cadre du régime asymptotique de dispersion valide la mesure du propagateur en écoulement. Cette validation est appuyée par l'observation d'un propagateur transverse gaussien donnant un coefficient de dispersion typique de la diffusion moléculaire, ce qui est caractéristique de la dispersion asymptotique pour un écoulement de Poiseuille dans un cylindre.

5.4 Répétitivité et erreurs sur les mesures RMN

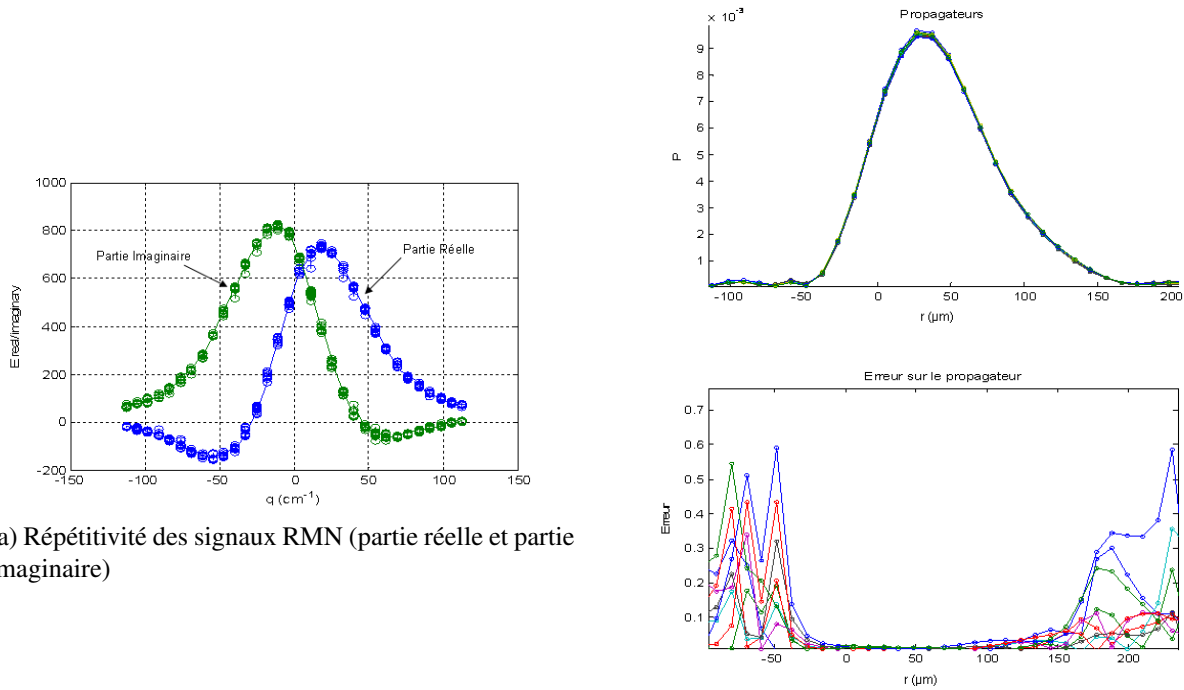
L'obtention du propagateur ayant été validé dans les parties précédentes, il faut maintenant quantifier la répétitivité et les erreurs sur les mesures expérimentales, notamment sur les vitesses moyennes calculées à partir du propagateur (équivalentes à la vitesse interstitielle de l'écoulement).

5.4.1 Répétitivité des mesures RMN

Des expériences de répétitivité des mesures RMN ont été effectuées sur les deux appareils RMN utilisés.

Dans le cas de l'appareil RMN 2MHz, la répétitivité des mesures a été établie pour le milieu de taille de grains $110 \mu\text{m}$ empilé dans une petite cellule et un écoulement de 500 ml.h^{-1} . La mesure de

déplacement a été répétée dix fois d'affilée. Les résultats pour $t_{\Delta} = 200 \text{ ms}$ sont présentés Figure 5.8. Ces mesures ont été réalisées pour d'autres t_{Δ} , celles-ci mènent aux mêmes conclusions. Les signaux RMN montrent de faibles variations (Figure 5.8a). Variations qui n'ont qu'une influence faible sur les propagateurs (Figure 5.8b).



(a) Répétitivité des signaux RMN (partie réelle et partie imaginaire)

(b) Répétitivité et erreurs sur les propagateurs

FIGURE 5.8 – Répétitivité des signaux RMN et erreurs sur les propagateurs pour l'appareil RMN 2MHz. Les signaux RMN montrent de faibles variations (Figure 5.8a), variations qui n'ont qu'une influence faible sur les propagateurs (Figure 5.8b). Le calcul des erreurs sur les propagateurs ($Erreur = \frac{\langle \overline{P(r)} - P(r) \rangle}{\overline{P(r)}}$) montre que les erreurs sont faibles pour la partie intéressante du propagateur (les grandes valeurs de P).

On définit les erreurs sur le propagateur de la façon suivante :

$$Erreur = \frac{\langle \overline{P(r)} - P(r) \rangle}{\overline{P(r)}} \quad (5.10)$$

où $\overline{P(r)}$ est la moyenne des propagateurs pour un déplacement r et $P(r)$ la valeur particulière d'un propagateur pour le même déplacement r .

Le calcul des erreurs sur les propagateurs montre que les erreurs sont faibles pour la partie intéressante du propagateur (les grandes valeurs de P). La superposition des propagateurs est quasi-parfaite. Les mesures sur l'appareil RMN 2MHz sont reproductibles.

Dans le cas de l'imageur 20 MHz, une expérience de mesure de déplacement dans la cellule de

7.40 mm pour un écoulement laminaire de débit de 500 ml.h^{-1} et un temps d'observation de 50 ms a été effectuée cinq fois d'affilée, et ce à deux reprises (séparées de quelques heures). Les mesures de répétabilité pour les mesures de cet appareil ont été réalisées sur l'écoulement laminaire permettant d'observer la distribution des vitesses uniforme (cf. paragraphe 5.3) afin de vérifier que ce propagateur particulier ne soit dû à des erreurs de mesures. Le signal RMN étant caractéristique, le calcul des erreurs a été directement réalisé sur celui-ci. La différence de protocole explique la difficile comparaison avec la mesure des erreurs sur l'appareil 2 MHz. Les signaux superposés présentés Figure 5.9 montrent toutefois que l'imageur 20 MHz produit un signal plus propre et plus reproductible que celui de l'appareil 2 MHz.

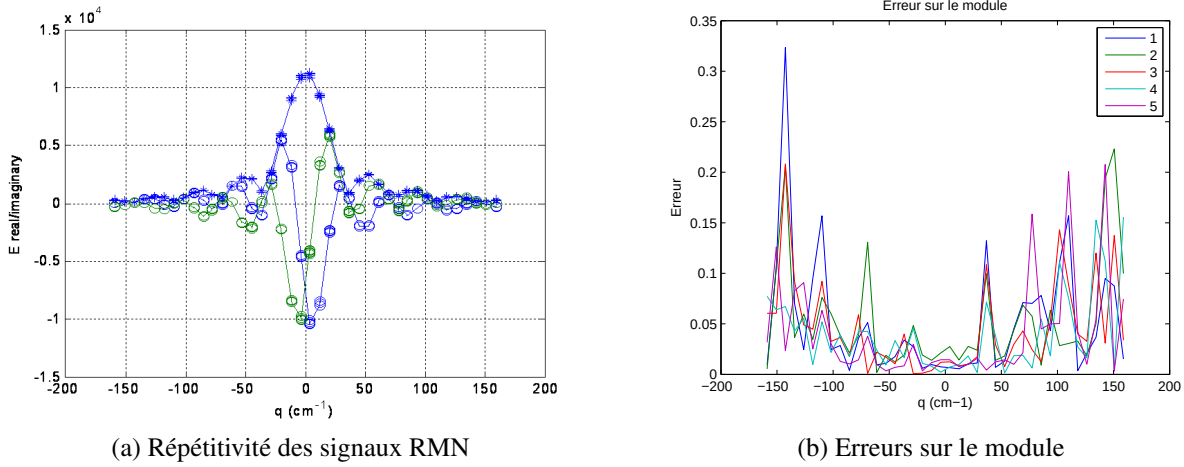


FIGURE 5.9 – Répétitivité des signaux RMN. Une expérience de mesure de déplacement dans la cellule de 7.40 mm pour un débit de 500 ml.h^{-1} et un temps d'observation de 50 ms a été effectuée cinq fois d'affilée, et ce à deux reprises. Cette figure présente les signaux RMN superposés (partie réelle, partie imaginaire et module) ainsi que les erreurs sur le module du signal RMN.

Les erreurs sur le module du signal RMN Mod sont définies de la façon suivante :

$$Erreur = \frac{\overline{Mod(q)} - Mod(q)}{\overline{Mod(q)}} \quad (5.11)$$

où $\overline{Mod(r)}$ est la moyenne des modules pour un seul q et $M(q)$ la valeur particulière d'un module pour q .

Les signaux RMN observés pour les différentes mesures sont identiques, à de très faibles variations près. Les erreurs sur les modules augmentent avec les valeurs de gradients et présentent des pics corrélés à des signaux faibles. Ces erreurs sont liées à l'augmentation de la part du bruit dans le signal.

5.4.2 Mesure des vitesses moyennes

Les mesures RMN permettent de calculer la vitesse moyenne $\langle v \rangle$ de l'écoulement de deux manières différentes : à partir du signal RMN avec le calcul de $\langle \xi \rangle$ le déplacement moyen, et à

partir du propagateur des déplacements par le calcul de l'intégrale du propagateur. Ces deux méthodes donnent des résultats quasi-identiques, toutefois, le calcul de la vitesse moyenne directement à partir du signal est plus fiable. Dans la suite du document les valeurs de vitesse moyenne mesurées par RMN sont obtenues directement à partir du signal.

Dans ce paragraphe, afin de valider le calcul de la vitesse moyenne à partir du signal, les valeurs expérimentales des vitesses moyennes sont comparées avec les valeurs des vitesses moyennes obtenues par la relation 5.12. Ce qui doit permettre de valider les algorithmes de calcul utilisés. La mesure de la vitesse moyenne de l'écoulement considéré a été effectué dans le cas d'écoulements saturés et insaturés sur un empilement de grains de SiC de $30\ \mu\text{m}$ (cellule de $27\ \text{cm}$ de long et $24.2\ \text{mm}$ de diamètre) dans l'imageur $20\ \text{MHz}$. Les vitesses théoriques sont obtenues par la relation suivante :

$$v_0 = \frac{Q}{S\phi} \quad (5.12)$$

où, Q est le débit de l'écoulement (débit envoyé par la pompe), S est la section de la cellule et ϕ la porosité de l'empilement.

Vitesse moyenne en fonction du temps d'observation : La Figure 5.10, montre l'évolution de la vitesse calculée par la méthode des moments $\langle v \rangle$ (normalisée par la vitesse de Darcy v_0) en fonction du temps d'observation t_Δ . Une variation de 4 % est observée pour les faibles temps d'observation. La variation observée diminue avec le temps et tend à devenir inférieure à 0.5 % à partir de $t_\Delta = 400\ \text{ms}$.

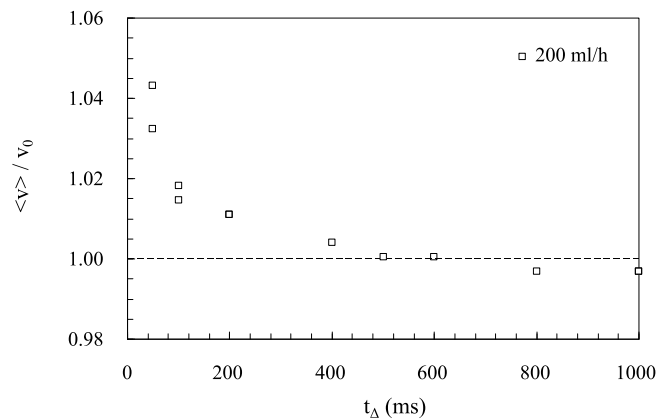


FIGURE 5.10 – Vitesse moyenne mesurée par RMN $\langle v \rangle$ normalisée par la vitesse moyenne théorique v_0 en fonction du temps. Une variation de 4% est observée pour les faibles temps, cette erreur diminue avec le temps d'observation et n'est plus que de 0.5 % à partir de $t_\Delta = 400\ \text{ms}$.

Pour les faibles temps d'observation, les valeurs de gradients utilisées sont plus élevées. Or les fortes valeurs de gradients entraînent une erreur plus importante sur la mesure des déplacements que les faibles gradients, ce qui explique la diminution de l'erreur sur la vitesse moyenne avec la diminution des gradients.

Par ailleurs, pour les faibles déplacements (c-a-d les faibles temps d'observation), les molécules se trouvant proches des parois du milieu poreux, et donc se déplaçant lentement, sont soumises aux

gradients internes de l'échantillon, ce qui engendre un déphasage légèrement différent des molécules dans ces zones et donc une sous représentation des faibles vitesses d'écoulement. Lorsque le temps augmente, la dispersion mécanique et la diffusion moléculaire tendent à homogénéiser les parcours des molécules, celles-ci ont échantillonnées l'ensemble du milieu poreux (Scheven *et al.*, 2008, 2004, Mitchell *et al.*, 2008) et des différents environnements liés aux gradients internes, ce qui explique l'asymptote vers la vitesse théorique.

La variation engendrée par ce phénomène reste très faible (de l'ordre de 4 %), il n'est donc pas nécessaire d'effectuer une correction pour le calcul du moment d'ordre deux. De plus, la mesure du propagateur ayant été validé par la mesure de diffusion moléculaire, et par l'étude d'un écoulement laminaire dans un cylindre, l'influence de ce phénomène sur la mesure du propagateur est considérée comme négligeable.

Vitesse moyenne en fonction du débit et à temps d'observation fixe : En prenant pour valeur de $\langle v \rangle$, la valeur asymptotique mesurée, on montre que les vitesses mesurées sont parfaitement corrélées aux vitesses théoriques v_0 (Figure 5.11).

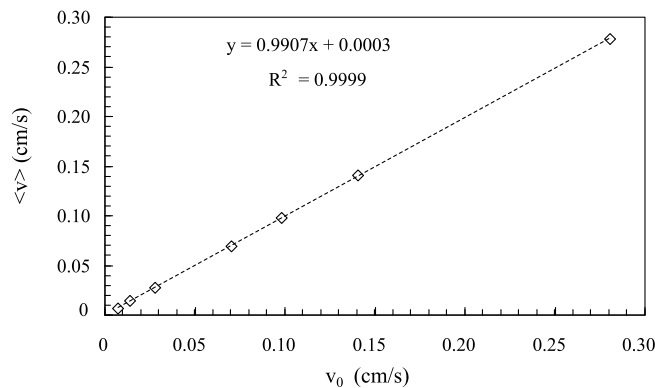


FIGURE 5.11 – Vitesse mesurée en fonction de la vitesse théorique, calage par une droite : v_0 vitesse de Darcy (Équation 5.12). ($\diamond$) $\langle v \rangle$ vitesses mesurées par RMN. (—) équation linéaire calant les points expérimentaux. L'erreur sur la pente de la droite calée est de 0.29 % et le coefficient de détermination R^2 montre que le calage est de très bonne qualité.

Le calage d'une équation linéaire avec les points représentant la vitesse mesurée par RMN $\langle v \rangle$ en fonction de la vitesse théorique associée v_0 montre une excellente correspondance (Figure 5.11), l'erreur sur la pente de la droite calée est de 0.29 % et le coefficient de détermination R^2 montre que le calage est de très bonne qualité.

Conclusion sur la mesure de la vitesse moyenne par RMN : La mesure quantitative des vitesses moyennes à partir du signal RMN engendré par les séquences de vélocimétrie valident ces séquences ainsi que les traitements du signal utilisés. Il existe une légère déviation aux faibles temps due à l'effet des forts gradients de champ et des gradients internes de l'échantillon. Cette déviation est négligeable.

5.5 Validation des expériences de traceur par RMN

Cette section présente la validation des expériences de traceur. Celle-ci a pour but de vérifier que la mesure des courbes de percées est, sinon quantitative, au moins qualitative. La méthode expérimentale utilisée pour effectuer des expériences de traceur par RMN est décrite au paragraphe 3.5.6. La validation des expériences de traceur a été effectuée sur l'empilement de grains de SiC de $30\ \mu m$ (présentée paragraphe 5.6.1). La tranche de milieu poreux choisie pour mesurer la dispersion du traceur est située à $8.5\ cm$ de l'entrée de la colonne, la colonne étant en position verticale. Le volume de pore (V_p) est pris comme étant le volume poreux des $8.5\ cm$ d'empilement précédant la zone de mesure.

L'évolution de la concentration en Deutérium dans la tranche en fonction du volume d'eau injecté normalisé par le volume de pore pour une injection de bas en haut du traceur lors d'un écoulement de débit $100\ ml.h^{-1}$ est présentée Figure 5.12. Dans un milieu homogène comme l'empilement de grains considéré, la dispersion attendue est gaussienne centrée sur le temps moyen que met le traceur pour atteindre la zone de mesure à la vitesse moyenne de l'écoulement. La courbe présente une trainée, la fin du nuage de traceur met plus de temps que prévu à passer par la zone de mesure. De plus sa première arrivée dans la zone de mesure est rapide, la concentration augmentant très rapidement. Dans un milieu homogène saturé comme l'empilement de grains utilisé, on s'attend à ce que la dispersion soit gaussienne. Or on observe une trainée et un front nets. Une partie du Deutérium subit un retard et le front du nuage se disperse moins vite qu'attendu.

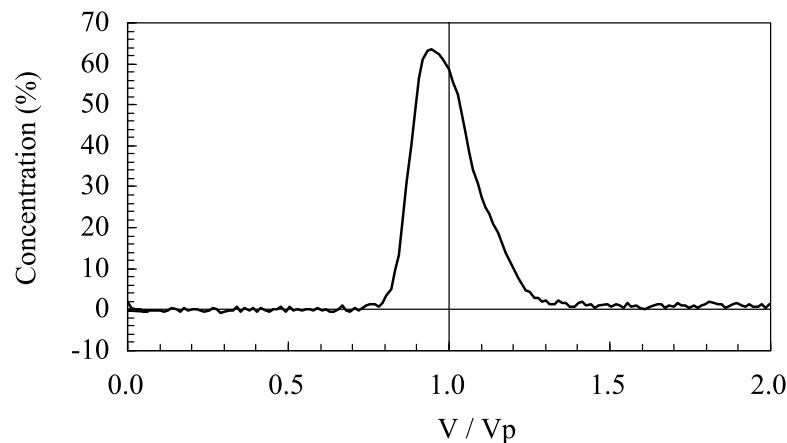


FIGURE 5.12 – Concentration de traceur à la position de mesure en fonction du volume injecté (normalisé par le volume de pore partiel) par le bas de la colonne. Le volume de pore partiel est le volume poreux de l'empilement allant de l'entrée de la colonne à la zone de mesure. La courbe présente une trainée, la fin du nuage de traceur met plus de temps que prévu à passer par la zone de mesure. Le front de traceur arrivant à la zone de mesure est faiblement dispersé.

La même expérience a été réalisée en injectant le traceur du haut vers le bas de la colonne (Figure 5.13), donc en inversant l'écoulement et en mesurant dans la même zone de mesure soit cette fois ci à $18.5\ cm$ de l'entrée de la colonne. Le traceur arrive de manière accélérée à la zone de mesure. Une partie du nuage de traceur arrive de manière anticipée. Cet effet de percée est dû à la différence de

densité entre le Deutérium et l'eau. Le passage de la fin du traceur dans la zone de mesure est abrupte. Le traceur est faiblement dispersé à la fin du nuage, la courbe de percée est de forme analogue à celle obtenu par injection de bas en haut mais inversée, ce qui corrobore l'explication des différences de densité. Ces résultats trahissent une sédimentation du traceur dans l'eau. Cette sédimentation est expliquée par la différence de densité à 30 °C entre le Deutérium ($d_{D_2O} = 1.105$) et l'eau ($d_{H_2O} = 0.998$).

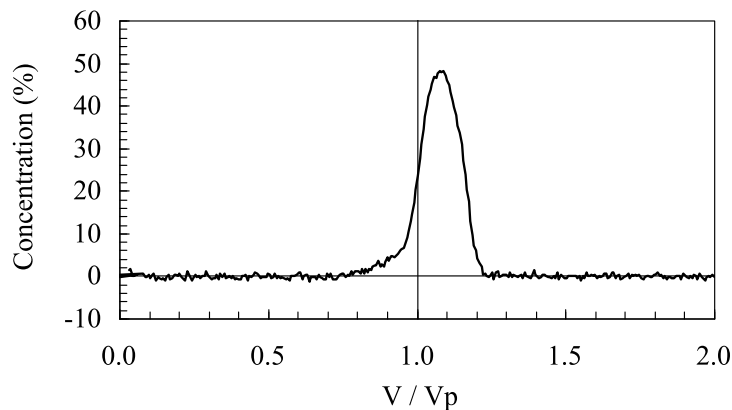


FIGURE 5.13 – Concentration de traceur à la position de mesure en fonction du volume injecté (normalisé par le volume de pore partiel) par le haut de la colonne. Une partie du nuage de traceur arrive de manière anticipée à la zone de mesure. Cet effet de percée est dû à la différence de densité entre le Deutérium et l'eau. Le passage de la fin du traceur dans la zone de mesure est abrupte. Le traceur est faiblement dispersé à la fin du nuage, ce qui corrobore l'explication des différences de densité.

Afin de vérifier ce point, il a été choisi d'effectuer le traçage dans une saumure afin d'équilibrer les densités. Une saumure de $NaCl$ à 150g/L a été préparée. Cette saumure a une densité de 1.135 à 30 °C. Le résultat de l'expérience de traceur de Deutérium dans un écoulement de saumure à 100 $ml.h^{-1}$ est présenté Figure 5.14. La courbe de concentration présente une forme double avec une première bosse de faible amplitude arrivant en avance à la zone de mesure suivie par une second bosse de forme approximativement gaussienne en retard par rapport à la vitesse moyenne.

Il a été montré que la présence du double pic est due à une mauvaise orientation de la pièce en T reliant l'arrivée d'eau, la dérivation du traceur et l'entrée de la cellule (Figure 5.15 a) du montage expérimental. Cette orientation du T favorise le mélange entre le traceur sortant de la dérivation et l'eau stagnant dans le canal initial. L'orientation initiale du T (Figure 5.16a) engendrait un brassage du début du bouchon de Deutérium et donc une dispersion avant même l'entrée dans la colonne, ce qui explique le double pic observé (Figure 5.14). La réorientation de ce T (Figure 5.16b) a permis de supprimer cette dispersion anormale du bouchon de traceur avant l'entrée dans la colonne. Les résultats obtenus sont présentés Figure 5.17. L'évolution de la concentration en fonction du volume injecté normalisé par le volume de pore est une gaussienne centrée sur l'injection d'un volume de pore de fluide. En milieu saturé la dispersion du traceur est gaussienne.

Brenner (1962) as développé un modèle, basé sur l'ADE, calant les courbes de percées d'une

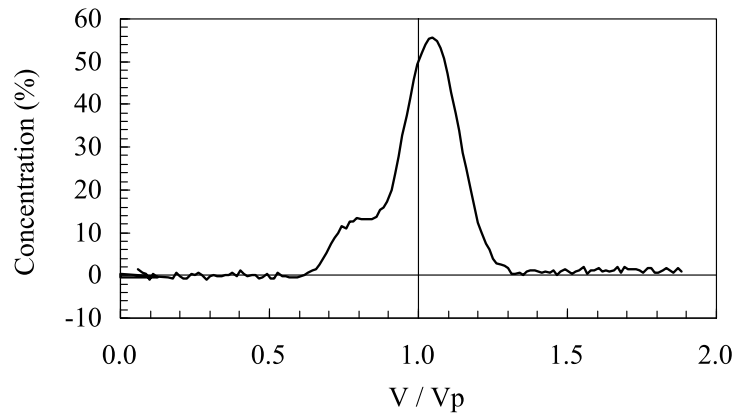


FIGURE 5.14 – Résultats de l'expérience de traceur dans une saumure 150 g/l pour un débit de 100 ml.h⁻¹.

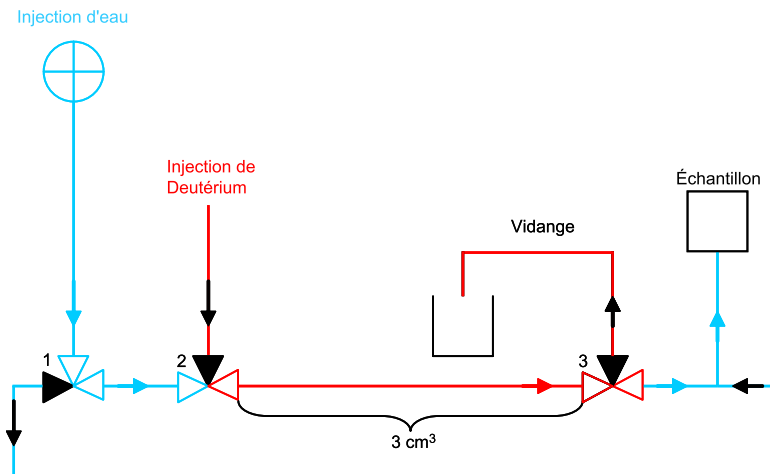


FIGURE 5.15 – Montage amélioré d'injection de traceur en milieu poreux.

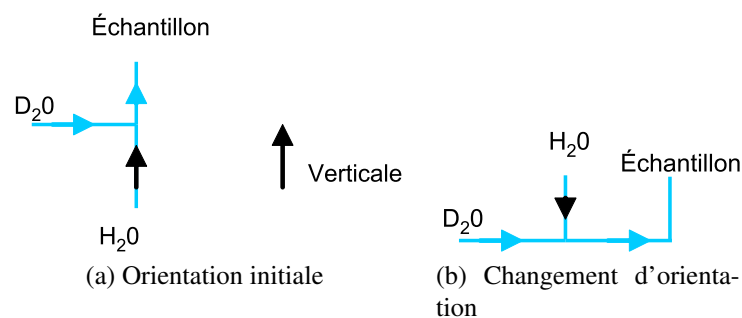


FIGURE 5.16 – Changement de l'orientation d'une jonction de tuyaux en T dans le montage d'injection du traceur.

expérience de traceur en milieu homogène semi-infini. Ce modèle permet d'obtenir le coefficient de dispersion D à partir d'une expérience de traceur. Brenner (1962) a montré que la concentration local asymptotique $C(l, t)$, à une longueur l de l'entrée pour un écoulement de vitesse $\langle v \rangle$ et un

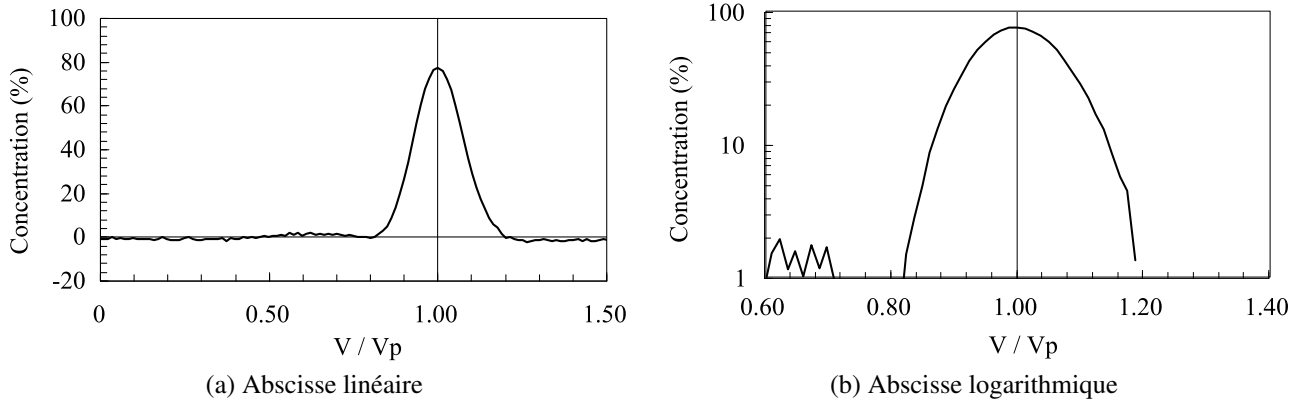


FIGURE 5.17 – Résultats de l'expérience de traceur dans l'empilement de grains de SiC de 30 μm pour un débit de 100 $ml.h^{-1}$ après ajustement des densités et modification du montage.

coefficient de dispersion D , dans ce type de modèle, avec pour conditions une diffusion moléculaire du traceur à l'entrée du système :

$$l = 0 : C = 1 + \frac{D}{\langle v \rangle} \frac{\partial C}{\partial l} \quad (5.13)$$

$$l \rightarrow \infty : C = 0 \quad (5.14)$$

est donnée par :

$$C(l, t) = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left(\frac{l - \langle v \rangle t}{2\sqrt{Dt}} \right) + \frac{\langle v \rangle t}{\sqrt{\pi Dt}} \exp \left(- \left(\frac{l - \langle v \rangle t}{2\sqrt{Dt}} \right)^2 \right) - \frac{1}{2} \left[\frac{\langle v \rangle}{D} (l + \langle v \rangle t) + 1 \right] \exp \frac{\langle v \rangle l}{D} \operatorname{erfc} \left(\frac{l + \langle v \rangle t}{2\sqrt{Dt}} \right) \quad (5.15)$$

Les calages des résultats expérimentaux par l'équation présentée ci-dessus sont retranscrits Figure 5.18. Le calage, par le modèle de Brenner (1962), des résultats obtenus pour des débits de 50 et 100 $ml.h^{-1}$ ($\langle v \rangle = 7.1 \cdot 10^{-3} \text{ cm/s}$ et $\langle v \rangle = 1.43 \cdot 10^{-2} \text{ cm/s}$) donnent respectivement pour valeur de coefficient de dispersion $D = 1.9 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ et $D = 3.1 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$. Or pour des débits équivalents, les mesures locales de vélocimétrie par RMN donnent des valeurs de coefficient de dispersion de $1.6 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ et de $2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ (cf. Paragraphe 6.2.2.1) et le coefficient de diffusion moléculaire du Deutérium est légèrement plus faible que celui de l'eau (cf. paragraphe 3.5.3.2). La dispersion du Deutérium obtenue est plus élevée (facteur 10) que la dispersion des molécules d'eau dans le milieu, ce qui ne peut pas s'expliquer par la différence des diffusions moléculaires.

Cette dispersion augmentée est due à la dispersion du traceur dans le tube d'injection. Ce tube a un diamètre interne $d = 0.16 \text{ cm}$, sa longueur est $L = 5 \text{ cm}$. Dans le cas de l'écoulement de Deutérium à un débit de 50 $ml.h^{-1}$ (débit utilisé pour les expériences d'écoulements insaturés), la

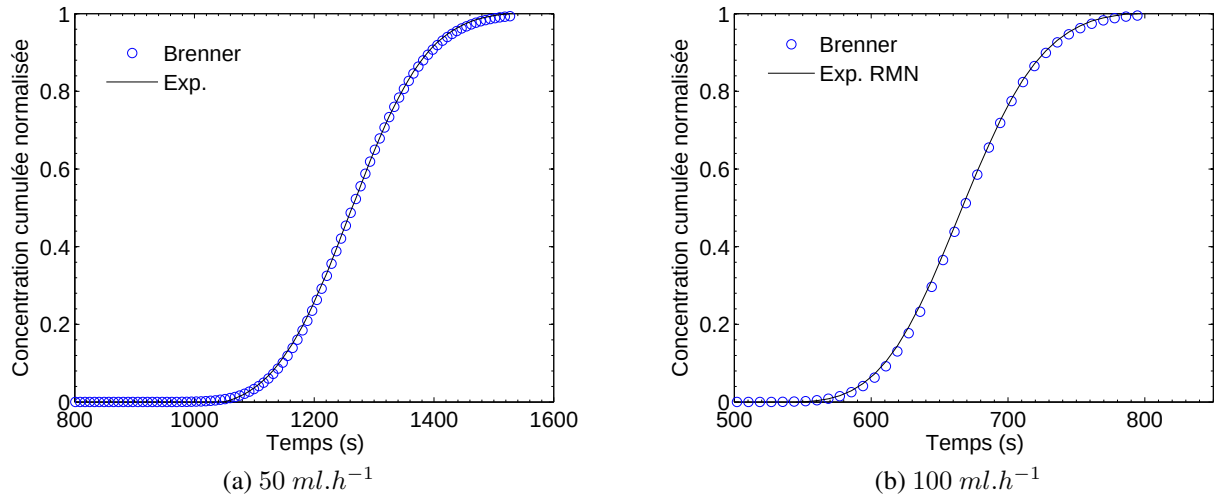


FIGURE 5.18 – Courbe de percées et calage par les modèles de Brenner (1962), Brigham (1974) : Deux débits 50 et 100 $ml.h^{-1}$, vitesses respectives $\langle v \rangle = 7.1 \cdot 10^{-3} \text{ cm/s}$ et $\langle v \rangle = 1.43 \cdot 10^{-2} \text{ cm/s}$. Les coefficients de dispersion obtenus sont $D = 1.9 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ et $D = 3.1 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$.

La vitesse dans ce tube est de 0.69 cm/s . Le nombre de Reynolds et le nombre de Peclet basés aussi sur le diamètre du tube, sont respectivement de 9.75 et de 737.9. L'écoulement est laminaire, et la dispersion du traceur dans ce tube est fortement dominée par la dispersion mécanique. Le régime de Taylor n'est pas établi. Van Den Broeck (1982) montre que, dans le cas où $\frac{\langle v \rangle}{l} \ll \frac{d^2}{4 D_m}$, ce qui est le cas dans notre expérience, le coefficient de dispersion D peut s'écrire sous la forme :

$$D = D_m + \frac{1}{6} \langle v \rangle^2 t + \frac{4}{3} \frac{\langle v \rangle^2}{d^2} t^2 + \dots \quad (5.16)$$

Le calcul de D à partir de cette formule et pour les termes inférieurs à l'ordre 3 donne $D = 4.5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. La dispersion dans le tuyau d'entrée est nettement supérieure à la dispersion dans le milieu poreux, ce qui explique le coefficient de dispersion obtenu à partir du modèle de Brenner (1962).

Toutefois, si la dispersion mécanique dans le tube d'entrée augmente d'un facteur 10 la dispersion du nuage de traceur, elle ne semble pas influencer de manière rédhibitoire la forme des courbes de percées. En effet, en milieu saturé nous observons des courbes de percées symétriques, et en milieu insaturé des courbes de percées fortement non symétriques. La dispersion du traceur dans le tube d'entrée n'efface pas la dispersion engendrée par le milieu poreux. Les courbes de percée seront donc exploitées de manière qualitative, en gardant à l'esprit ce phénomène important de dispersion dans le tube d'injection de Deutérium qui reste non quantifié.

5.6 Caractérisation des empilements utilisés

Les empilements de SiC en petite colonne sont décrits Paragraphe 3.5.3.1 et sont entièrement caractérisés par Fleury et Azancheev (2006). Les milieux comme les empilements en grande colonne de grains de SiC de taille $30\ \mu m$ et de grains de sable de Fontainebleau de taille $80\ \mu m$ ont eux été empilés et caractérisés durant la thèse. Les caractéristiques de ces milieux sont importantes pour la compréhension et l'analyse des résultats. Des mesures de temps de relaxation T_1 et T_2 , de profil de porosité et de perméabilité ont été effectuées sur ces empilements.

5.6.1 Empilement de SiC en grande colonne

Les grains de SiC empilés dans la grande colonne ont une taille moyenne de $30\ \mu m$. Les temps de relaxation T_2 de cet empilement sont d'abord présentés, la mesure de la perméabilité de l'empilement est ensuite décrite. Enfin, des mesures de la porosité le long de l'empilement sont présentées et discutées.

5.6.1.1 Temps de relaxation T_2

Le temps de relaxation transverse T_2 (cf. Paragraphe 2.2), est de $294\ ms$ dans l'empilement saturé, pour une vitesse d'écoulement nulle. Le temps de relaxation T_2 est proportionnel au rapport V/S du milieu poreux (V étant le volume de la phase eau et S la surface des grains). Ce qui explique que T_2 diminue lorsque diminue la saturation (l'eau étant le fluide mouillant), le T_2 pour une saturation en eau de 46% (débit d'eau de $50\ ml.h^{-1}$) est, par exemple, de $177\ ms$ (Figure 5.19).

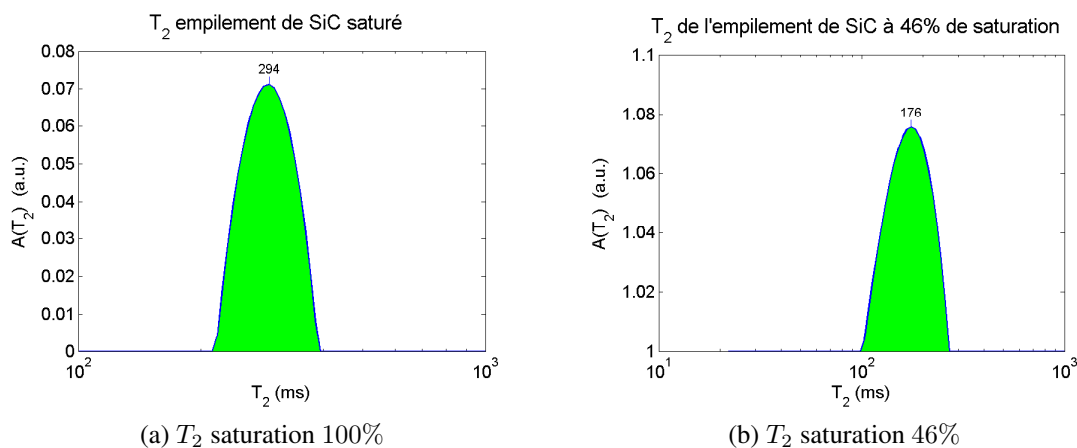


FIGURE 5.19 – Temps de relaxation transverse T_2 et effet de la saturation. $A(T_2)$ est l'amplitude de la distribution de T_2 .

La distribution des temps de relaxation T_2 dans le milieu poreux, quelle que soit la saturation, est quasi-exponentielle (Figure 5.19) et de largeur constante et faible ($2 \cdot 10^2\ ms$). Les environnements

de relaxation transverse en milieux saturés et insaturés sont équivalents et connectés par diffusion moléculaire. Le milieu est homogène du point de vue de la relaxation.

5.6.1.2 Perméabilité

La perméabilité K est calculée à partir de la loi de Darcy (Darcy, 1856) :

$$K = \frac{\mu L}{S} \frac{Q}{\Delta P} \quad (5.17)$$

où K est la perméabilité de l'empilement en milliDarcy (mD), μ est la viscosité cinématique du fluide, L est la longueur de l'empilement, S est la section de l'empilement, Q est le débit de fluide injecté et ΔP est le différentiel de pression entre l'entrée et la sortie de l'empilement.

Pour mesurer la perméabilité d'un empilement poreux, une mesure du différentiel de pression entre l'entrée et la sortie de la colonne ΔP en fonction du débit Q est effectuée (Figure 5.20).

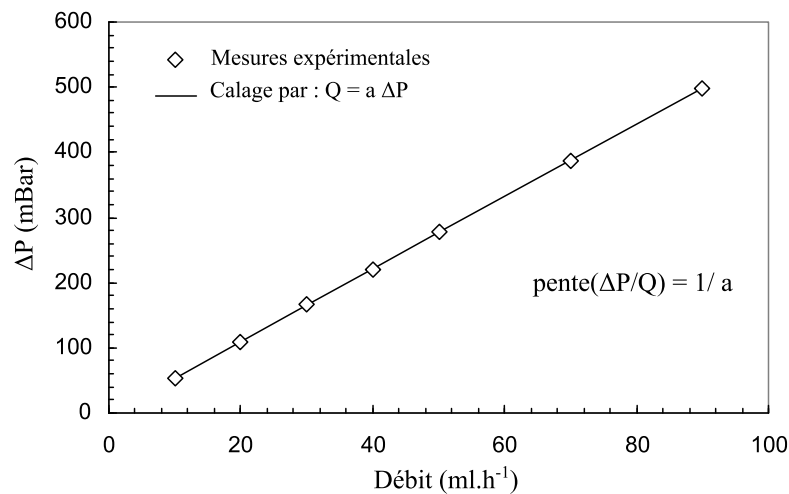


FIGURE 5.20 – Mesure de la perméabilité de l'empilement de grains : (◇) points expérimentaux. (—) calage par une équation linéaire de formule $Q = a\Delta P$. La perméabilité obtenue est 296.4 *mDarcy*.

Cette mesure est calée avec une droite d'équation :

$$Q = a\Delta P \quad (5.18)$$

Dans ce cas :

$$K = a \frac{\mu L}{S} \quad (5.19)$$

Or, μ , S et L sont connus. La perméabilité obtenue est de 296.4 *mDarcy*. Cette perméabilité est équivalente à celle de l'empilement dans la petite colonne constitué de grains de SiC de 30 μm (cf. paragraphe 3.5.3.1).

5.6.1.3 Porosité

La porosité de l'empilement de SiC a été mesurée par les trois méthodes présentées paragraphe 5.2. La porosité moyenne mesurée par pesée est de 43 %. Le profil de porosité mesuré par RMN le long de la colonne est présenté Figure 5.21, la valeur moyenne corrigée de la porosité étant de 43 %.

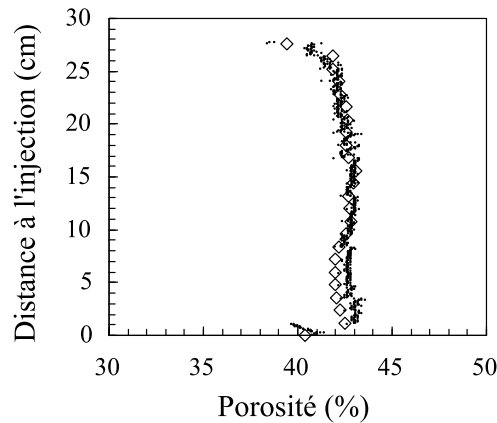


FIGURE 5.21 – Profil de porosité corrigé : · mesure du profil de porosité, ◇ mesure de la porosité moyenne dans une tranche.

Le profil est stable le long de la colonne avec des variations n'excedant pas 2 %. Les zones proches de l'entrée et de la sortie de la colonne sont légèrement moins poreuses. Le tassement lors de l'empilement explique cette porosité moins importante.

5.6.2 Empilements de sable de Fontainebleau 80 μm en grande colonne

Le temps de relaxation T_2 dans la colonne de grains de sable de Fontainebleau est de 237 ms et monodisperse (Figure 5.22). Le temps de relaxation T_1 est de 600 ms.

La perméabilité est mesurée par la méthode décrite au paragraphe 5.6.1.2, et est de 5014 mD. Ce milieu est beaucoup plus perméable que l'empilement de SiC effectué dans la même colonne.

Le profil de porosité est stable à plus ou moins 1% de porosité et la valeur moyenne non corrigée est de 36% (Figure 5.23), la valeur corrigée est de 39%.

5.7 Conclusion

Les séquences RMN de vélocimétrie avec et sans sélection de tranche ont été validées de manière quantitative par la mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau. Ces séquences permettent d'obtenir des précisions sur les déplacements moyens ou les vitesses moyennes de moins de 1 %. Les valeurs de vitesse moyenne déterminées par RMN sont cohérentes avec celles imposées par la pompe à 1 % près, à l'exception des faibles temps d'observation où une déviation de 4 % est observée.

Les propagateurs d'un écoulement laminaire dans une cellule cylindrique de faible diamètre ont été mesurés et montrent la forme rectangulaire souhaitée si le débit, ou le temps, est suffisamment

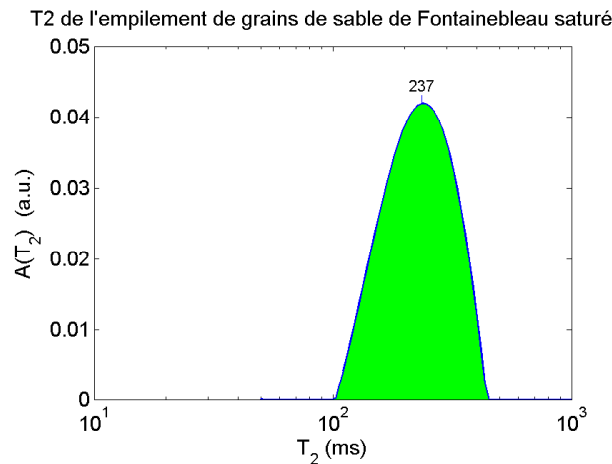


FIGURE 5.22 – Distribution des temps de relaxation transverse T_2 dans l'empilement de grains de sable de Fontainebleau saturé en eau. $A(T_2)$ est l'amplitude de la distribution de T_2 .

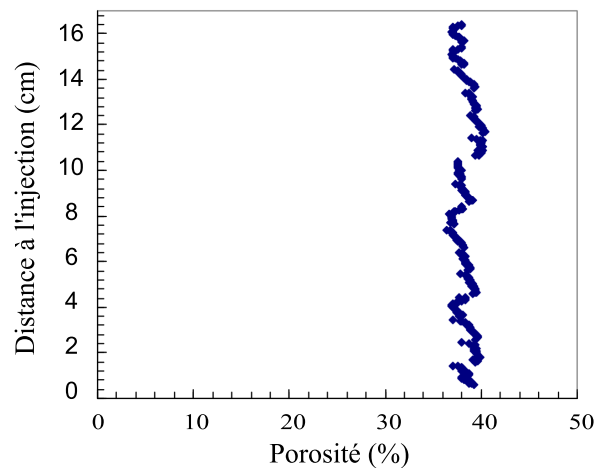


FIGURE 5.23 – Profil de porosité corrigé d'une partie de l'empilement de grains de sable de Fontainebleau (de 0 à 16 cm de l'entrée de la colonne).

grand. L'imageur 20 MHz a été étalonné par la mesure du coefficient de diffusion moléculaire de l'eau. Ces validations sont essentielles et montrent la fiabilité et les possibles biais des résultats RMN. Elles permettent de mieux comprendre les incertitudes et marges d'erreurs liées à ces mesures RMN complexes.

La mesure de la porosité par RMN à l'aide de l'imageur 20 MHz a permis de constater et d'expliquer les erreurs de 3 – 4 % observées sur la mesure de la porosité par RMN. Les expériences de traceur se sont montrées délicates et il est nécessaire d'ajuster la densité de l'eau par ajout de sel. Bien que la concentration au cours du temps soit bien mesurée avec un faible bruit, les coefficients de dispersion mesurés sont surestimés par rapport à la dispersion obtenue par vélocimétrie et dépendent de la dispersion du tuyau d'entrée nécessaire à l'injection du Deutérium. La dispersion gaussienne des molécules d'eau dans le milieu poreux saturé est toutefois retrouvée. Ces mesures seront donc utili-

sées de manière qualitative. Une amélioration ultérieure du montage expérimentale devrait permettre de diminuer l'influence des tuyaux d'injection de traceur.

Les mesures RMN étant validées, le chapitre suivant présentera les résultats des mesures de dispersion par RMN dans divers empilements de grains saturés.

Chapitre 6

Résultats sur des milieux saturés

Sommaire

6.1 Empilements de grains de SiC de différentes tailles	114
6.1.1 Évolution du propagateur en fonction du temps	114
6.1.2 Évolution du propagateur en fonction du milieu, à temps et débit fixés . . .	115
6.1.3 Régime pré-asymptotique transitoire	116
6.1.4 Passage au régime asymptotique	117
6.1.5 Conclusion	119
6.2 Mesures sur des empilements dans une grande colonne	119
6.2.1 Empilement de sable de Fontainebleau	120
6.2.2 Empilement de grains de SiC de 30 μm	123
6.2.2.1 Dispersion longitudinale	123
6.2.2.2 Dispersion transverse	129
6.3 Expériences de traceur	131
6.4 Conclusion	132

Dans ce chapitre sont présentés les résultats expérimentaux des mesures RMN sur des milieux poreux saturés en eau. L'étude des écoulements monophasiques en milieu poreux homogène doit permettre de mieux comprendre les différents régimes de dispersion, notamment pré-asymptotique et asymptotique, et de décrire de manière avancée la dispersion aux échelles de temps et d'espace propres à la RMN dans un cadre simple. Ces mesures servent de prélude et de base de comparaison à l'étude des écoulements diphasiques dans le même type de milieu. Elles doivent permettre de choisir le milieu qui sera utilisé pour étudier les écoulements diphasiques ainsi que les conditions expérimentales qui seront utilisées.

L'étude des déplacements longitudinaux et de la dispersion liée à ces mouvements ont été réalisées dans plusieurs milieux : des milieux de SiC de tailles différentes (Section 6.1) qui permettent d'explorer les différents régimes de dispersion, et des empilements de grains en grande colonne à double entrée (Section 6.2) pour étudier la dispersion dans des empilements qui pourront être utilisés pour étudier la dispersion en écoulements diphasiques. La dispersion transverse dans un empilement

de grains de SiC en grande colonne a été étudiée (Paragraphe 6.2.2.2) pour les mêmes raisons. En complément des mesures RMN locales de dispersion, des expériences classiques de traceur dans cet empilement ont été réalisées et sont présentées en fin de chapitre (Section 6.3). Ces mesures de traceur ont pour but de relier les expériences de RMN à une approche classique de mesure de la dispersion.

6.1 Empilements de grains de SiC de différentes tailles

Cette section regroupe les résultats des mesures RMN sur les empilements de grains de 6 *cm* de long et de 40 *mm* de diamètre (petite colonne) réalisés à l'aide d'un appareil RMN 2 *MHz*. Les empilements sont décrits Chapitre 5 Paragraphe 3.5.3.1 et sont constitués de grains de tailles identiques. On dispose de 7 milieux différents contenant respectivement des grains de taille 8, 18, 30, 50, 80 et 110 μm . Ces milieux ont une structure similaire aux différences de taille de grains près.

Ces séries de mesures sur des empilements de grains de différentes tailles ont été effectuées pour étudier un large éventail de conditions expérimentales. Elles doivent permettre d'étudier de manière approfondie les régimes de dispersion pré-asymptotique et asymptotique ainsi que leur transition. L'autre objectif est d'arriver à définir les valeurs des critères d'établissement du régime asymptotique de dispersion de Scheven pour le type d'empilements utilisés.

6.1.1 Évolution du propagateur en fonction du temps

Les propagateurs d'un écoulement de débit 500 $ml.h^{-1}$ dans l'empilement de grains de SiC 110 μm , pour des temps d'observation allant de 50 à 500 *ms*, sont présentés Figure 6.1. Les déplacements ξ sont normalisés par la taille de grain d_g .

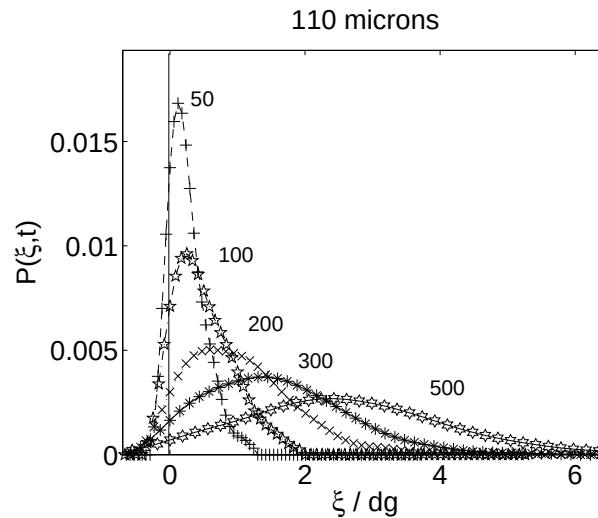


FIGURE 6.1 – Évolution du propagateur pour une taille de grain de 110 μm et une vitesse moyenne de 520 $\mu m.s^{-1}$ en fonction du temps d'observation t_{Δ} (en *ms*).

Les propagateurs observés sont asymétriques avec des trainées vers les grands déplacements et une

partie négative non négligeable. Il existe donc une probabilité non nulle que les molécules de traceur "reculent". Cette possibilité de déplacement à contre-courant est due à la diffusion moléculaire et à la tortuosité du milieu. Les nombres de Reynolds étant faibles ($Re \ll 1$), le régime d'écoulement est celui de Stokes, il n'y a donc pas de recirculation de fluide possible (Guyon *et al.*, 2001). Pour les déplacements plusieurs fois supérieurs à la taille de pore, le propagateur tend à devenir gaussien. La disparition progressive de l'asymétrie des propagateurs est typique du régime de dispersion pré-asymptotique (Lebon *et al.*, 1996, 1997, Manz *et al.*, 1999).

6.1.2 Évolution du propagateur en fonction du milieu, à temps et débit fixés

Les propagateurs dans les différents milieux, pour un débit constant et à un temps t_Δ fixé, peuvent être comparés entre eux. La Figure 6.2 montre les différents propagateurs en fonction du déplacement non normalisé.

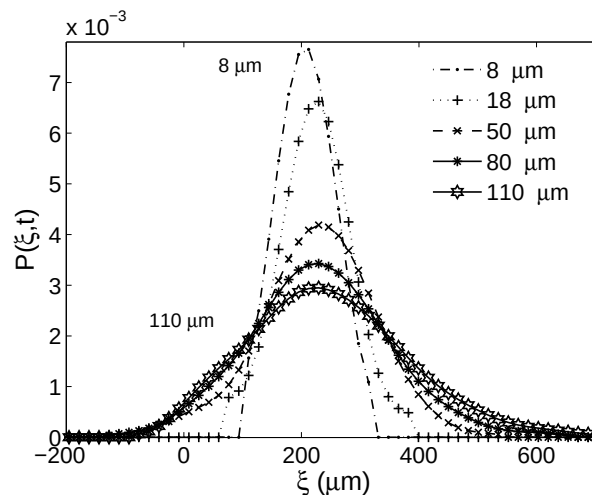


FIGURE 6.2 – Propagateurs dans chaque milieu exprimés en fonction du déplacement non normalisé avec $t_\Delta = 500 \text{ ms}$ et $Q = 500 \text{ ml.h}^{-1}$.

Les propagateurs (Figure 6.2) montrent que le déplacement moyen $\langle \xi \rangle$ est identique pour tous les milieux, aux différences de porosité près. Ils permettent aussi d'observer l'effet du nombre de pores "vus" par les molécules d'eau pendant la durée du déplacement : plus les molécules de traceur "visitent" le milieu poreux (c-a-d traversent de pores différents), plus les statistiques globales des molécules de traceur tendent vers leurs valeurs limites. Ici, cet effet se traduit par le resserrement du propagateur autour du déplacement moyen lorsque la taille des grains diminue.

Les mêmes résultats exprimés cette fois-ci en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains (c-a-d de pores), sont présentés Figure 6.3. Lorsque la taille de pores diminue, le nombre de pores visités durant le temps d'observation et la dispersion (assimilable à la largeur du propagateur) augmente (Figure 6.3).

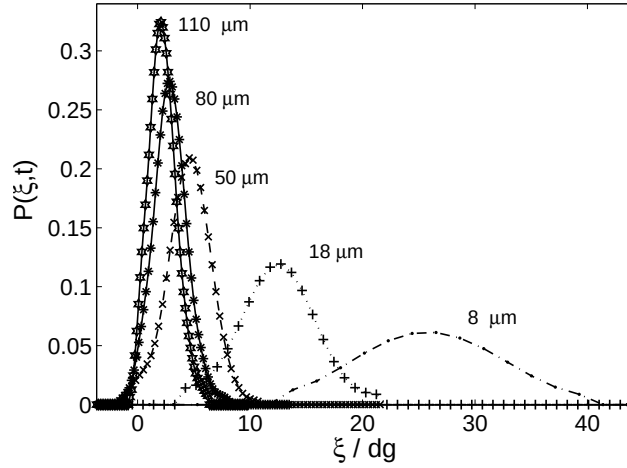


FIGURE 6.3 – Propagateurs exprimés en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains (i.e la taille de pores), pour chaque milieu, avec un temps d'observation de 500 *ms*.

6.1.3 Régime pré-asymptotique transitoire

Les propagateurs pour un écoulement de 500 *ml.h*⁻¹ dans l'empilement de 80 *μm* et différents temps d'observation t_{Δ} sont présentés Figure 6.4. Les propagateurs pour des faibles temps d'observation sont fortement asymétriques et présentent une trainée vers les grands déplacements (Figure 6.4a). Puis, à mesure que le temps d'observation augmente, les propagateurs tendent à devenir symétriques (Figure 6.4b). La transition entre propagateurs asymétriques et propagateurs gaussiens est typique de la transition entre régime de dispersion pré-asymptotique et régime de dispersion asymptotique gaussien. Ces résultats mettent clairement en évidence l'appartenance des propagateurs asymétriques observés au régime pré-asymptotique.

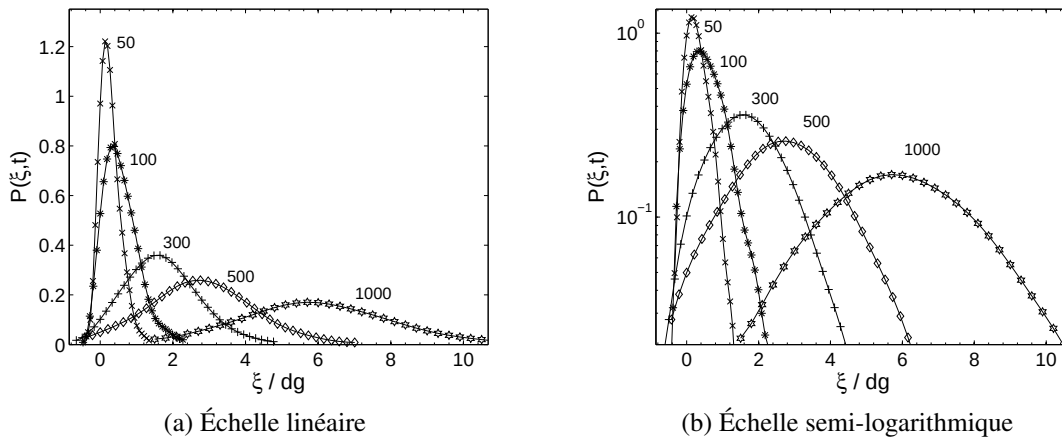


FIGURE 6.4 – Évolution du propagateur pour une taille de grain de 80 *μm* et un débit de 500 *ml.h*⁻¹ en fonction du temps d'observation t_{Δ} (en *ms*) : en échelle linéaire (a), et semi-logarithmique (b).

L'obtention du régime de dispersion asymptotique gaussien nécessite que les molécules d'eau

aient visité suffisamment de pores, c'est-à-dire qu'elles aient suffisamment échantillonné le champ de vitesse. Ainsi, lorsque les temps sont trop faibles, la dispersion typique du régime asymptotique n'est pas observée. La forme des propagateurs du régime pré-asymptotique est proche d'une loi log-normale, typique d'un champ de vitesse en milieu poreux homogène.

On retrouve le régime pré-asymptotique dans tous les empilements. À temps d'observation et débits identiques, le propagateur de déplacement est plus fortement asymétrique pour de grandes tailles de grains. Le régime pré-asymptotique dépend fortement de la taille de grains. Ce régime n'est quasiment plus observé (pour les temps d'observation utilisés) dans le milieu de $8 \mu m$ (cf. Figure 6.5b), tandis que dans le milieu $110 \mu m$ le régime asymptotique n'est pas encore atteint à $500 ms$ (cf. Figure 6.5a).

6.1.4 Passage au régime asymptotique

Pour étudier le passage du régime de dispersion pré-asymptotique au régime de dispersion asymptotique, on étudie les deux milieux extrêmes - $8 \mu m$ et $110 \mu m$ - pour différents temps d'observation t_Δ et un débit de $500 ml.h^{-1}$. Scheven et Sen (2002) ont étudiés la transition entre ces régimes pour deux empilements de sphères de verre, respectivement de 152 ± 12 ou $215 \pm 15 \mu m$. Ils en ont tirés les critères d'établissement du régime asymptotique suivants :

$$\begin{aligned} \langle \xi \rangle &> 10 dg \\ L_D &> 0.3 dg \end{aligned} \tag{6.1}$$

où $\langle \xi \rangle$ le déplacement moyen, dg la taille de grains, et $L_D = \sqrt{2D_m t_\Delta}$ la longueur de diffusion associée au coefficient de diffusion moléculaire de l'eau dans l'eau D_m et au temps d'observation t_Δ durant lequel la RMN mesure le déplacement des molécules d'eau.

Les valeurs correspondant à ces critères en fonction de t_Δ pour les milieux $8 \mu m$ et $110 \mu m$ et un écoulement de $500 ml.h^{-1}$ (Tableau 6.1), montrent que la comparaison des propagateurs des deux milieux doit permettre de balayer les deux régimes et leur transition. Le critère d'établissement du régime asymptotique portant sur le déplacement moyen n'est jamais atteint (pour les temps d'observation considérés) dans l'empilement de grains de $110 \mu m$. Le régime asymptotique est plus difficile à atteindre pour les grandes tailles de grains. De fait, il faut augmenter le temps d'observation pour que les molécules d'eau aient le temps de "visiter" le nombre de pores suffisant, or les phénomènes de relaxation RMN dans ces milieux empêchent la mesure de déplacement pour des temps d'observations supérieurs à $1000 ms$.

Si l'on compare les propagateurs obtenus dans les deux milieux (Figure 6.5), on observe les deux types de régimes. Les grandes tailles de pores montrent comme prévu des propagateurs asymétriques de forme log-normale, particulièrement aux petits temps. La forme des propagateurs évolue avec $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$ et $\frac{L_D}{dg}$. Les critères sus-cités placent les propagateurs obtenus pour le milieu de $110 \mu m$ dans le régime pré-asymptotique, toutefois les propagateurs tendent clairement vers une forme gaussienne (Figure

t_{Δ} (ms)	$8 \mu m$		$110 \mu m$	
	$\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$	$\frac{L_D}{dg}$	$\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$	$\frac{L_D}{dg}$
20	1.55	1.27	0.15	0.09
50	3.88	2.02	0.37	0.15
100	7.77	2.85	0.74	0.21
200	15.54	4.03	1.48	0.29
300	23.31	4.94	2.22	0.36
500	38.84	6.37	3.70	0.46
1000	77.69	9.01	7.40	0.66

TABLE 6.1 – Évolution des critères d'établissement du régime asymptotique en fonction du temps d'observation pour les milieux $8 \mu m$ et $110 \mu m$ et un débit de 500 ml.h^{-1} .

6.5a). Dans le cas des petites tailles de pores (Figure 6.5b), les propagateurs sont quasiment tous de forme gaussienne. Ceci est cohérent avec les critères d'établissement du régime asymptotique. Les critères d'établissement du régime asymptotique et la forme des propagateurs montrent que la diffusion a une action significative et que la transition entre les deux régimes pré-asymptotique et asymptotique est d'autant plus progressive que la diffusion moléculaire est importante. Ce qui explique que, dans le cas de l'eau, les propagateurs de forme log-normale ne soient pas parfaitement observés, et ce même pour des petites valeurs de t_{Δ} .

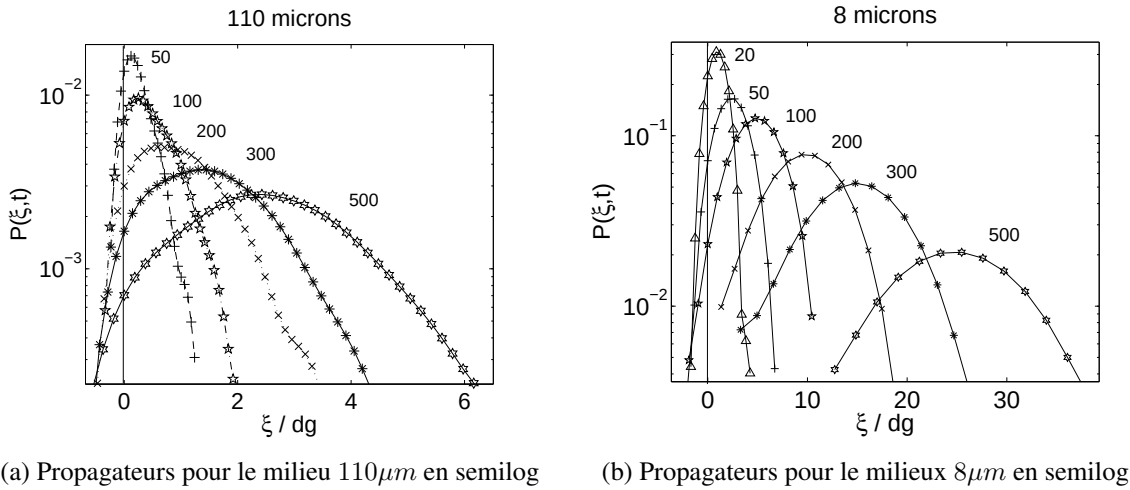


FIGURE 6.5 – Comparaison entre les propagateurs des milieux $8 \mu m$ et $110 \mu m$ en fonction du temps t_{Δ} (en ms) en échelle semi-logarithmique. (a) : Propagateurs pour le milieu à grande taille de pores ($110 \mu m$) : l'advection domine la diffusion. (b) : Propagateurs pour le milieu à petite taille de pores ($8 \mu m$) : la diffusion prend le pas sur l'advection.

Afin d'observer un propagateur le moins possible influencé par la diffusion moléculaire, le coefficient de diffusion moléculaire a été diminué par l'adjonction de glycérol. Un mélange glycérol-eau à respectivement 64% – 36% a été utilisé. Ce mélange diminue le coefficient de diffusion moléculaire d'un facteur 10 environ. Le propagateur pour un écoulement de 500 ml.h^{-1} du mélange glycérol-

eau, un temps d'observation de 50 ms , dans le milieu $110\text{ }\mu\text{m}$, est comparé au propagateur du même écoulement d'eau dans le même milieu (Figure 6.6). L'utilisation du mélange eau-glycérol améliore de manière significative la forme log-normale du propagateur (Figure 6.6). La diminution de D_m d'un facteur 10 entraîne une diminution de $\frac{L_D}{dg}$ d'un facteur 3. Pour minimiser encore plus la diffusion moléculaire, il eut fallu augmenter la part de glycérol dans le mélange, ce qui pose des problèmes d'injection dans le milieu. Les pressions – avec l'augmentation de la viscosité du mélange – deviennent trop élevées pour la cellule.

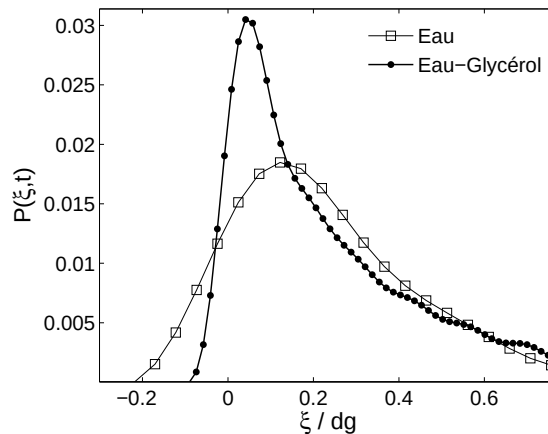


FIGURE 6.6 – Propagateurs pour le milieu $110\text{ }\mu\text{m}$, un temps d'observation de 50 ms , un débit de 500 ml.h^{-1} et deux fluides : de l'eau distillée et un mélange eau-glycérol (36 – 64%)

6.1.5 Conclusion

Les mesures réalisées à l'aide de l'appareil 2 MHz sur des empilements de grains de SiC de différentes tailles dans des cellules de 7 cm de long, ont mis en évidence les régimes de dispersion pré-asymptotique et asymptotique gaussien. Des critères chiffrés d'établissement du régime asymptotique ont été trouvés dans la littérature et vérifiés dans ce cas précis.

6.2 Mesures sur des empilements dans une grande colonne

Deux empilements de grains ont été faits dans la grande colonne afin de pouvoir étudier la dispersion longitudinale et transverse par RMN et faire des expériences de traceur en milieu monophasique et diphasique. Des grains de sable de Fontainebleau de taille $80\text{ }\mu\text{m}$ ont initialement été utilisés. Le réseau de pores de ce milieu a été extrait par micro-scanner (Annexe E) et les résultats des mesures RMN sur ce milieu ont été comparés aux résultats des marches aléatoires en réseau de pores (Partie III). Cet empilement n'a pu permettre d'observer le régime asymptotique de dispersion dans des conditions satisfaisantes, il a donc été décidé d'utiliser une taille de grains plus propice. Des considérations expérimentales (difficulté d'empilement et augmentation des pressions dans la colonne avec

la diminution de la taille de grains) ont imposé le choix de grains de SiC de $30 \mu m$.

Les mesures réalisées sur ces empilements avec l'imageur $20 MHz$, ont été effectuées de manière à pouvoir extraire les moments $\langle \xi \rangle$ et σ^2 . Les relations entre, σ^2 et le temps d'une part, et σ et le déplacement moyen d'autre part, seront étudiées. De fait, il est montré que $\sigma^2 \propto t_\Delta^a$ (Équation 1.13 Section 1.2). Cette relation permet de distinguer les différents régimes de dispersion : $a = 1$ la dispersion est gaussienne, $a < 1$ la dispersion est sous-dispersive, et $a > 1$ la dispersion est super-dispersive (cf. Chapitre 1 Section 1.2).

Par ailleurs, dans le cas d'une dispersion gaussienne, la relation entre σ et $\langle \xi \rangle = \frac{\langle v \rangle}{t_\Delta}$ est décrite par l'équation suivante :

$$\sigma = \sqrt{2l_{eff}\langle \xi \rangle} \quad (6.2)$$

où l_{eff} est la dispersivité intrinsèque de l'échantillon, $l_{eff} = D_{eff} / \langle v \rangle$ (où $\langle v \rangle$ est la vitesse moyenne et D_{eff} le coefficient de dispersion effective).

Cette relation 6.2 permet d'écrire que, dans le cas général,

$$\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle} \propto \langle \xi \rangle^\eta \quad (6.3)$$

où η est lié à a par la relation $\eta = a/2 - 1$.

Si la dispersion est gaussienne : $\eta = -0.5$, et dans le cas où le déplacement est purement advectif, c'est-à-dire dans le cas où seule la dispersion mécanique agit, $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ est une constante. Cette relation 6.3 est utilisée en complément de la relation 1.13. Elle permet de mieux décrire l'influence de la dispersion mécanique et de la diffusion moléculaire sur la dispersion. Nous verrons qu'elle permet aussi de déterminer le régime de dispersion (pré-asymptotique ou asymptotique).

6.2.1 Empilement de sable de Fontainebleau

Ce sable de Fontainebleau est utilisé au CEA pour des expériences de traceur dans une colonne de $1 m$ de long. Dans le cadre de l'ANR TRAM réunissant le CEA, IFPEN et l'INRA d'Avignon, ce sable a été donné par le CEA afin de pouvoir comparer les résultats des expériences classiques de traceur à des expériences RMN.

Le sable a été empilé dans la grande colonne. Des mesures de propagateurs ont été effectuées pour trois débits différents $50 ml.h^{-1}$, $250 ml.h^{-1}$ et $500 ml.h^{-1}$ à l'aide de l'imageur $20 MHz$. Les résultats des mesures de propagateurs pour deux débits 50 et $500 ml.h^{-1}$ sont présentés, en échelle semi-logarithmique, Figure 6.7. Les propagateurs sont quasi-gaussiens. L'asymétrie est faible. L'analyse des moments permet d'avoir une vision plus précise des régimes de dispersion.

L'évolution de σ^2 en fonction du temps t_Δ pour les différents débits est présentée Figure 6.8. L'augmentation du débit engendre une augmentation de σ^2 . Chaque série de points est calée avec une loi de puissance t_Δ^a . On peut observer que la pente, pour un même débit, évolue au cours du temps, traduisant la transition du régime pré-asymptotique vers le régime asymptotique. Les valeurs

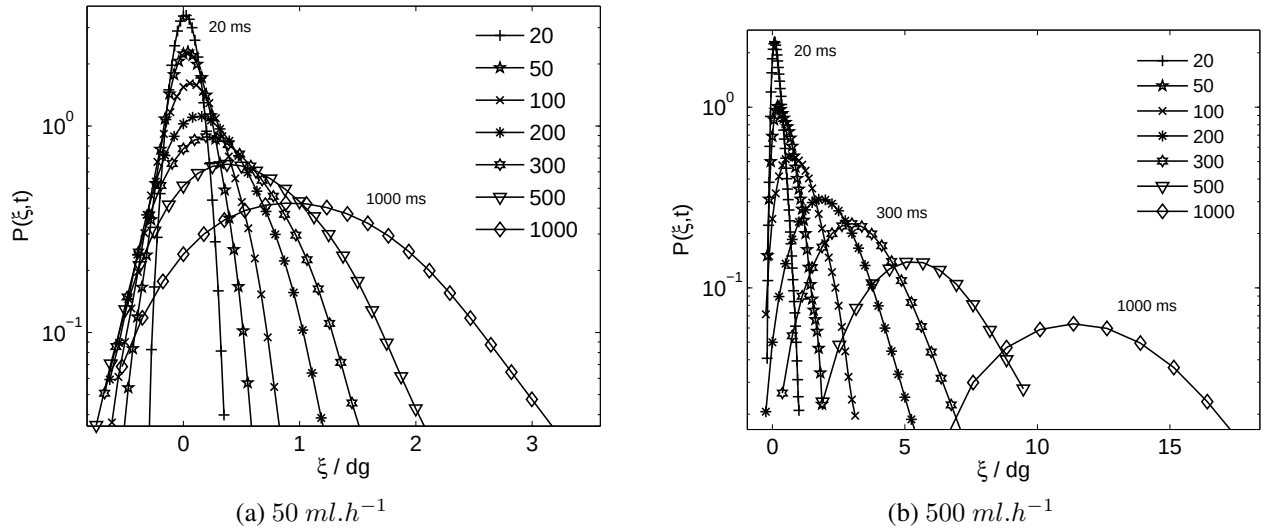


FIGURE 6.7 – Propagateurs en fonction du temps et du débit. Deux débits : 50 ml.h^{-1} et 500 ml.h^{-1} et différents temps : 50 à 1000 ms.

d'exposants présentées dans ce paragraphe sont obtenues par le calages des derniers points de chaque série (4 points au minimum). a est de 1.03 pour le débit 50 ml.h^{-1} , c'est-à-dire équivalent à l'exposant d'une dispersion gaussienne dominée par la diffusion moléculaire ($a = 1$). Les exposants a pour les débits 250 et 500 ml.h^{-1} valent de 1.19. Cette valeur traduit une super-diffusion des molécules d'eau.

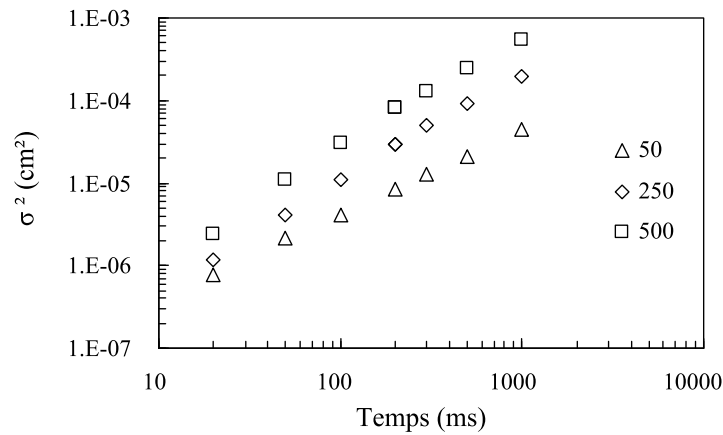


FIGURE 6.8 – Évolution du moment d'ordre 2 en fonction du temps : mesurés sur l'empilement de grains de sable de Fontainebleau.

Les valeurs de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ pour les différents débits (Figure 6.9) convergent pour des déplacements de l'ordre de 1 à 2 fois la taille de grains. Chaque série de points est calée avec une loi de puissance $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}^\eta$. L'exposant η est de -0.47 pour le débit 50 ml.h^{-1} , c'est-à-dire équivalent à l'exposant d'une dispersion gaussienne dominée par la diffusion moléculaire ($\eta = -0.5$). Les exposants η sont identiques pour les débits 250 et 500 ml.h^{-1} et valent -0.40 . Cette valeur montre une déviation faible du régime de dispersion gaussien. La convergence des valeurs de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ pour les valeurs de $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$ supérieures

à 2 et la valeur de η constante au delà de 250 ml.h^{-1} sont caractéristiques du régime asymptotique de dispersion. Ce régime asymptotique est faiblement anormal ($\eta = -0.40$). Les valeurs de η et a sont récapitulées tableau 6.2.

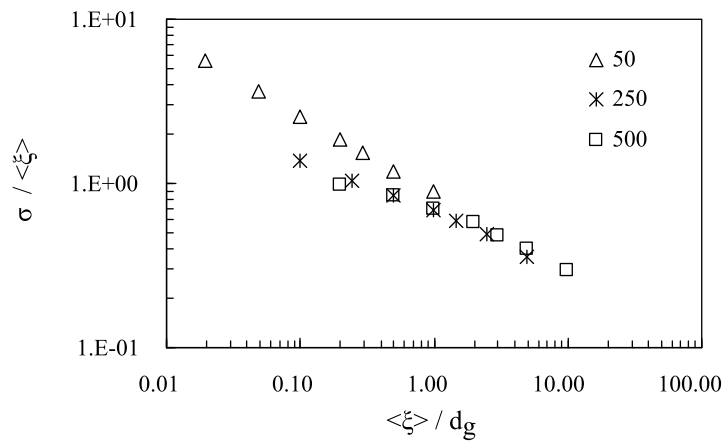


FIGURE 6.9 – Évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains : empilement de grains de sable de Fontainebleau.

Débits (ml.h^{-1})	a	η
50	1.03	-0.47
250	1.19	-0.40
500	1.19	-0.40

TABLE 6.2 – Valeurs des exposants a et η en fonction du débit.

La conclusion de l'étude de σ^2 en fonction du temps d'observation est identique à celle de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction de $\frac{\langle \xi \rangle}{d_g}$, la dispersion asymptotique est observée pour des temps et des débits importants, et est faiblement anormale de type super-dispersive, les propagateurs sont quasi-gaussiens. Les critères de Scheven et Sen (2002) (Chapitre 1 Section 1.3) ont été calculés et leurs valeurs sont présentées Tableau 6.5 et Tableau 6.4. Le Tableau 6.5 présente les valeurs de $\frac{\langle \xi \rangle}{d_g}$ pour les deux temps extrêmes, 20 et 1000 ms , et les trois débits, 50, 250, et 500 ml.h^{-1} . Les conditions expérimentales permettent de balayer les valeurs de $\frac{\langle \xi \rangle}{d_g}$ de 0.02 à 9.84. La valeur extrême pour 500 ml.h^{-1} et 1000 ms est à la limite des valeurs observées par Scheven et Sen (2002) comme seuil du régime asymptotique de dispersion.

Les résultats de l'étude des moments (Figure 6.9) laissent supposer que la transition entre le régime pré-asymptotique et asymptotique est longue et progressive. De plus ces résultats montrent une transition pour des valeurs de $\frac{\langle \xi \rangle}{d_g}$ proches de 2 plutôt que 10. Ce résultat peut s'expliquer par la forte influence de la diffusion moléculaire. Le second critère, $\frac{L_D}{d_g}$, est basé sur la diffusion moléculaire et indépendant de la vitesse de l'écoulement. Les valeurs de ce critère en fonction du temps d'observation sont présentées Tableau 6.4. Scheven et Sen (2002) trouvent comme valeur seuil d'obtention du régime asymptotique $\frac{L_D}{d_g} = 0.3$. Dans les expériences réalisées, la valeur seuil de 0.3 est dépassée au

$Q \text{ ml.h}^{-1}$	20 ms	1000 ms
50	0.02	0.98
250	0.10	4.92
500	0.20	9.84

TABLE 6.3 – Tableau récapitulatif des valeurs de $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$ en fonction du temps et du débit : la valeur d'établissement du régime asymptotique est 10. Cette valeur n'est pas atteinte dans les conditions expérimentales.

delà de $t_{\Delta} = 100 \text{ ms}$. La valeur minimale (pour $t_{\Delta} = 20 \text{ ms}$) est relativement élevée et égale à 0.13. Les valeurs relativement élevées de $\frac{L_D}{dg}$ permettent d'expliquer la faible asymétrie des propagateurs et l'obtention du régime asymptotique plus rapide que celle observée par Scheven et Sen (2002).

temps (ms)	20	50	100	200	300	500	1000
$\frac{L_D}{dg}$	0.13	0.20	0.28	0.40	0.49	0.64	0.90

TABLE 6.4 – Tableau récapitulatif des valeurs de $\frac{L_D}{dg}$ en fonction du temps : la valeur d'établissement du régime asymptotique est 0.3. Pour des temps inférieurs à 100 ms la diffusion moléculaire ne permet pas l'établissement du régime asymptotique de dispersion.

La mesure de la dispersion asymptotique dans cet empilement est à la limite des conditions expérimentales, ce milieu n'est pas optimal pour étudier de manière convaincante la dispersion en milieu insaturé du fait des débits forts et des temps longs nécessaires pour l'observation du régime asymptotique. Un nouvel empilement de grains de SiC de taille $30 \mu\text{m}$ a été effectué dans la même cellule afin de pallier à ce problème. Cet empilement a été choisi en fonction des critères d'établissement du régime asymptotique, des facilités d'empilement, et des conditions expérimentales réalisables en écoulement diphasiques ($t_{\Delta} < 1000 \text{ ms}$ et $Q < 100 \text{ ml.h}^{-1}$).

6.2.2 Empilement de grains de SiC de $30 \mu\text{m}$

Des mesures pour plusieurs débits (0, 50, 100, 200, 500, 700, 1000 et 2000 ml.h^{-1}), différents temps (20, 50, 100, 200, 300, 400, 500, 600, 700, 800, 900 et 1000 ms) dans les directions longitudinales et transverses ont été effectuées sur l'empilement de grains de SiC de $30 \mu\text{m}$ dans la grande colonne. La synthèse et l'exploitation des résultats longitudinaux puis transverses sont présentés dans cette section.

6.2.2.1 Dispersion longitudinale

Les propagateurs longitudinaux en fonction de la vitesse de déplacement des molécules d'eau ($v = \xi/t_{\Delta}$) pour un temps d'observation de 50 ms et différents débits allant de 0 ml.h^{-1} à 2000 ml.h^{-1} sont présentés Figure 6.10. Les vitesses moyennes de chaque propagateur coïncide avec la vitesse

moyenne de Darcy calculée à partir du débit et des caractéristiques de l'empilement. Les propagateurs sont quasi-gaussiens quel que soit le débit considéré. Le régime de dispersion semble asymptotique.

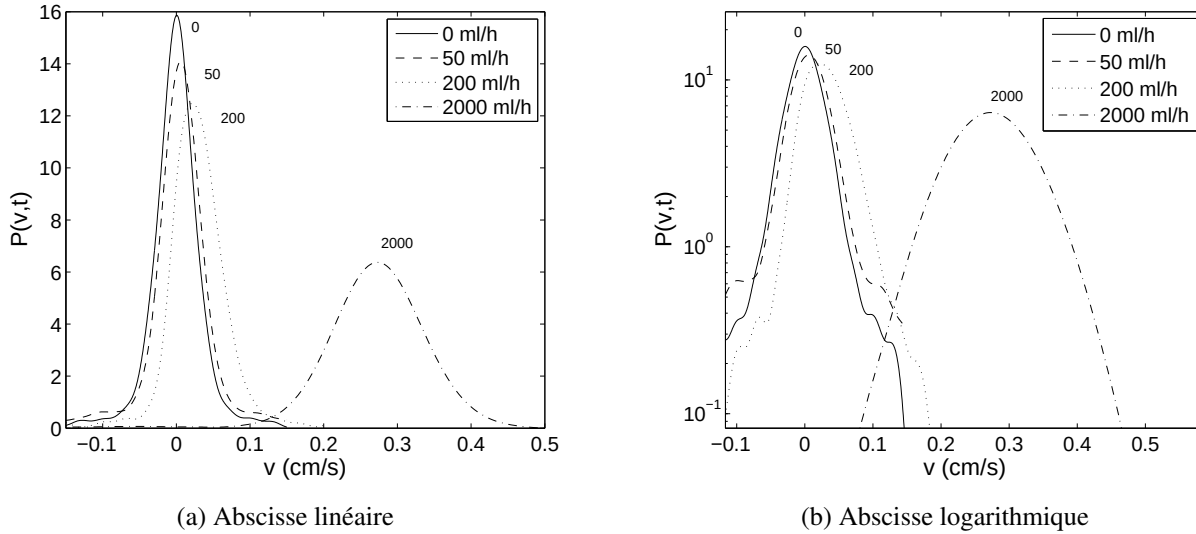


FIGURE 6.10 – Propagateurs longitudinaux pour un temps d’observation de 50 ms et différents débits allant de 0 $ml.h^{-1}$ à 2000 $ml.h^{-1}$.

Les critères d’établissement du régime asymptotique ont été calculés pour $t_{\Delta} = 50\ ms$ et le Tableau 6.5 en récapitule les valeurs. La valeur seuil du critère portant sur la diffusion moléculaire, $\frac{L_D}{dg}$, est dépassée pour $t_{\Delta} = 50\ ms$ ($0.54 > 0.3$). Le critère portant sur la vitesse d’écoulement, $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$, varie entre 0 (pour un écoulement nul) et 4.68 (pour 2000 $ml.h^{-1}$). La valeur seuil de 10 trouvée par Scheven et Sen (2002) n’est pas atteinte, mais la valeur de 2 observée sur les empilements de SiC (Paragraphe 6.1) est dépassée. Le régime asymptotique de dispersion est atteint pour le débit de 2000 $ml.h^{-1}$. Pour les autres débits, la très faible asymétrie des propagateurs observés est due à la forte influence de la diffusion moléculaire.

$Q\ ml.h^{-1}$	$\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$	$\frac{L_D}{dg}$
0	0	0.54
50	0.12	0.54
200	0.47	0.54
2000	4.68	0.54

TABLE 6.5 – Tableau récapitulatif des critères d’établissement du régime asymptotique pour chaque débit et un temps d’observation de 50 ms .

L’analyse des propagateurs est complétée par une analyse des moments du déplacement des molécules d’eau. Les moments d’ordre 1 et 2 sont obtenus par la méthode décrite au Paragraphe 3.4 sur des écoulements de débits allant de 0 à 2000 $ml.h^{-1}$, et différents temps (20 à 1000 ms). L’évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction de $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$ est présentée Figure 6.11. Les valeurs de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ convergent pour des déplacements

supérieurs à environ 7 – 8 fois la taille de grains. Le régime de dispersion asymptotique est atteint. Pour des déplacements inférieurs les valeurs de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ divergent et augmentent avec la diminution du débit (pour un même déplacement observé). Cette divergence est due à la diminution du nombre de Peclet, la diffusion moléculaire dominant de plus en plus la dispersion. Les résultats ont été calés par une loi de puissance d'exposant η . L'évolution de η en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement est présenté Figure 6.12.

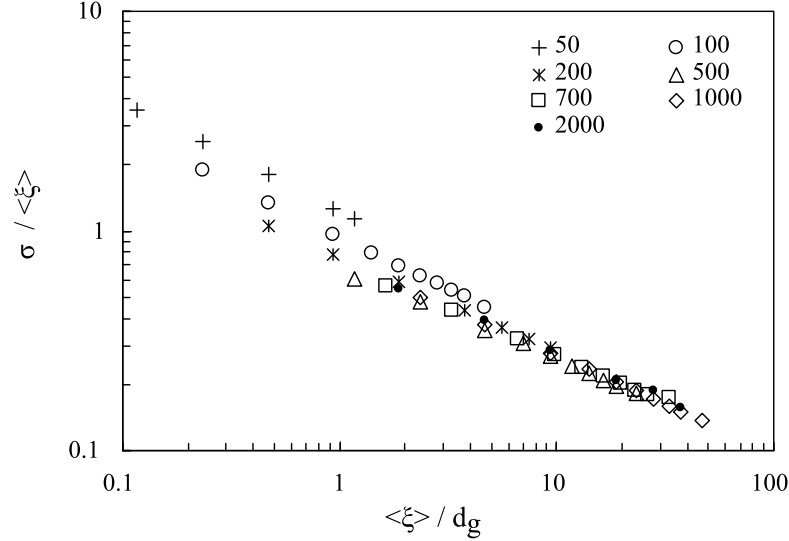


FIGURE 6.11 – Évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains : empilement de grains de SiC de $30 \mu m$ saturé en eau.

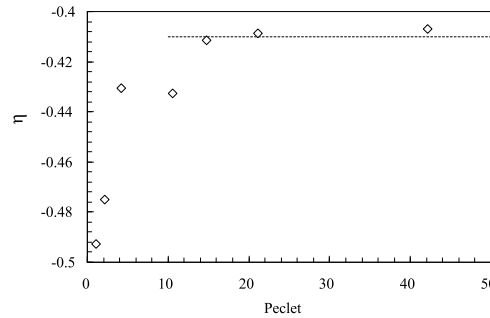


FIGURE 6.12 – Évolution de l'exposant η en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement.

L'évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction de $\frac{\langle \xi \rangle}{dg}$ montre une transition d'un régime pré-asymptotique fortement dominé par la diffusion (50 ml.h^{-1} , $\eta = -0.49$) à un régime asymptotique de dispersion impacté par la diffusion moléculaire et la dispersion mécanique ($Q > 500 \text{ ml.h}^{-1}$ où η tend vers -0.40). La transition entre le régime pré-asymptotique de diffusion quasi-pure et le régime asymptotique est relativement molle, ce qui est dû à l'importance de la diffusion moléculaire. La valeur asymptotique de η est cohérente avec les valeurs de la littérature. Scheven (2005) effectue la même analyse pour trois milieux d'hétérogénéités différentes : un empilement de sphère de diamètre $100 \pm 20 \mu m$, un grès et

un carbonate (Figure 6.13). Les valeurs asymptotiques de η sont respectivement de -0.46 , -0.36 et -0.24 . La valeur de η est clairement corrélée à l'hétérogénéité du milieu (et donc du champ de vitesse). L'empilement de SiC est plus hétérogène au niveau de son champ de vitesse que l'empilement de sphères et moins que le grès, ce qui explique la valeur asymptotique de η de -0.40 .

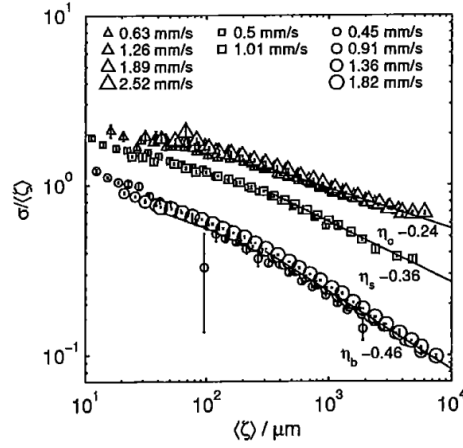


FIGURE 6.13 – Évolution de $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle}$ en fonction du déplacement (en μm) pour trois milieux différents : (Δ) carbonate, ($\square$) grès, ($\circ$) empilement de sphères (tiré de Scheven (2005)).

L'évolution de σ^2 en fonction du temps est présentée Figure 6.14. Pour un temps t_Δ σ^2 augmente avec le débit, ce qui traduit une augmentation de la dispersion. Chaque série de points est calée par un loi de puissance de type t_Δ^a . Les droites (traits continus) de pentes $a = 1$ et $a = 1.17$ tracées sur cette figure représentent les lois de puissances calées sur les séries de données des débits 0 et 2000 $ml.h^{-1}$. Les exposants a obtenus pour les différents débits sont présentés Figure 6.16.

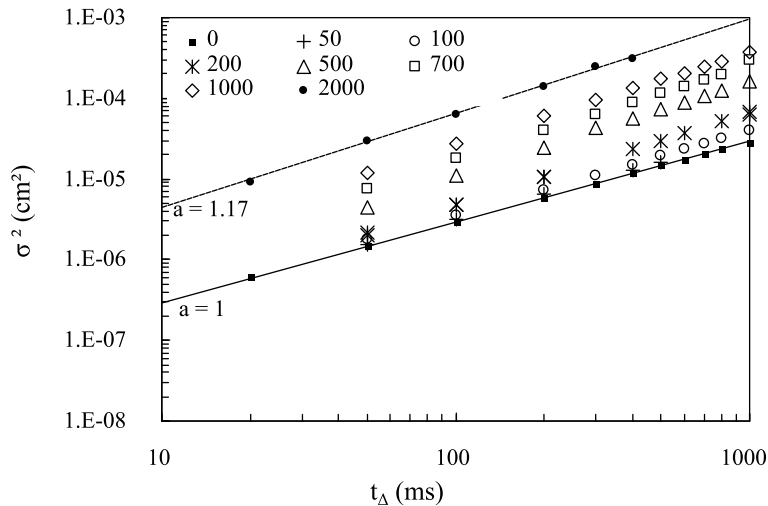


FIGURE 6.14 – Évolution de σ^2 en fonction du temps : mesures sur un empilement de grains de SiC de $30 \mu m$ saturé en eau.

Les valeurs de σ^2 peuvent aussi être exprimées en fonction du déplacement moyen associé (Figure

6.15). Cette représentation permet de montrer que pour de faibles déplacements, la dispersion est dominée par la diffusion moléculaire, dont l'effet augmente avec la diminution du débit. En effet, pour des déplacements similaires, σ^2 augmente avec la diminution du débit. Aux grands déplacements, σ^2 tend à devenir indépendant du débit considéré et est uniquement fonction du déplacement. Cela traduit une domination forte de la dispersion mécanique sur la diffusion moléculaire.

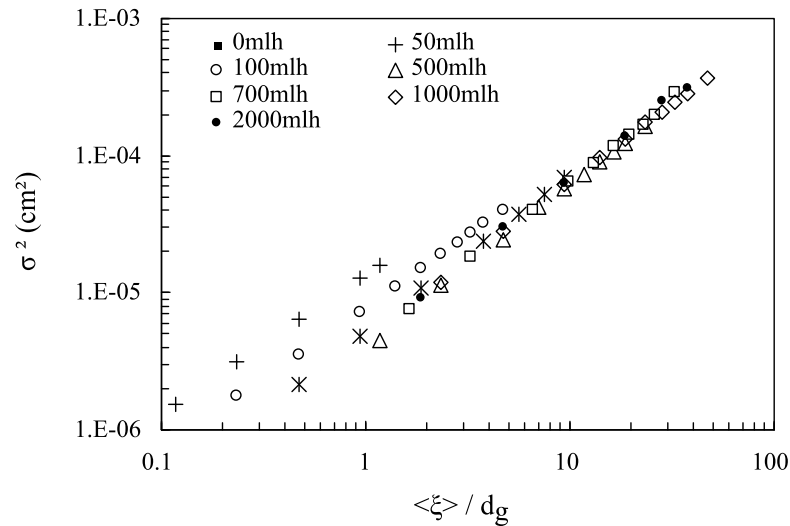


FIGURE 6.15 – Évolution de σ^2 en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains : mesures sur un empilement de grains de SiC de $30 \mu m$ saturé en eau.

L'évolution de a ($\sigma^2 \propto t_\Delta^a$ Équation 1.13 Paragraphe 1.2) en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement (Figure 6.16) montre une asymptote de valeur 1.17. Le régime de dispersion passe de la diffusion gaussienne ($a = 0.99$) pour un débit nul à la super-diffusion asymptotique $a = 1.17$ pour les nombres de Peclet supérieurs à 10. Ces résultats sont cohérents avec les résultats précédents et montrent une dispersion anormale dans un milieu poreux homogène saturé. Cette dispersion peut-être décrite comme anormale car le régime asymptotique de dispersion est atteint.

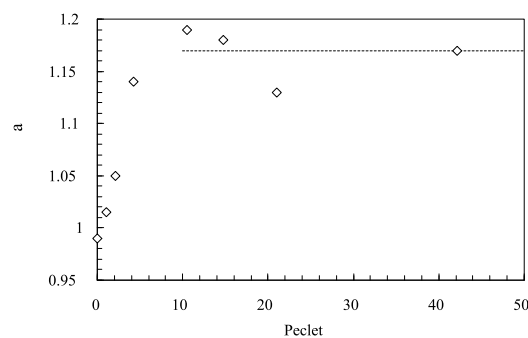


FIGURE 6.16 – Évolution de l'exposant a en fonction du nombre de Peclet de l'écoulement.

Le coefficient de dispersion effectif peut-être calculé, pour chaque propagateur, à partir des moments présentés précédemment. Dans le cas où le propagateur est non-gaussien, la relation entre coefficient de dispersion effectif D_{eff} et σ^2 dépend du temps t et est décrite par :

$$D_{eff}(t) = \frac{1}{2} \frac{d\sigma^2}{dt} \quad (6.4)$$

Si le propagateur est gaussien (c-a-d la dispersion est gaussienne) il est établi que :

$$D_{eff} = \frac{1}{2} \frac{\sigma^2}{t} \quad (6.5)$$

Ici, la dispersion est faiblement anormale et les valeurs de D_{eff} calculées à partir des Équations 6.4 et 6.5 sont comparables. Les coefficients de dispersion effectifs (calculés à partir des moments présentés précédemment et de l'Équation 6.4) normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire sont présentés, en fonction du nombre de Peclet, dans la Figure 6.17. L'évolution est identique à celle décrite par Fried et Combarous (1971), Sahimi (1993) et le domaine de comparaison correspond à la fenêtre de la Figure 6.18.

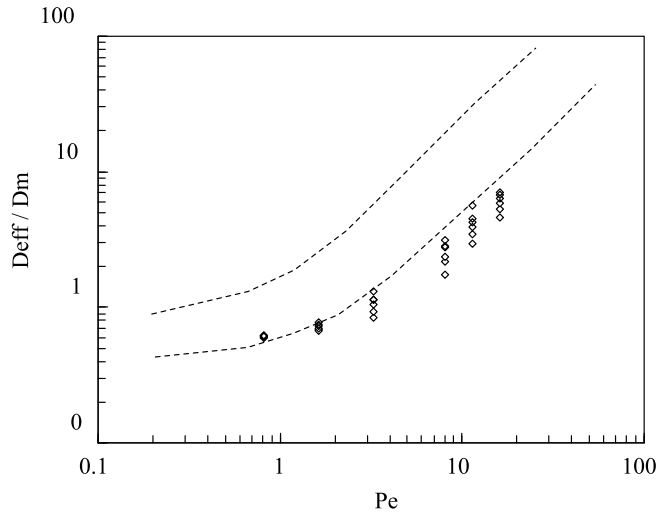


FIGURE 6.17 – Coefficients de dispersion effectifs normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet pour les expériences en monophasique : Les tirets forment l'enveloppe de points expérimentaux compilés dans Khrapitchev (2003). La valeur de D_{eff} , pour un même nombre de Peclet, dépend de t_{Δ} .

Pour un nombre de Peclet inférieur à 0.3, le coefficient de dispersion effectif ne varie que très peu et vaut 0.56. Pour un nombre de Peclet compris entre 5 et 300, le rapport du coefficient de dispersion effectif D_{eff} sur le coefficient de diffusion moléculaire D_m est proportionnel au nombre de Peclet Pe à la puissance β_L (Sahimi, 1993) :

$$\frac{D_{eff}}{D_m} = Pe^{\beta_L} \quad (6.6)$$

Dans la littérature, les valeurs expérimentales de β_L sont en moyenne de 1.20. Ici, $\beta_L = 1.08$, ce qui est dans la gamme de valeurs présentée dans la littérature. Pour un même nombre de Peclet, la valeur du coefficient de dispersion effectif augmente avec le temps d'observation traduisant la super-dispersion mise en évidence. Les valeurs sont dans la partie basse des valeurs compilées par

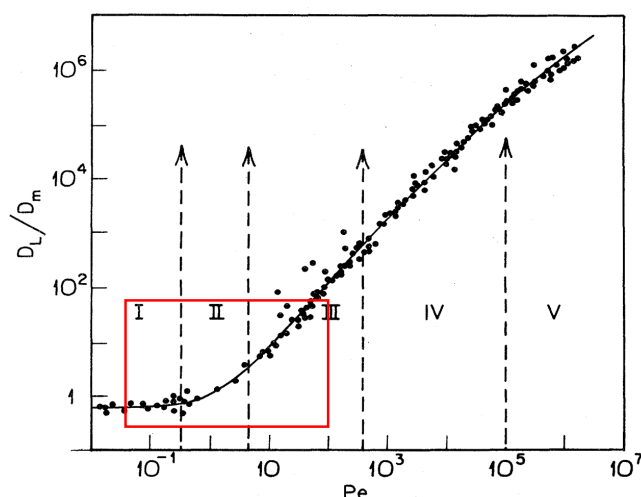


FIGURE 6.18 – Coefficients de dispersion effectifs normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet, Sahimi (1993).

Khrapitchev (2003). Or ces valeurs proviennent principalement d'expériences de traceur, ces expériences de traceur ne permettent pas de mesurer, telle que le fait la RMN, la dépendance en temps du coefficient de dispersion effectif. La valeur aux grands temps du coefficient de dispersion effectif est incluse dans ou tend vers l'enveloppe de Khrapitchev (2003).

6.2.2.2 Dispersion transverse

Les propagateurs selon les directions transverses à l'écoulement ont été mesurés pour différents débits (0 à 2000 $ml.h^{-1}$) et différents temps (20 à 1000 ms) en écoulement monophasique, toujours dans la grande colonne contenant les grains de SiC de 30 μm . Les propagateurs observés sont gaussiens et centrés sur le déplacement nul, quel que soit le temps ou le débit considéré (Figure 6.19). Le propagateur conserve sa forme mais s'élargit légèrement lorsque le débit d'écoulement augmente (Figure 6.19), cette variation en fonction du débit montre l'influence de la dispersion mécanique (liée au champ de vitesse) sur les molécules d'eau. La conservation de la forme gaussienne du propagateur indique que l'influence de la dispersion mécanique reste largement dominée par la diffusion moléculaire.

L'évolution du moment d'ordre 2 σ_T^2 en fonction du temps t_Δ est présentée Figure 6.20. L'influence de la dispersion mécanique est nettement observée : σ_T^2 pour un temps t_Δ fixe augmente avec le débit. Les valeurs de σ_T^2 sont comprises entre 10^{-6} et 10^{-4} , et plus faibles à débit égal, que les valeurs longitudinales (cf. Figure 6.14). L'influence de la dispersion transverse sur la dispersion des molécules d'eau est donc moins importante que l'influence de la dispersion longitudinale. L'analyse des moments d'ordre 2 transverses (Figure 6.20) montre qu'ils évoluent linéairement par rapport au temps, l'exposant a a pour valeur 1 ± 0.05 (Tableau 6.6). L'influence des vitesses transverses n'est pas négligeable, mais si la dispersion longitudinale est de type super-dispersive ($a = 1.17$), la dispersion transverse est gaussienne ($a = 1$). Cette différence s'explique par le fait que les vitesses transverses

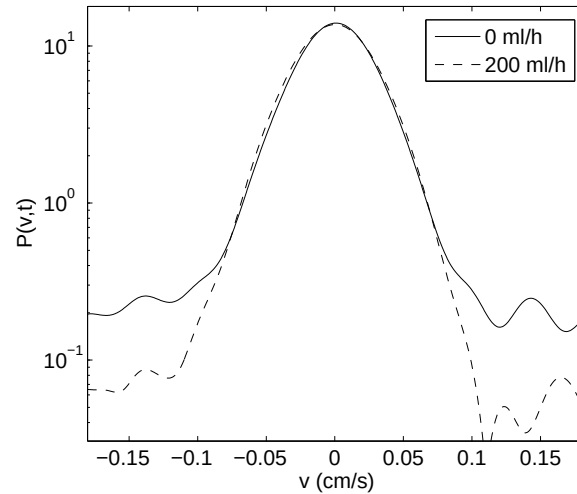


FIGURE 6.19 – Propagateurs transverse pour un t_{Δ} de 50 ms et deux débits différents 0 $ml.h^{-1}$ et 200 $ml.h^{-1}$.

sont plus faibles que les vitesses longitudinales et de moyenne nulle, la diffusion moléculaire est donc fortement dominante par rapport à la dispersion mécanique transverse.

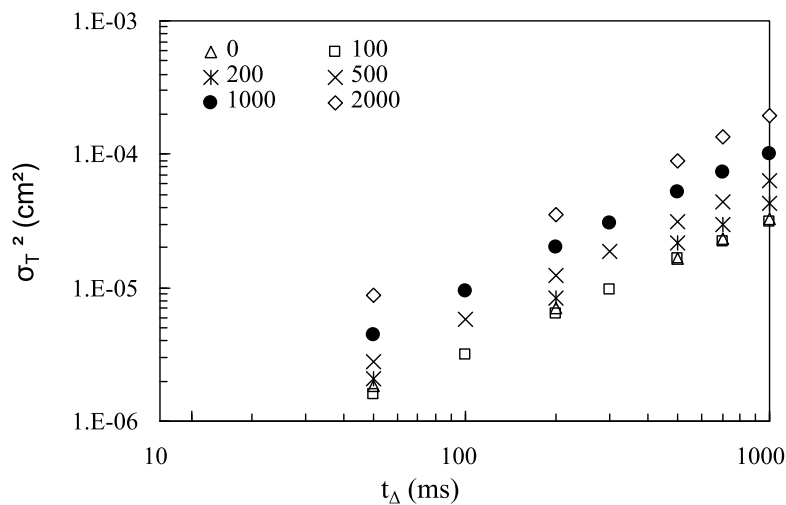


FIGURE 6.20 – Évolution du moment d'ordre 2 σ_T^2 transverse en fonction du temps pour différents débits.

$Q (ml.h^{-1})$	0	100	200	500	1000	2000
a	0.95	0.99	1.01	1.04	1.05	1.00

TABLE 6.6 – Tableau récapitulatif de la valeur de l'exposant a en fonction du débit.

Le coefficient de dispersion effectif transverse (D_T) a été calculé à partir des moments d'ordre 2 et son évolution en fonction du Peclet est présentée Figure 6.21. Dans cette figure sont aussi présentés les coefficients de dispersion longitudinaux (D_L) obtenus dans le même empilement. On peut observer

la très faible dispersion du coefficient de dispersion effectif transverse D_T en fonction du temps à nombre de Peclet fixe. Cette faible dispersion des valeurs de D_T pour un même nombre de Peclet s'explique par la cinétique gaussienne de la dispersion des molécules d'eau dans le milieu poreux.

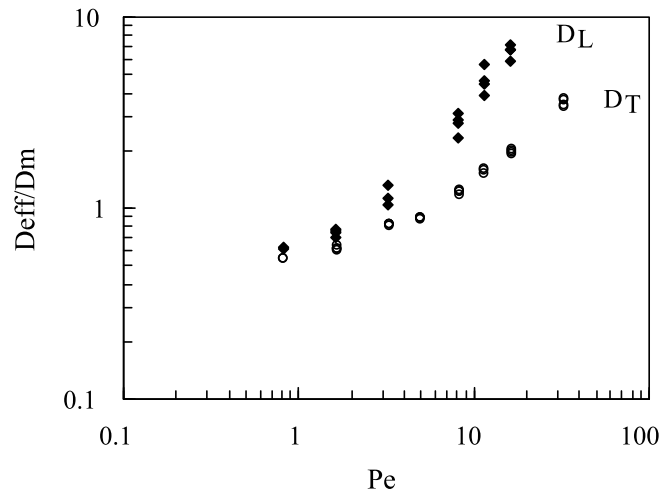


FIGURE 6.21 – Relation entre le coefficient de dispersion effectif longitudinal D_L et transverse D_T : (♦) les valeurs de D_L et (○) les valeurs de D_T .

L'évolution du coefficient de dispersion effectif transverse D_T en fonction du Peclet observée, ainsi que la comparaison avec l'évolution du coefficient de dispersion effectif longitudinal D_L , sont cohérentes avec les données de la littérature. Pour un nombre de Peclet compris entre 5 et 300, le rapport du coefficient de dispersion effectif transverse D_T sur le coefficient de diffusion moléculaire D_m est proportionnel au nombre de Peclet Pe à la puissance β_T (Sahimi, 1993) :

$$\frac{D_T}{D_m} = Pe^{\beta_T} \quad (6.7)$$

Dans la littérature, les valeurs expérimentales de β_T sont en moyenne de 0.9. Ici, $\beta_T = 0.79$, ce qui est dans la gamme de valeurs présentée dans la littérature.

6.3 Expériences de traceur

Les expériences de traceur de Deutérium par RMN ont été effectuées dans l'empilement de SiC 30 μm présenté au Paragraphe 3.5.3.1 et caractérisé au Paragraphe 5.6.1. Il a été montré précédemment (Chapitre 5 Section 5.5) que la mesure de la dispersion de traceur est perturbée par la dispersion du traceur dans les tuyaux d'injection, et donc que l'étude des expériences de traceur ne peut être faite que de manière qualitative.

Des courbes de percées pour deux débits de fluide différents ont été mesurées et sont présentées Figure 6.22. La mesure des courbes de percées a été effectuée dans une tranche située à 8.5 cm de la face d'injection de la colonne. Les courbes de percées obtenues sont typiques d'une dispersion gaussienne. La moitié du volume de traceur a traversé la tranche lorsque un volume de pore a été

injecté (ici le volume de pore est le volume poreux précédant la zone de mesure et non le volume poreux total de la colonne).

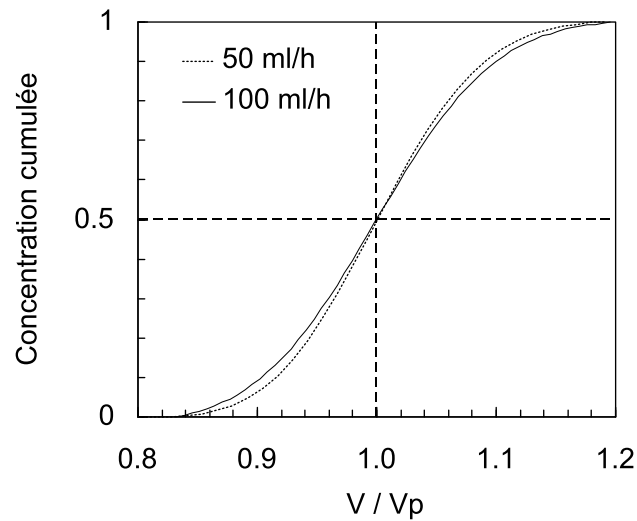


FIGURE 6.22 – Courbes de percées locales en milieu saturé pour deux débits d’écoulement différents 50 ml.h^{-1} et 100 ml.h^{-1} .

Les courbes de concentration en Deutérium dans la zone de mesure en fonction du volume de fluide injecté (normalisé par le volume de pore) sont présentées Figures 6.23a et 6.23b. Ces courbes ont été comparées avec des gaussiennes. Pour le débit de 50 ml.h^{-1} , la gaussienne a une moyenne μ de $1.002 V_{\text{inject}}/V_p$ et un écart-type σ de $0.08 (V_{\text{inject}}/V_p)^2$. La gaussienne pour le débit de 100 ml.h^{-1} a une moyenne μ de $1.007 V_{\text{inject}}/V_p$ et un écart-type σ de $0.07 (V_{\text{inject}}/V_p)^2$. La comparaison avec les gaussiennes est très bonne dans les deux cas, la dispersion du traceur est gaussienne. On peut observer une arrivée initiale du traceur retardée. Celle-ci ne peut être reliée à de la dispersion anormale. Elle est expliquée par la différence de densité entre traceur et fluide. La largeur de la gaussienne est plus importante pour un écoulement de 50 ml.h^{-1} que pour un écoulement de 100 ml.h^{-1} . Ceci est dû au fait que les molécules de traceur mettent plus de temps à atteindre la zone de mesure dans le cas d’un écoulement de 50 ml.h^{-1} . L’influence de la diffusion moléculaire est plus importante comparée à la dispersion liée au champ de vitesse.

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre ont été présentés les différents résultats des mesures RMN sur des écoulements monophasiques en empilements de grains.

Les régimes pré-asymptotiques et asymptotiques, ainsi que la transition de l’un à l’autre, ont été mis en évidence et caractérisés grâce à des mesures sur différents empilements de grains de SiC (Section 6.1). Les critères empruntés à Scheven et Sen (2002) peuvent servir à quantifier la transition entre les régimes de dispersion. Il a été montré sur des empilements de sable de Fontainebleau et de SiC que l’établissement du régime asymptotique pouvait aussi être vérifié par l’étude des moments

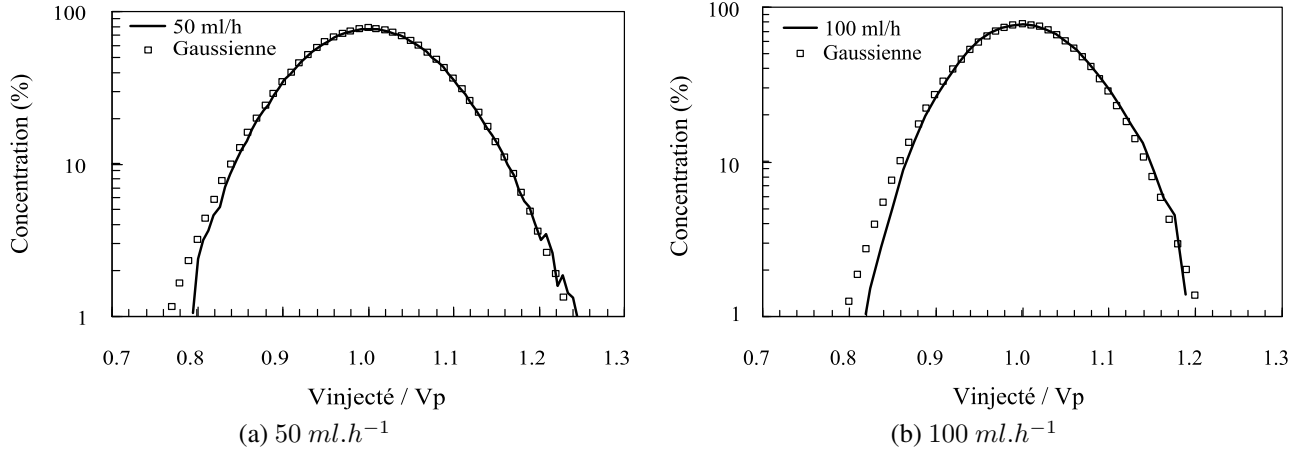


FIGURE 6.23 – Courbe de concentration en fonction du volume de fluide injecté pour deux débits 50 ml.h^{-1} et 100 ml.h^{-1} et comparaison avec des gaussiennes. La gaussienne comparée à la courbe obtenue pour un débit de 50 ml.h^{-1} a une moyenne μ de $1.002 V_{\text{inject}}/V_p$ et un écart-type σ de $0.08 (V_{\text{inject}}/V_p)^2$. La gaussienne pour le débit de 100 ml.h^{-1} a une moyenne μ de $1.007 V_{\text{inject}}/V_p$ et un écart-type σ de $0.07 (V_{\text{inject}}/V_p)^2$.

des déplacements des molécules d'eau σ^2 et $\langle \xi \rangle$. Le collapse des valeurs de $\sigma / \langle \xi \rangle$ en fonction de $\langle \xi \rangle / d_g$ est un critère universel d'établissement du régime asymptotique de dispersion. Dans ce chapitre, il a été montré, pour un empilement de SiC de $30 \mu\text{m}$, que σ^2 évoluait comme une fonction de $t^{1.17}$. **L'étude des moments a mis en évidence, en milieu homogène saturé, une dispersion asymptotique longitudinale faiblement anormale de type super-dispersion.**

L'étude de la dispersion transverse dans un empilement de SiC montre que la dispersion transverse, au contraire de la dispersion longitudinale, suit un régime gaussien ($\sigma^2 \propto t$). Ce régime gaussien est en grande partie dû au fait que les vitesses transverses sont relativement faibles, la diffusion moléculaire domine donc fortement la dispersion mécanique.

Les expériences de traceur au Deutérium par RMN, permettant d'obtenir l'évolution de la concentration de traceur à un endroit de l'empilement en fonction du temps, sont influencées par des phénomènes de dispersion dans les canaux d'injection empêchant d'obtenir des coefficients de dispersion cohérents. Toutefois, les courbes de percée observées sont caractéristiques du milieu et présentent un comportement quasi-gaussien. Ceci est à rapprocher des propagateurs RMN asymptotiques, déviants très faiblement des gaussiennes. Les mesures de traceur sont délicates et difficiles à interpréter de manière approfondie, elles ne permettent pas d'observer le régime asymptotique faiblement anormal décelé par la RMN.

Les mesures par RMN présentées dans ce chapitre permettent de caractériser la dispersion locale en fonction du temps et de la vitesse moyenne d'écoulement (du nombre de Peclet) dans des empilements de grains homogènes saturés. La relation 1.13 $\sigma^2 \propto t^a$ permet de caractériser la dispersion normale ou anormale (super ou sous-dispersion et dispersion gaussienne). La relation 6.3 $\frac{\sigma}{\langle \xi \rangle} \propto \langle \xi \rangle^\eta$ permet elle de caractériser l'influence de la dispersion mécanique et de la diffusion moléculaire sur la dispersion locale. Les résultats obtenus serviront de comparaison lors de l'étude de la dispersion en

empilement de grains homogène insaturé présenté dans le Chapitre 7.

Chapitre 7

Résultats sur des milieux insaturés

Sommaire

7.1 Saturation dans l'échantillon	136
7.2 Dispersion longitudinale et saturation	138
7.2.1 Propagateurs longitudinaux	138
7.2.2 Analyse des moments	140
7.3 Dispersion transverse et saturation	143
7.4 Expériences de traceur	147
7.5 Dispersion anormale et vols de Lévy	149
7.5.1 Lois stables et vols de Lévy	149
7.5.2 Modules des signaux RMN et lois stables	151
7.5.3 Propagateurs et lois stables	153
7.6 Conclusion	154

L'étude de la dispersion en milieu saturé a permis de mieux comprendre les régimes pré-asymptotiques et asymptotiques, de quantifier la transition entre ces régimes et de les caractériser en terme de dispersion (sous ou super-dispersion, dispersion gaussienne). Ces résultats permettent d'analyser les régimes de dispersion obtenus dans des milieux insaturés. On s'attend à ce que les écoulements insaturés engendrent une dispersion s'écartant plus nettement de la normalité que pour les écoulements saturés. L'objectif de l'étude de la dispersion en milieu insaturé est d'observer cette dispersion anormale, de la quantifier et de la comparer à la dispersion en milieu poreux saturé.

Les mesures par RMN en milieu insaturé ont été réalisées sur l'empilement de grains de SiC de 30 μm dans la grande colonne de 27 cm de long et de 24.2 mm de diamètre. La mise en place de la saturation partielle se fait par co-injection eau - huile pour établir un profil de saturation constant (fluides non-miscibles, cf. Paragraphe 3.5.5). Chaque fluide est injecté en entrée de colonne par une pompe différente à un débit constant, la variation du rapport des débits d'injection permet de faire varier la saturation. Les saturations sont stables dans le temps et installées en drainage. Les saturations présentées dans ce chapitre, sauf mention contraire, sont des saturations en eau (S_w).

Les résultats présentés dans cette section ont été obtenus à l'aide de l'injection de différents couples de fluides, correspondant à différentes tentatives pour diminuer la saturation. Les fluides co-injectés avec l'eau sont des huiles fluorinert n'engendrant pas de signal RMN (dans le cadre de la RMN du proton), ces huiles sont présentées Paragraphe 3.5.3.2. Des essais de co-injection eau-air ont été réalisés mais ne se sont pas avérés concluants. L'air est un fluide trop compressible, la moindre variation de pression déstabilise l'écoulement et la saturation. De plus, la tension interfaciale entre l'eau et l'air étant élevée (72 mN.m^{-1}), la pression nécessaire à l'obtention de saturations basses est trop importante pour notre cellule d'écoulement.

Ce chapitre présente tout d'abord la mesure du profil de saturation, et d'autres mesures préliminaires garantissant la qualité des résultats. L'étude de la dispersion longitudinale puis transversale en fonction de la saturation à travers la mesure des propagateurs et des moments d'ordre un et deux sera ensuite décrite. Puis ce chapitre résumera les résultats des expériences de traceur en fonction de la saturation du milieu. Finalement, une analyse du signal RMN permettra de relier la dispersion anormale observée aux lois stables (lois de Lévy).

7.1 Saturation dans l'échantillon

La stabilité de la saturation au cours du temps et le long de l'empilement est nécessaire à l'étude de la dispersion en milieu insaturé par RMN. Les expériences RMN sont rapides mais nécessitent néanmoins plusieurs minutes pour acquérir un signal pour chaque temps d'observation. Cette section montre que la stabilité de la saturation est vérifiée, que ce soit au cours du temps, ou le long de l'empilement, et assure la répétabilité des mesures.

Le profil de saturation a été mesuré le long de la colonne à l'aide d'une séquence RMN de type Free Induction Decay (FID) dans une tranche (cf. Section 3.1). Un profil de saturation le long de la colonne pour une co-injection de 50 ml.h^{-1} d'eau et 100 ml.h^{-1} d'huile fluorinert $FC - 43$ est présenté Figure 7.1. Deux séries de mesures ont été effectuées afin d'étudier la variation temporelle de la saturation le long de la colonne. Ces mesures ont été réalisées à trente minutes d'intervalle. Le profil de saturation est stable le long de la colonne, il n'y a pas de pied capillaire. L'absence de pied capillaire évite une dispersion non représentative en entrée de colonne lors des expériences de traceur, ce qui est favorable pour l'analyse des courbes de percées.

Les variations observées entre les deux mesures sont de l'ordre de 1 %. Le profil de saturation, une fois instauré, est donc stable dans le temps. Il a été remarqué que la mise en place d'un nouveau profil de saturation (lors d'une diminution de la saturation) est rapide et que le profil est quasi-immédiatement stable, tandis que la resaturation est plus lente. Des phénomènes d'hystérésis forts entre drainage et imbibition ont été observés. L'étude de la dispersion pour des saturations établies par imbibition n'a pu être effectuée faute de temps, mais devra être réalisée ultérieurement afin d'étudier l'impact de la répartition des phases sur la dispersion.

Des mesures de saturation résiduelle ont été effectuées par RMN pour le couple eau - huile Fluorinert FC-43, que ce soit pour la phase eau (S_{WR}) ou la phase huile (S_{OR}). On obtient :

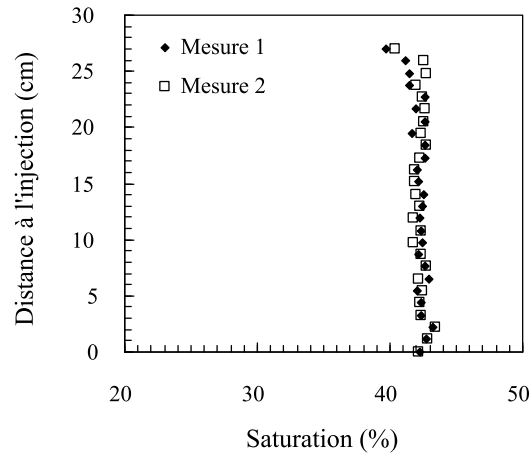


FIGURE 7.1 – Profil de saturation le long de la colonne pour une co-injection de 50 ml.h^{-1} d'eau et 100 ml.h^{-1} d'huile fluorinert $FC - 43$, deux mesures distinctes.

$$S_{WR} = 13 \% \quad (7.1)$$

$$S_{OR} = 14 \% \quad (7.2)$$

Trois mesures identiques de propagateurs pour un écoulement dans un milieu de saturation 46 %, pour un temps d'observation de 200 ms ont été réalisées. Les propagateurs obtenus sont présentés Figure 7.2. Ces propagateurs sont, à quelques variations près, identiques. La mesure de σ^2 à partir du signal RMN donne, pour les trois mesures, une valeur identique de $1.16 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2$.

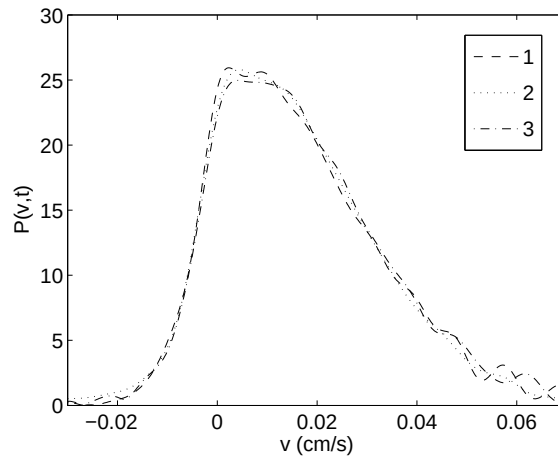


FIGURE 7.2 – Répétabilité des mesures de propagateurs en milieu insaturé : saturation 46 %, débits d'air et d'huile de 50 ml.h^{-1} chacun, temps d'observation de 200 ms . Les valeurs de σ^2 associées sont égales et de valeur $1.16 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2$.

La variation de la répartition des phases dans le temps, si elle a lieu, n'influence pas les résultats des mesures de manière visible. Des visualisations de la répartition des phases en milieux poreux bi-

dimensionnel gravés montrent que si la phase mouillante est toujours continue, la phase non mouillante se déplace suivant les conditions (rapport de viscosité, rapport des débits et nombre capillaire) sous forme discontinue ou continue (Lenormand *et al.*, 1983, Avraam et Payatakes, 1995, Tallakstad *et al.*, 2009). La phase non mouillante est de plus continue lorsque la saturation est forte et / ou le nombre capillaire élevé. Dans notre cas, le rapport des viscosités, la tension interfaciale et la mise en place des phases en partant d'une saturation totale en eau, sont favorables et permettent de supposer que la phase non mouillante est continue. Les variations observées pourraient être dues à l'instabilité de l'interface, où se forment et fusionnent des ganglions de phase non mouillante. Toutefois, ce régime d'écoulement continu n'est pas assuré de manière formelle et les variations observées sur les propagateurs peuvent aussi être dues à un écoulement de la phase non-mouillante sous forme de ganglions. Avraam et Payatakes (1995) montrent en effet que ce type d'écoulement est stationnaire mais bruité à méso-échelle (plusieurs centaines de pores, typiquement la taille de la tranche RMN utilisée).

La répétabilité des mesures en écoulement diphasique ainsi que la stabilité de la saturation est vérifiée. La répartition de la phase non-mouillante (huile) n'est pas connue. Les mesures de propagateurs sont réalisées dans des conditions de saturation constante et uniforme.

7.2 Dispersion longitudinale et saturation

Cette section présente les résultats de la mesure de propagateurs et des moments longitudinaux pour différentes saturations (de 100 % à 42 %). Le débit d'injection d'eau a été fixé à 50 ml.h^{-1} . Ce débit est suffisamment faible pour minimiser la pression dans la colonne en co-injection et engendrer des vitesses moyennes comparables avec celles de l'injection de 100 ml.h^{-1} en milieu saturé. Pour obtenir la gamme de saturation voulue (de 40 à 100 %) avec des huiles Fluorinert il n'est pas possible d'injecter l'eau à un débit plus important.

Il a été montré dans le Chapitre 6 que le débit de 100 ml.h^{-1} en monophasique ne permettait pas l'observation du régime asymptotique de dispersion pour les temps d'observation accessibles à la mesure RMN. Les discussions sur les résultats prendront ce fait en compte.

7.2.1 Propagateurs longitudinaux

Les propagateurs obtenus pour différents temps d'observation allant de 50 ms à 1000 ms , une saturation de 67% et une vitesse moyenne de 0.010 cm.s^{-1} (débit d'eau de 50 ml.h^{-1} et débit d'huile Fluorinert FC-77 de 20 ml.h^{-1}) sont asymétriques à petit temps d'observation et se rapprochent d'une gaussienne centrée sur la vitesse moyenne à grand temps (Figures 7.3a et 7.3b). En comparant le propagateur pour $t_{\Delta} = 50 \text{ ms}$ avec le propagateur pour $t_{\Delta} = 50 \text{ ms}$ obtenu en milieu saturé pour une vitesse moyenne d'écoulement de 0.015 cm.s^{-1} soit un débit de 100 ml.h^{-1} (Figure 6.10), il apparaît que le propagateur insaturé est plus asymétrique. L'évolution des propagateurs en fonction du temps montre toutefois un retour à la dispersion asymptotique gaussienne aux grands temps.

Les Figures 7.4 et 7.5 présentent les propagateurs pour une saturation de 42% (débit d'eau de

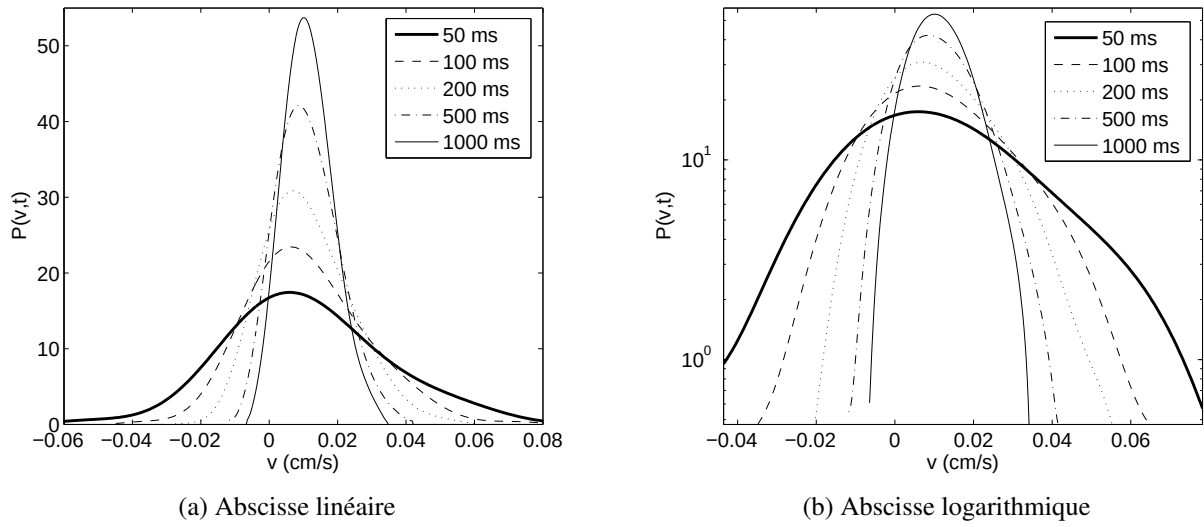


FIGURE 7.3 – Propagateurs longitudinaux mesurés pour une saturation de 69% et une vitesse interstitielle de 0.010 cm.s^{-1} .

50 ml.h^{-1} et débit d'huile Fluorinert FC-43 de 100 ml.h^{-1}). La vitesse moyenne d'écoulement est de 0.017 cm.s^{-1} . Ces propagateurs présentent une asymétrie plus prononcée que les propagateurs obtenus pour un écoulement saturé de vitesse 0.015 cm.s^{-1} (Figure 6.10) ou un écoulement insaturé de saturation 69% et de vitesse moyenne 0.010 cm.s^{-1} (Figure 7.3).

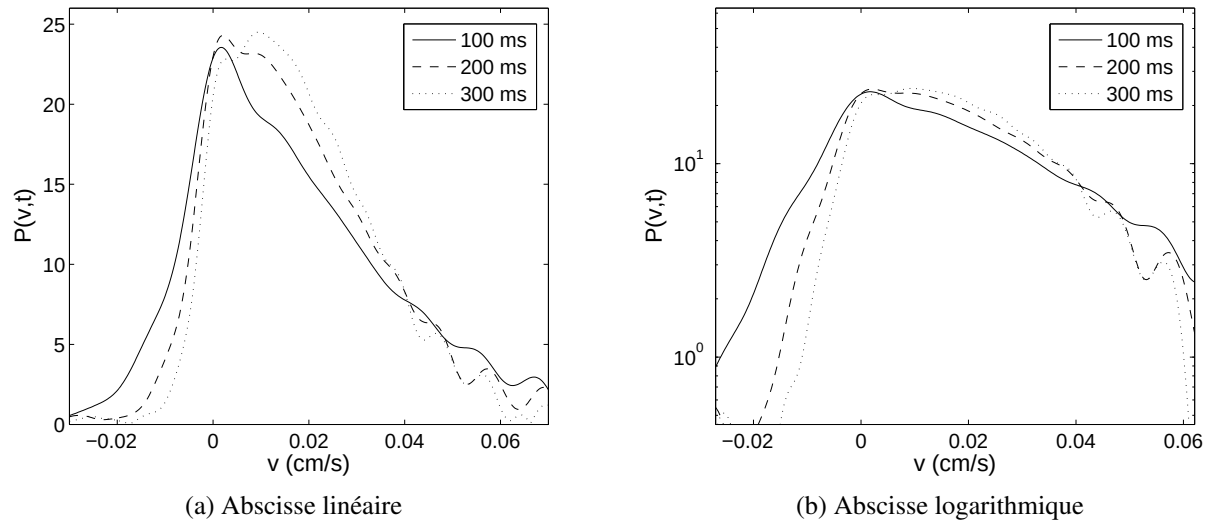


FIGURE 7.4 – Propagateurs longitudinaux mesurés pour une saturation de 42% et une vitesse interstitielle de 0.017 cm.s^{-1} et des temps d'observation de 100 ms, 200 ms et 300 ms.

L'asymétrie du propagateur ne disparaît pas pour les temps étudiés. Les propagateurs pour des temps d'observation de 400 ms et 500 ms sont quasi-identiques, fortement asymétriques et clairement non gaussiens (Figure 7.5b), ce qui laisse penser que le régime asymptotique de dispersion est atteint

et que celui-ci est fortement anormal.

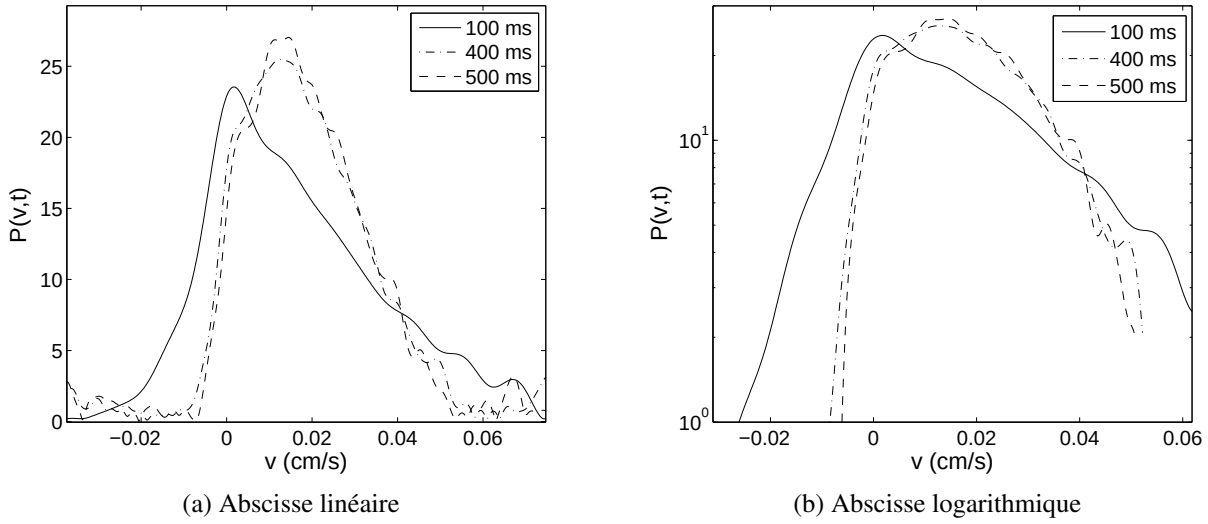


FIGURE 7.5 – Propagateurs longitudinaux mesurés pour une saturation de 42% et une vitesse interstitielle de 0.017 cm.s^{-1} et des temps d'observation de 100 ms, 400 ms et 500 ms.

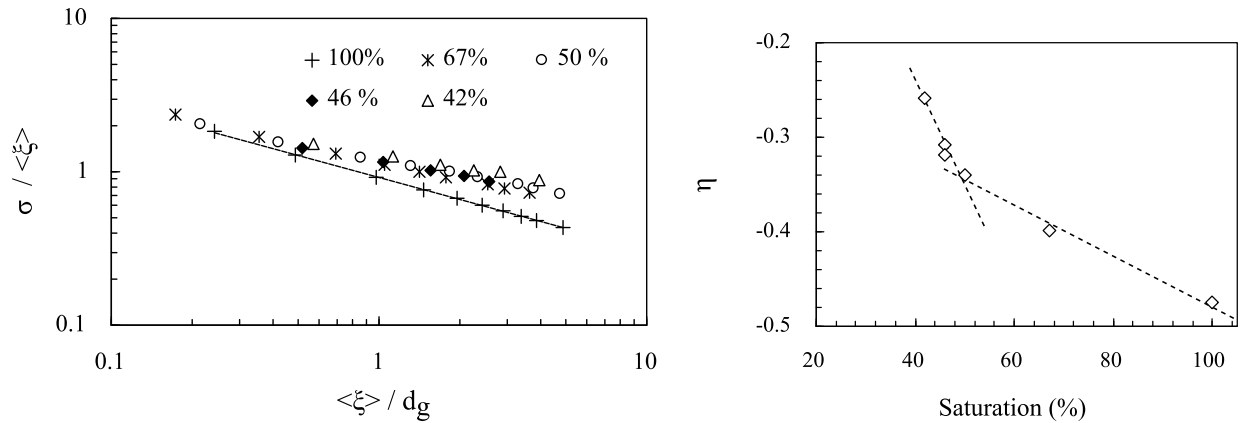
Les propagateurs obtenus pour des temps identiques et de saturations différentes montrent que la diminution de la saturation augmente l'asymétrie des propagateurs. La diminution de la saturation augmente donc l'hétérogénéité du champ de vitesse. La faible persistance d'un pic net aux faibles vitesses nous permet de penser qu'il n'existe pas de zones stagnantes à proprement parler mais plutôt des zones de faibles écoulements plus ou moins bien connectées aux chemins d'écoulements rapides. L'augmentation de l'asymétrie en fonction de la saturation pourrait alors s'expliquer par le découplage progressif des zones d'écoulements lents des zones d'écoulements préférentiels.

7.2.2 Analyse des moments

L'étude des écoulements saturés a montré la robustesse des mesures des moments ainsi que leur apport pour l'étude des régimes de dispersion. L'étude du moment d'ordre deux (σ^2) a été effectuée pour les expériences en milieux insaturés décrites ci-dessus. Elle doit permettre de décrire l'influence de la saturation sur le régime de dispersion, les résultats seront comparées aux résultats des écoulements saturés.

Comme pour l'étude de la dispersion en milieu saturé, σ normalisé par le déplacement moyen $\langle \xi \rangle$ et exprimé en fonction du déplacement moyen normalisé par la taille de grains $\langle \xi \rangle / dg$ est étudié, les résultats pour l'ensemble des saturations étudiées sont présentés Figure 7.6a. Les gammes de temps utilisées dans les différentes expériences sont identiques, la dispersion des données selon $\langle \xi \rangle / dg$ est faible, ce qui montre que la vitesse interstitielle est similaire pour les différentes expériences. Elle varie entre 0.017 cm.s^{-1} pour 42 % de saturation et 0.010 cm.s^{-1} pour 67 % de saturation.

L'évolution de l'exposant η (défini par l'Équation 6.3 de la Section 6.2) est représentée en fonction

(a) $\sigma / \langle \xi \rangle$ en fonction de $\langle \xi \rangle$ pour différentes saturations

(b) Exposant de la loi de puissance et saturation

FIGURE 7.6 – Évolution de $\sigma / \langle \xi \rangle$ longitudinal en fonction du déplacement moyen normalisé par la taille de grains pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type $\langle \xi \rangle^\eta$: La vitesse interstitielle est quasi-constante pour toutes les expériences.

de la saturation sur la Figure 7.6b. La valeur de η se rapproche de zéro lorsque la saturation diminue. Les valeurs obtenues sont clairement plus faibles que la valeur asymptotique observée en écoulement saturé (qui est de -0.4 , cf. Paragraphe 6.2.2.1). L'évolution de η ne montre pas de valeur limite et semble changer de régime à partir de 50 % de saturation. La diminution de la saturation diminue la valeur de l'exposant η , plus fortement pour les saturations inférieures à 50 %. La dispersion mécanique augmente donc avec la diminution de la saturation. La dispersion observée est fortement anormale, le régime de dispersion étant supposé pré-asymptotique, on s'attend à ce que la dispersion soit encore plus fortement anormale en régime asymptotique.

La Figure 7.7a présente l'évolution de σ^2 en fonction du temps d'observation. Les conclusions sur les vitesses des différentes expériences sont identiques à celles développées précédemment. σ^2 augmente avec la diminution de la saturation. La diminution de la saturation favorise la dispersion des molécules d'eau. Pour une même saturation et des durées de déplacement suffisamment grandes, les différentes mesures sont alignées et suivent une loi de puissance de type t_Δ^a . L'évolution de l'exposant a en fonction de la saturation est présentée Figure 7.7b. Cet exposant évolue par rapport à la saturation de manière similaire à η . Il n'est pas observé de valeur seuil. Les valeurs observées sont toutes supérieures à la valeur asymptotique des écoulements saturés (qui est de 1.17, cf. Paragraphe 6.2.2.1). La dispersion anormale est de type fortement super-dispersif. Au vu de l'évolution des propagateurs, le régime asymptotique est supposé pratiquement atteint, toutefois, dans le cas où celui-ci ne serait pas établi, la valeur de a devrait, à notre avis, encore augmenter en régime asymptotique, la super-dispersion asymptotique serait donc plus importante que celle observée ici.

On peut noter que la mesure des exposants est relativement robuste. Deux mesures distinctes de ces exposants ont été effectuées pour un écoulement de 46 % de saturation, les η et a obtenus sont présentés dans les Figures 7.6b et 7.7b. D'après ces deux expériences, la variabilité des mesures de η est d'environ ± 0.02 et celle des mesures de a est d'environ ± 0.04 .

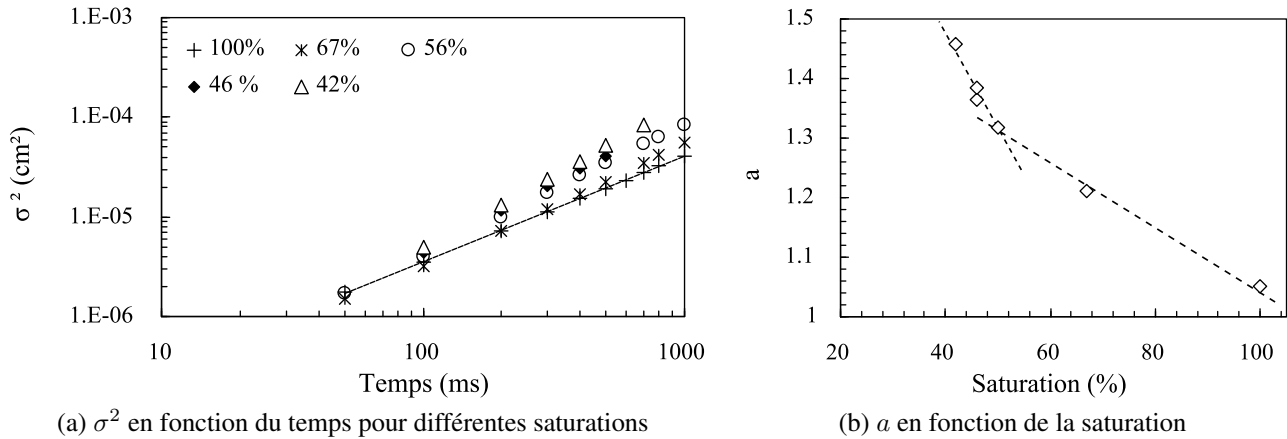


FIGURE 7.7 – Évolution de σ^2 longitudinal en fonction du temps pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type t^α .

Les coefficients de dispersion effectifs longitudinaux pour chaque saturation en fonction du temps d'observation ont été calculés de la même manière que pour les écoulements saturés, à partir de l'Équation 6.4. La courbe σ^2 en fonction de t étant de la forme ct^a , on peut la dériver pour résoudre l'Équation 6.4 et obtenir l'expression de $D_{eff}(t)$. Ces coefficients sont présentés, en compagnie des coefficients de dispersion effectifs obtenus en saturé et de l'enveloppe des points expérimentaux obtenus en écoulement saturé et compilés par Khrapitchev (2003), dans la Figure 7.8. La dispersion de la valeur du coefficient de dispersion effectif en fonction du temps d'observation, pour un même nombre de Peclet, augmente avec la diminution de la saturation, ce qui est cohérent avec l'évolution des exposants η et a . La dispersion dépend du temps d'observation pour les écoulements insaturés et augmente avec la diminution de la saturation, ce qui est typique de la dispersion anormale de type super-dispersion. Ceci peut s'expliquer par l'augmentation de la tortuosité du chemin d'écoulement et donc l'augmentation de l'hétérogénéité du champ de vitesse. Nous pensons que la diminution de la saturation n'engendre pas de zones stagnantes à proprement parler (en tout cas aux saturations étudiées), mais qu'elle agit en découplant progressivement les zones de faible vitesse des chemins préférentiels d'écoulement.

Par ailleurs, les valeurs du coefficient de dispersion effectif, pour un même nombre de Peclet, sont plus élevées en écoulement insaturé qu'en écoulement saturé et la dispersion en fonction du temps d'observation est plus forte, ce qui traduit un régime de dispersion plus fortement anormal dans les milieux insaturés. Ces valeurs restent toutefois dans la gamme des points expérimentaux compilés par Khrapitchev (2003) provenant en majorité d'expériences classiques de traceur. Toutefois, la dépendance en temps, telle que mesurée par RMN, n'est pas accessible aux mesures par traçage. Il est donc intéressant d'effectuer des mesures de traceur classique pour relier ces expériences RMN aux résultats classiques.

Il est difficile de conclure à une augmentation de la dispersion liée à la diminution de la saturation autrement que par la variation de la vitesse interstitielle. La diminution de la saturation augmente

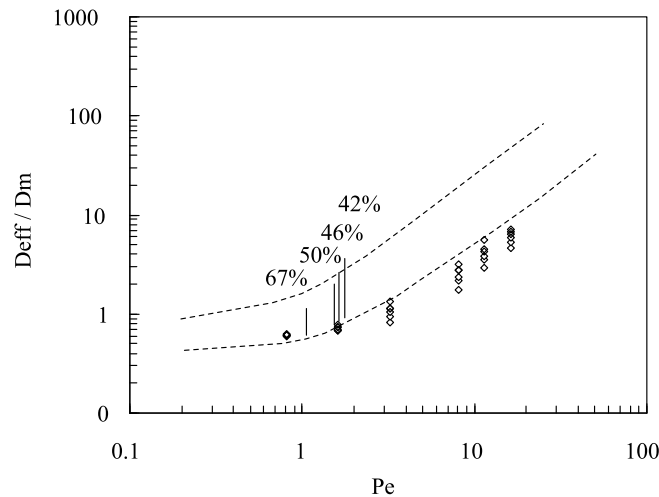


FIGURE 7.8 – Coefficients de dispersion effectifs longitudinaux mesurés en écoulements insaturés normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet. (–) D_{eff}/D_m pour chaque saturation (un nombre de Peclet et différents temps). ($\diamond$) D_{eff}/D_m pour les écoulements monophasiques. Les tirets forment l’enveloppe de points expérimentaux compilés dans Khrapitchev (2003).

clairement l’anormalité de la dispersion mais n’augmente pas de manière flagrante la dispersion elle-même. L’analyse des coefficients de dispersion effectifs pour les saturations donnant un nombre Peclet proche (50, 46 et 42 %) semble toutefois montrer une légère augmentation de la dispersion liée à l’augmentation de l’anormalité du régime de dispersion.

Le montage expérimental utilisé limite la valeur minimale de saturation atteinte en raison de pressions trop importantes. Il serait intéressant de développer une cellule plus robuste pour pouvoir étudier les très faibles saturations et conclure quand à l’apparition d’un seuil dans les valeurs de a ou η . De fait, nous verrons par la suite qu’un tel seuil est observé dans le cas de la dispersion transverse.

7.3 Dispersion transverse et saturation

Il a été remarqué, en écoulement saturé, que la dispersion transverse était différente de la dispersion longitudinale et suivait un régime de dispersion Gaussien (c-a-d normal). Des mesures transverses ont été réalisées pour certaines valeurs de saturation (100, 67, 50, 46 et 42 %). Les résultats des ces mesures sont présentés dans cette section. On observe notamment que plus la saturation est élevée, plus les propagateurs se rapprochent des propagateurs gaussiens obtenus en écoulement saturé.

Les Figures 7.9a et 7.9b présentent les propagateurs transverses obtenus pour deux saturations (42 et 46 %). La largeur des propagateurs est quasi-identique pour des temps d’observations identiques et des saturations de, respectivement, 46 et 42 %. Pour des saturations inférieures à 50 %, les propagateurs transverses ne dépendent que faiblement de la saturation et de la vitesse interstitielle. Les propagateurs transverses en milieux insaturés, présentés Figure 7.9, sont de forme triangulaire avec un pic légèrement arrondi aux faibles déplacements et des trainées au grands déplacements. La

forme de ces propagateurs est proche de la forme des densités des lois stables présentées Section 7.5, Paragraphe 7.5.1.

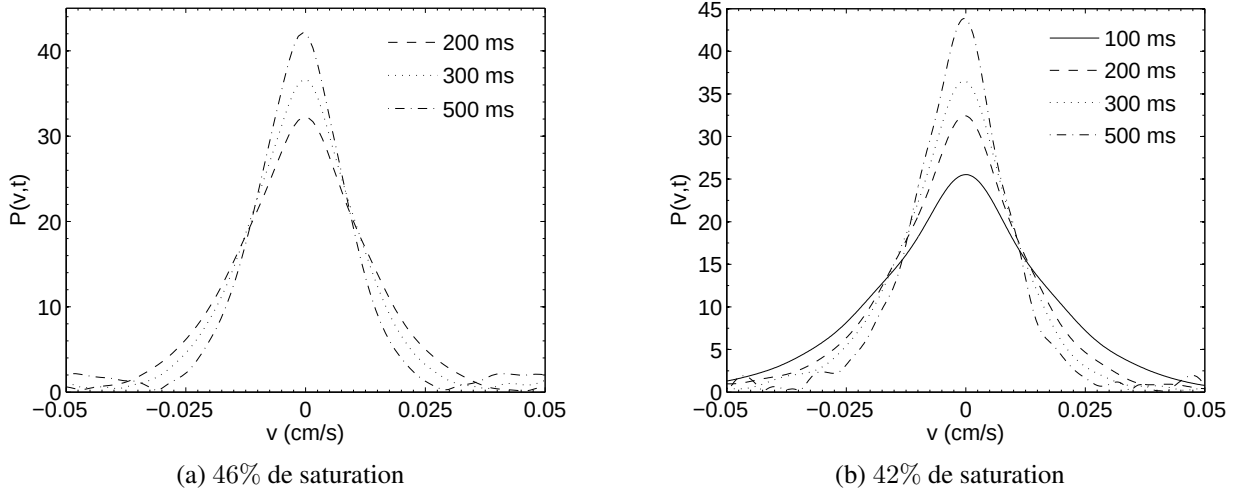


FIGURE 7.9 – Propagateurs transverses pour des saturations de 42% et 46% et des vitesses de, respectivement, $3 \cdot 10^{-3} \text{ cm.s}^{-1}$ et $3.3 \cdot 10^{-3} \text{ cm.s}^{-1}$.

L'évolution de $\sigma_T/\langle\xi\rangle$ transverse en fonction du déplacement moyen normalisé par la taille des grains, et l'évolution de η (provenant de l'ajustement par une loi de puissance de type $\langle\xi\rangle^\eta$ des mesures expérimentales) pour différentes saturations sont présentés Figure 7.10. La valeur de η augmente jusqu'à une saturation de 50 %, puis semble se stabiliser à la valeur de -0.41 pour des saturations plus faibles. La dispersion transverse dans le cas des écoulements insaturés est faiblement superdispersive. La valeur maximale de η est proche de la valeur asymptotique longitudinale obtenue en écoulement saturé. Or, en saturé, pour cette valeur de η les propagateurs longitudinaux sont quasi-gaussiens, ce qui n'est pas le cas ici. Par ailleurs, la valeur de $\sigma_T/\langle\xi\rangle$ augmente plus faiblement avec la diminution de la saturation que dans le cas de la dispersion longitudinale (Figure 7.6a). Ceci suggère une influence de la dispersion mécanique dans la direction transverse plus faible que dans la direction longitudinale. La dispersion mécanique augmente avec la diminution de la saturation. Ce qui pourrait s'expliquer par des écoulements transverses plus importants, sans doute dûs à l'augmentation du nombre de films épousant la surface des grains. On peut de plus remarquer que les valeurs de $\sigma_T/\langle\xi\rangle$ sont proches les unes des autres pour les différentes saturations et des temps identiques, ce qui est cohérent avec le fait que les propagateurs sont de largeur quasi-identique. L'existence de la stabilisation des valeurs de η laisse penser que l'influence de la dispersion mécanique se stabilise pour des saturations comprises entre 50 et 42 %. L'augmentation de la vitesse interstitielle consécutive à la diminution de la saturation ne semble plus agir que très faiblement sur la dispersion transverse. La légère différence de $\sigma_T/\langle\xi\rangle$ pour les saturations 46 et 42 % pourrait indiquer que η n'atteint pas un pallier mais change de type d'évolution par rapport à la saturation.

L'évolution de σ_T^2 en fonction du temps, et l'évolution de a (provenant de l'ajustement par une

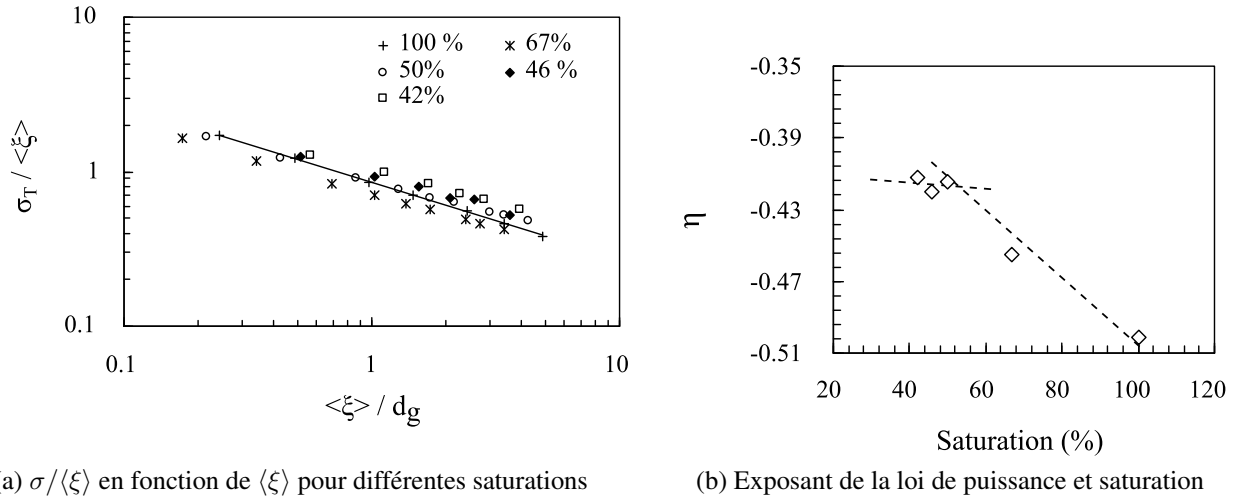


FIGURE 7.10 – Évolution de $\sigma / \langle \xi \rangle$ transverse en fonction du déplacement moyen normalisé par la taille de grains pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type $\langle \xi \rangle^\eta$.

loi de puissance de type t_Δ^a des mesures expérimentales) pour différentes saturations sont présentés Figure 7.11. On retrouve la faible augmentation du moment d'ordre deux avec la diminution de la saturation. L'exposant a augmente avec la diminution de la saturation. En dessous de la saturation 50 %, a atteint une valeur quasi-stable de 1.16. Pour des saturations comprises entre 50 et 42 %, la cinétique de dispersion transverse semble constante quelle que soit la saturation. L'explication de cette quasi-stabilité est encore floue, de plus la faible gamme de saturation sur laquelle est observée cette stabilisation peut laisser penser que celle-ci est due à la variabilité des mesures. Il semble donc essentiel d'effectuer des expériences complémentaires afin d'étudier de manière plus approfondie la gamme de saturation comprise entre 20 et 60 %.

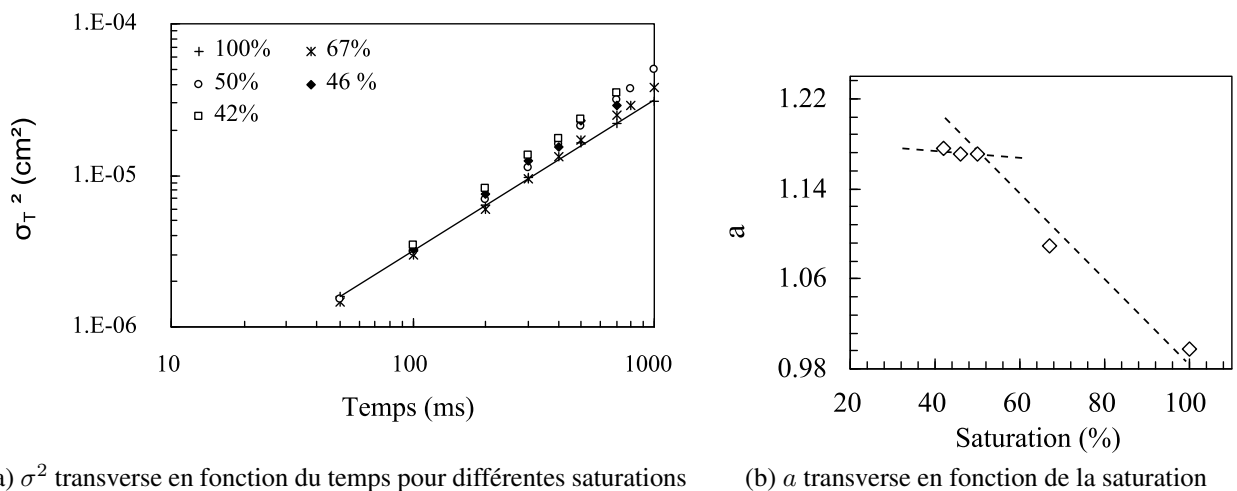


FIGURE 7.11 – Évolution de σ^2 transverse en fonction du temps pour différentes saturations et ajustement par une loi de puissance de type t_Δ^a .

Les coefficients de dispersion effectifs transverses ont été calculés de la même manière que les coefficients de dispersion effectifs longitudinaux, et sont comparés aux coefficients de dispersion effectifs transverses obtenus dans le cas d'écoulements saturés dans la Figure 7.12. Alors qu'en milieu saturé la dispersion transverse est gaussienne et que D_{eff} ne dépend pas du temps d'observation, en milieu insaturé la dispersion est super-dispersive et D_{eff} dépend du temps d'observation.

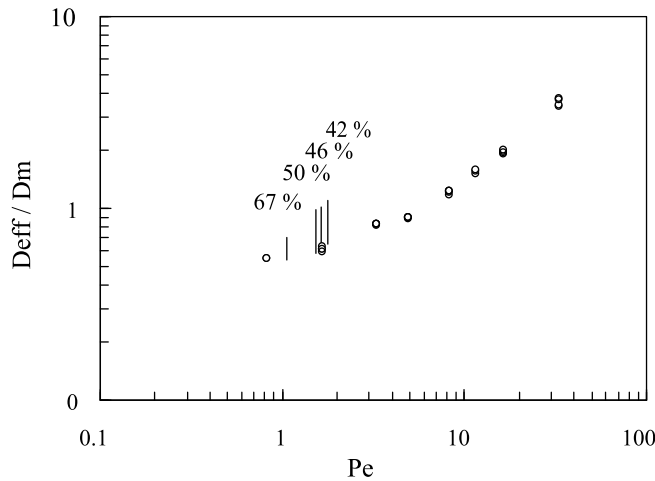


FIGURE 7.12 – Coefficients de dispersion effectifs transverses mesurés en écoulements insaturés normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet, et pour différents t_{Δ} . (–) D_{eff}/D_m pour chaque saturation (un nombre de Peclet et différents temps). (○) D_{eff}/D_m pour les écoulements monophasiques.

La Figure 7.13 compare les coefficients de dispersion effectifs transverses et longitudinaux pour les écoulements insaturés. Les symboles correspondent aux temps d'observation extrêmes (50 et 1000 ms), identiques dans les deux cas. La dépendance en temps de la dispersion transverse est moins importante que celle de la dispersion longitudinale, ce qui est cohérent avec les valeurs des exposants η et a mesurés. La dispersion est plus fortement super-dispersive dans la direction longitudinale.

Il a été observé que la dispersion transverse est moins impactée par la dispersion mécanique que la dispersion longitudinale. L'écoulement principal se fait selon l'axe longitudinal, le milieu étant très bien connecté, les déplacements transverses sont relativement faibles et varient faiblement avec la vitesse d'écoulement. Ces déplacements transverses jouent toutefois un rôle important dans le cas des écoulements insaturés, la forme du propagateur montre que la dispersion transverse n'est pas dominée fortement par la diffusion moléculaire comme dans le cas des écoulements saturés.

En conclusion, le régime de dispersion transverse tend, avec la diminution de la saturation, vers un régime faiblement super-dispersif. La diminution de la saturation, en favorisant les écoulements dans les films suivant la géométrie des grains de SiC, augmente l'hétérogénéité des vitesses transverses. Ceci engendre une forme non gaussienne des propagateurs proche des formes des lois stables, et un régime de dispersion super-dispersif. Il nous est actuellement difficile d'expliquer, si il existe, le changement de régime dans l'évolution de la super-dispersion en fonction de la saturation. Des expériences complémentaires sont indispensables.

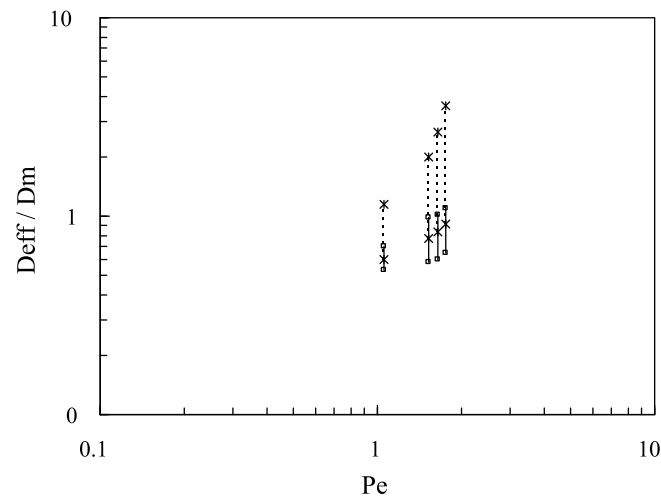


FIGURE 7.13 – Comparaison des coefficients de dispersion effectifs longitudinaux et transverses mesurés en écoulements insaturés normalisés par le coefficient de diffusion moléculaire en fonction du nombre de Peclet, et pour différents t_{Δ} . (*) D_{eff}/D_m longitudinaux pour 50 et 1000 ms , le trait pointillé représentant l'évolution en fonction du temps entre ces valeurs. ($\square$) D_{eff}/D_m transverses pour 50 et 1000 ms , le trait continu représentant l'évolution en fonction du temps entre ces valeurs.

7.4 Expériences de traceur

L'objectif des expériences de traceur est de relier l'approche RMN de la dispersion à l'approche classique par traceur. Il a été montré dans le Chapitre 5 au Paragraphe 5.5 que les mesures de la largeur des courbes de percées locales n'étaient pas quantitatives du fait d'une dispersion du traceur dans les canaux d'injection, mais que ces courbes de dispersion restaient représentatives de la dispersion dans le milieu poreux.

Des expériences de traceur par RMN au Deutérium ont été réalisées en co-injection saumure $NaCl$ à 150 g/l et huile Fluorinert $FC - 43$. Le Deutérium est injecté dans la saumure qui est la phase mouillante. Ce couple de fluides permet, pour des débits équivalents, d'obtenir des saturations plus faibles que le couple eau - huile Fluorinert $FC-43$. Ceci est dû à une tension interfaciale entre les deux liquides plus faible qu'entre l'eau et l'huile, et à l'augmentation des pressions dans la colonne du fait de la viscosité plus importante de la saumure par rapport à l'eau. Les saturations en saumure sont de 100 %, 52 %, 40 %, 37 % et 33 % ; soit des couples de débits saumure - huile respectivement de 100 – 0, 50 – 20, 50 – 50, 50 – 100 et 50 – 150 (en $ml.h^{-1}$). Ces couples de débit et ces saturations engendrent des vitesses moyennes de la saumure de 0.014, 0.014, 0.018, 0.019, et 0.021 $cm.s^{-1}$.

Les résultats de ces diverses expériences, pour une zone de mesure située à 8.5 cm de l'entrée de la colonne, sont présentés Figure 7.14. Le graphique représente le volume de traceur cumulé (normalisé par le volume total de traceur) traversant la tranche en fonction du volume de saumure injecté (normalisé par le volume de pore précédant la zone de mesure). La vitesse moyenne du nuage de traceur est égale à la vitesse moyenne de l'écoulement, la moitié du volume de traceur est passé par la zone de mesure lorsque le volume de fluide injecté est égal au volume de pore, et ce, quelle que soit la saturation considérée.

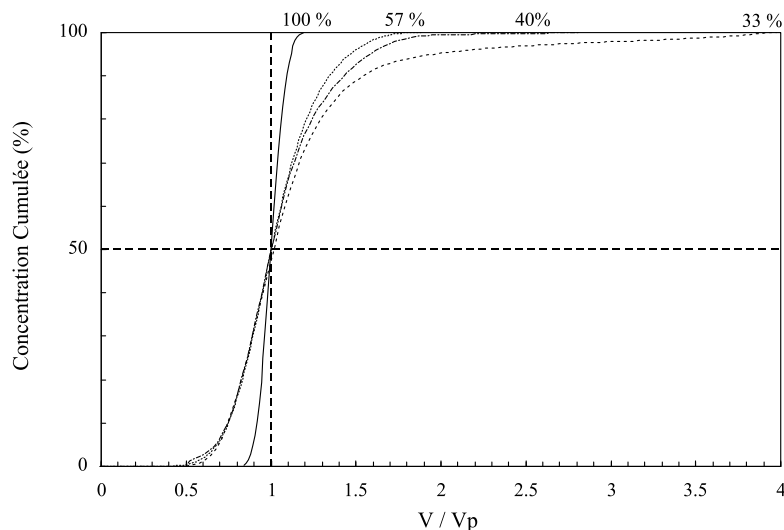


FIGURE 7.14 – Influence de la saturation sur la dispersion d'un traceur passif dans l'empilement de grains de SiC : Ce graphique montre les résultats d'expériences de traceur au Deutérium pour différentes saturation, la zone de mesure du volume de traceur se situant à 8.5 cm de l'entrée de la colonne. Ces résultats sont exprimés en volume de traceur cumulé (normalisé par le volume total) au niveau de la zone de mesure en fonction du volume de fluide injecté depuis le lachage du traceur (normalisé par le volume de pore précédant la zone de mesure).

L'insaturation du milieu poreux engendre une arrivée précoce et une sortie retardée (trainée) de traceur. L'arrivée précoce est relativement stable en fonction de la saturation, mais la trainée augmente lorsque la saturation diminue. On peut interpréter ceci en suggérant que la diminution de la saturation génère une hétérogénéité forte du champ de vitesse et une déconnection progressive des zones stagnantes aux zones circulantes de la phase mouillante (De Gennes, 1983).

L'évolution du nuage de traceur en fonction de la position de mesure dans la colonne a été étudiée, les résultats d'une expérience de traceur à la saturation de 40 % pour une zone de mesure à 8.5 et 15 cm de l'entrée de la colonne sont présentés Figure 7.15.

La comparaison entre la courbe de concentration cumulée à 8.5 cm de l'entrée et celle à 15 cm montre que la dispersion augmente, et il existe toujours une trainée de traceur forte. La première partie de la courbe de concentration cumulée devient moins asymétrique. Il semble que la dispersion devienne plus homogène avec l'éloignement à l'entrée de l'empilement, en tout cas pour ce qui s'agit du front du nuage de traceur. Ce comportement montre une dépendance en espace de la dispersion (Fourar et Radilla, 2009). La mesure RMN locale de dispersion (propagateur) a elle montré que la dispersion était dépendante du temps d'observation. La double approche RMN - Traçage montre que la dispersion est à la fois dépendante du temps et de l'espace. Elle est nécessaire pour caractériser de manière complète la dispersion, un effort particulier devra être fait pour pouvoir obtenir des courbes de percées quantitatives lors des expériences de traceur.

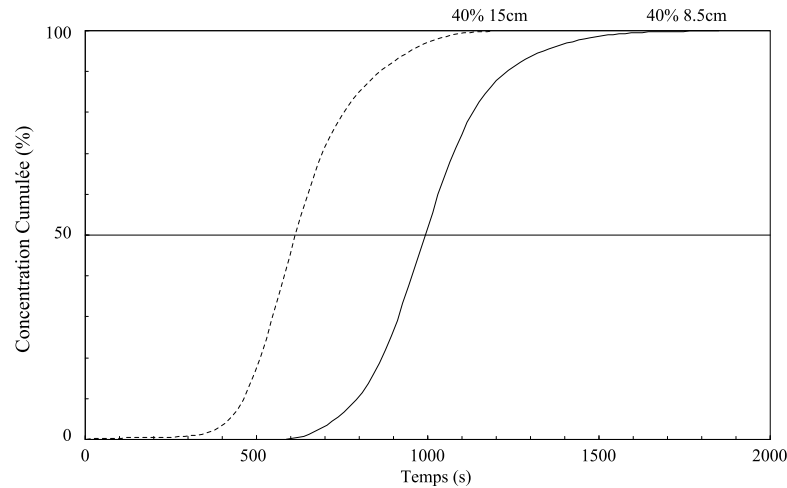


FIGURE 7.15 – Effet de la distance à l’entrée de la zone de mesure sur la dispersion d’un traceur passif dans l’empilement de grains de SiC : Ce graphique montre les résultats d’expérience de traceur dans un milieu saturé à 8.5 cm de l’entrée de la colonne et dans un milieu a une saturation de 40 % à 8.5 cm et 15 cm de l’entrée de la colonne. Ces résultats sont exprimés en volume de traceur cumulé (normalisé par le volume total) au niveau de la zone de mesure en fonction du volume de fluide injecté depuis le lachage du traceur (normalisé par le volume de pore précédant la zone de mesure).

7.5 Dispersion anormale et vols de Lévy

La forme des propagateurs transverses présentés au Paragraphe 7.3 suggère que la dispersion pourrait être mieux décrite par des lois de probabilité comme les lois de Lévy, plus générales que les lois Normales, ainsi que par des processus stochastiques comme les vols de Lévy, plus généraux que le mouvement Brownien. Nous allons appliquer ce point de vue aux résultats présentés aux Sections 7.2 et 7.3, après avoir rappelé l’essentiel de ces outils probabilistes.

7.5.1 Lois stables et vols de Lévy

Les lois stables ou lois de Lévy sont des lois de probabilité $S^{(\alpha, \beta, c, \mu)}$ ayant pour fonction caractéristique $\phi(q) = \exp(\varphi^{(\alpha, \beta, c, \mu)}(q))$, avec $\varphi^{(\alpha, \beta, c, \mu)}(q)$ de la forme :

$$\varphi^{(\alpha, \beta, c, \mu)}(q) = 2\pi i q \mu - |2\pi c q|^\alpha \left(1 - i\beta \text{sign}(q) \tan \frac{\pi\alpha}{2}\right) \quad (7.3)$$

Ces lois stables sont indexées par quatres paramètres. L’exposant caractéristique α ou indice de stabilité décrit la forme de la distribution, notamment l’épaisseur des ailes. Le paramètre β détermine la symétrie ou la dissymétrie de la loi, c est un paramètre d’échelle, μ est un paramètre de position, alors que q est une variable muette qui sert à représenter les grandeurs conjuguées des déplacements dans le cadre de la transformée de Fourier.

La densité de probabilité des lois stables $P(\xi)$ est la transformée de Fourier inverse de leur fonction caractéristique :

$$P(\xi) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(q) \exp(2\pi i \xi q) dq \quad (7.4)$$

La relation entre fonction caractéristique et densité de probabilité est analogue à la relation entre signal RMN et propagateur (propagateur qui est aussi une densité de probabilité), q étant le nombre d'onde et ξ le déplacement. La densité de probabilité d'une loi stable ne peut être obtenue directement que dans trois cas, dont le cas $\alpha = 2$ correspondant à la loi gaussienne. Dans la majorité des cas, on dispose d'une expression impliquant une intégrale (Borak *et al.*, 2005). Quelques densités de probabilité de lois stables caractéristiques sont présentées Figure 7.16.

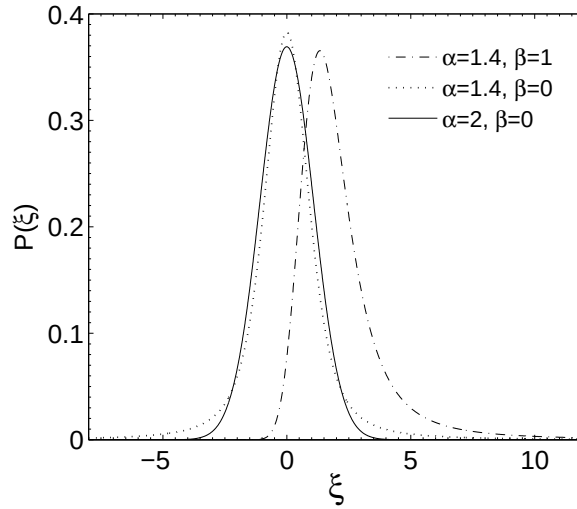


FIGURE 7.16 – Exemples de densité de probabilité de lois stables.

De même que la loi Normale définit la distribution des valeurs prises par le mouvement Brownien, les lois stables définissent la distribution des vols de Lévy $X^{(\alpha, \beta, c, \mu)}(t)$. Les vols de Lévy sont des processus stochastiques avec des incréments indépendants, et une fonction caractéristique de la forme $\exp(t\varphi^{(\alpha, \beta, c, \mu)}(q))$. Le mouvement Brownien est un cas particulier de vols de Lévy ($\alpha = 2$). La variable aléatoire représentant les vols de Lévy $X^{(\alpha, \beta, c, \mu)}(t)$ pour une valeur donnée du paramètre t est distribuée comme $(ct)^{1/\alpha} S^{(\alpha, \beta, 1, 0)}(1) + \mu t$.

L'expression des fonctions caractéristiques des lois stables et des vols de Lévy suggère de comparer le module du signal RMN $|E(q, t_\Delta)|$ avec $\exp(-q^\alpha t_\Delta)$. Ce qui revient à étudier la relation 7.5 qui généralise l'Équation 2.15 du Chapitre 2 dans le Paragraphe 2.3.1.

$$\ln(|E(q, t_\Delta)|) \propto -q^\alpha t_\Delta \quad (7.5)$$

Ainsi, la courbe $\ln |E(q, t_\Delta)|$ en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ ($1 < \alpha \leq 2$) est une droite si la dispersion suit une loi stable d'exposant α . Il est à noter que l'examen du module ne permet pas d'obtenir β et donc de savoir si la loi stable considérée est symétrique ou non.

7.5.2 Modules des signaux RMN et lois stables

Les modules des signaux RMN $|E(q, t_\Delta)|$ décrits aux Paragraphes 7.2.1 et 7.3 vont, dans ce paragraphe, être ré-interprétés à l'aide de l'Équation 7.5.

Les propagateurs transverses pour un écoulement à une saturation de 42 % ressemblent à une loi stable symétrique. La Figure 7.17 présente $\ln(|E(q, t_\Delta)|)$ en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour ces données, il est remarqué que les points expérimentaux se rapprochent d'une courbe quasi-linéaire pour $\alpha = 1.65$, ce qui suggère une dispersion proche d'une loi stable non gaussienne. Ce résultat confirme que la forme du propagateur est proche de celle d'une loi stable.

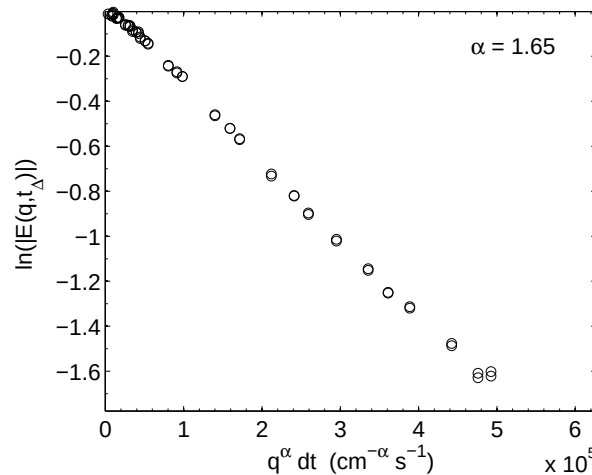


FIGURE 7.17 – Logarithme du module du signal RMN dans le cas de la dispersion transverse en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour une écoulement de débit 50 ml.h^{-1} et de saturation 42 %.

Dans le cas des déplacements longitudinaux une analyse similaire peut-être effectuée. La Figure 7.18 présente les résultats d'une série de mesure sur l'empilement de SiC $30 \mu\text{m}$ saturé dans le cas d'un écoulement nul. Les résultats sont exprimés comme le logarithme népérien du module du signal RMN ($\ln(|E(q, t_\Delta)|)$) en fonction de $q^\alpha t_\Delta$, avec $\alpha = 2$ (cas gaussien, Figure 7.18a) et $\alpha = 1.7$ (loi stable, Figure 7.18b). Les points expérimentaux obtenus à partir des différents temps d'observation forment une courbe quasi-linéaire pour $\alpha = 2$, ce qui traduit une dispersion gaussienne. Cette valeur de α est cohérente avec le fait que la dispersion observée est due uniquement à la diffusion moléculaire, processus typiquement gaussien.

Lorsque que l'on étudie un écoulement saturé de débit 200 ml.h^{-1} (dans le même milieu poreux), les points expérimentaux ne s'alignent plus pour $\alpha = 2$ (Figure 7.19a), mais pour $\alpha = 1.73$ (Figure 7.19b), traduisant ainsi une dispersion légèrement anormale suivant une loi stable. Cette dispersion légèrement anormale a été retrouvée en écoulement saturé par l'étude des moments (Chapitre 6 Paragraphe 6.2.2.1). L'étude des moments permet de mettre en évidence la dispersion anormale mais l'expression des résultats sous la forme présentée dans la Figure 7.19 permet de montrer que la dispersion anormale suit une loi stable et d'en définir l'exposant caractéristique ($\alpha = 1.73$).

De la même façon, pour un écoulement diphasique eau - huile Fluorinert, de saturation 42 %, la

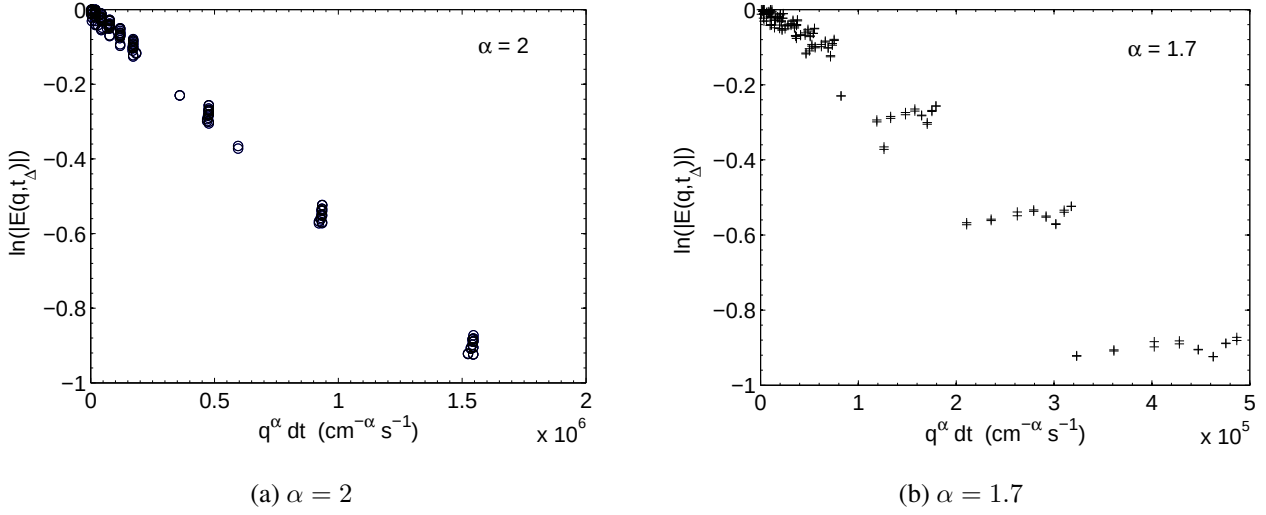


FIGURE 7.18 – Logarithme du module du signal RMN en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour un milieu saturé et un écoulement nul.

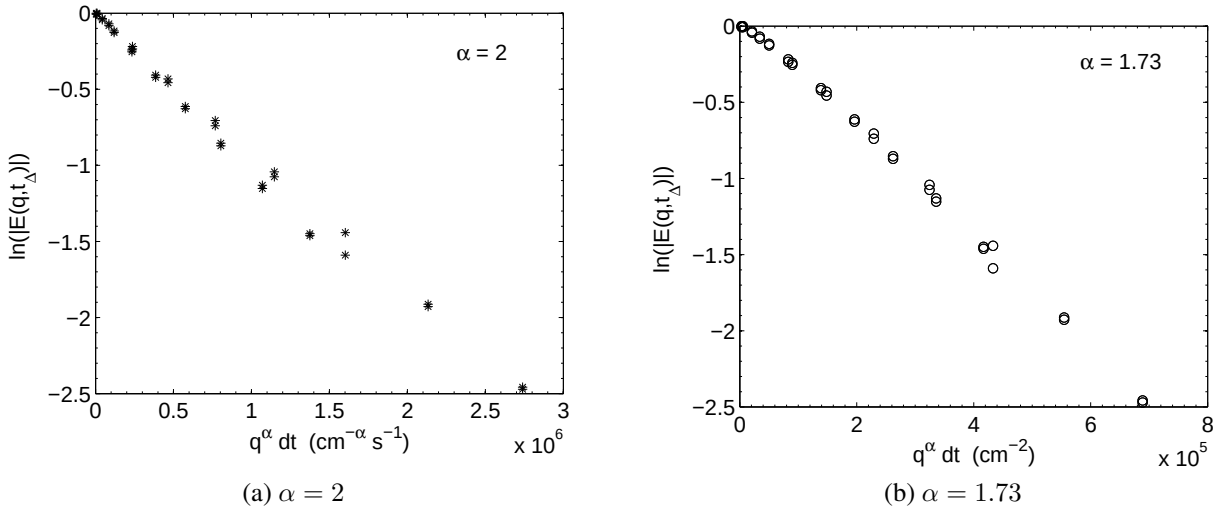


FIGURE 7.19 – Logarithme du module du signal RMN en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour une écoulement saturé de débit 200 ml.h^{-1} .

valeur $\alpha = 2$ ne permet pas d'aligner les points expérimentaux (Figure 7.20a), ceux-ci s'alignent de manière satisfaisante pour $\alpha = 1.4$ (Figure 7.20b). La dispersion anormale mise en évidence par l'étude des propagateurs et des moments dans cet écoulement insaturé (Paragraphes 7.2.1 et 7.2.2) est confirmée par la valeur de α pour laquelle les points expérimentaux s'alignent. Cette dispersion suit une loi stable de paramètre $\alpha = 1.4$.

Ces résultats suggèrent que la dispersion en milieu poreux homogène saturé ou insaturé est mieux représenté par des lois stables ($\alpha \neq 2$) que par des lois Normale. Les exposants de la loi stable obtenus en écoulement insaturé, que ce soit pour la dispersion longitudinale ou la dispersion transverse, sont

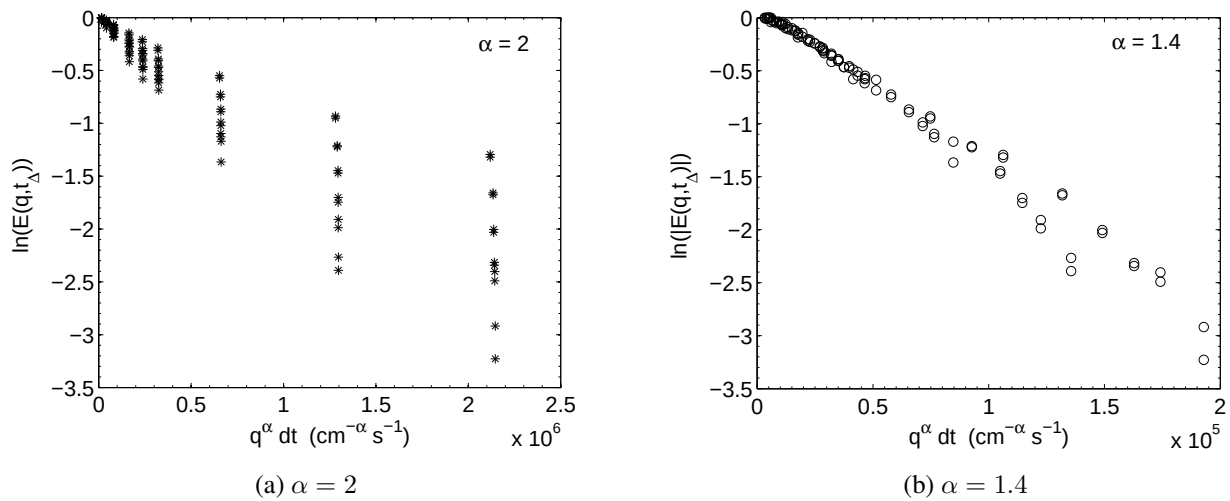


FIGURE 7.20 – Logarithme du module du signal RMN en fonction de $q^\alpha t_\Delta$ pour une écoulement de débit 50 ml.h^{-1} et de saturation 42 %.

plus faibles que ceux de l'écoulement saturé, démontrant ainsi des régimes plus fortement anormaux. Ce qui est cohérent avec les conclusions des études des propagateurs et des moments.

Cette approche ne permet pas de discuter de la symétrie des lois stables décrivant la dispersion anormale (notamment de trouver β). On peut obtenir le paramètre déterminant la symétrie de la loi stable en calant le propagateur (densité de probabilité du déplacement) par la densité de probabilité de la loi stable.

7.5.3 Propagateurs et lois stables

Les propagateurs expérimentaux longitudinaux et transverses, pour une saturation de 42 % et $t_\Delta = 300 \text{ ms}$, ont été calés par des lois stables. Les résultats sont présentés Figure 7.21.

La Figure 7.21a présente le calage du propagateur transverse par deux lois stables symétrique, une loi gaussienne ($\alpha = 2$), et une loi stable ($\alpha = 1.65$). Le choix entre ces deux lois est difficile, la loi stable cale mieux la forme du propagateur pour de petites vitesses et les grandes vitesses, entre les deux, la loi gaussienne cale mieux le propagateur. La forme du propagateur expérimental est entre ces deux lois. La valeur de α relativement proche de 2 ne permet pas de distinguer une forme nettement différente entre les deux valeurs de α (cf. Figure 7.16).

La Figure 7.21b présente le calage du propagateur longitudinal par une loi stable. La forme du propagateur longitudinale n'étant clairement pas gaussienne, le calage par une gaussienne n'est pas présenté. La loi stable ayant été utilisée pour ce propagateur est une loi stable asymétrique ($\beta = 1$), l'exposant caractéristique obtenu est $\alpha = 1.4$. Cette loi stable permet de décrire de manière correcte le propagateur.

Au vu des différences entre propagateurs et lois stables, il semble toutefois que ces dernières ne permettent pas, à elles seules, d'expliquer complètement les propagateurs. De plus les propagateurs,

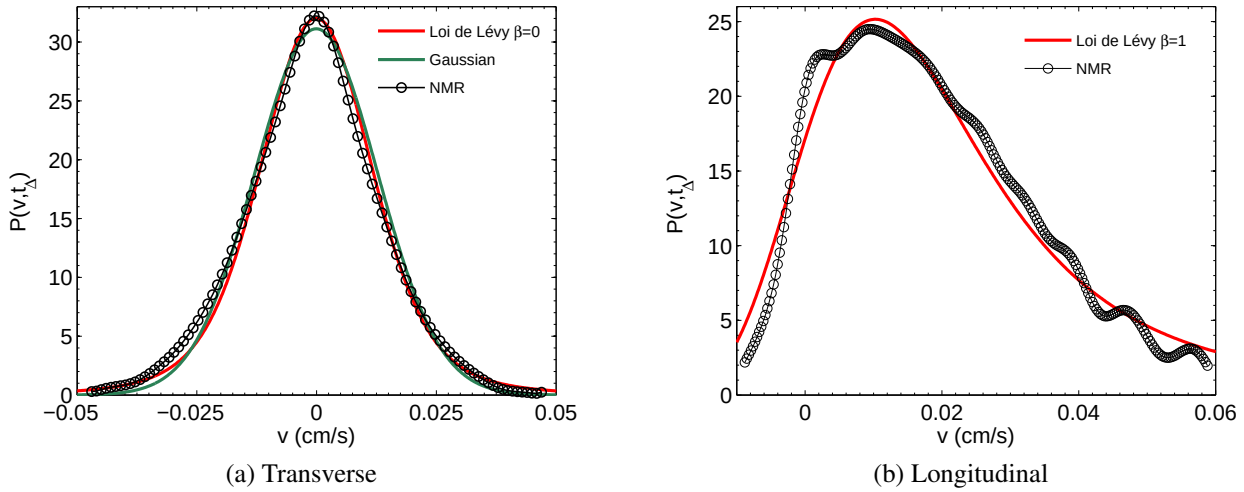


FIGURE 7.21 – Propagateurs transverses et longitudinaux pour 42 % de saturation et $t_{\Delta} = 300 \text{ ms}$ calés par des lois stables : 7.21a propagateur transverse et lois stables centrées symétriques $\alpha = 2$ et $\alpha = 1.65$. 7.21b propagateur longitudinal et loi stable asymétrique non centrée $\alpha = 1.4$ et $\beta = 1$.

obtenus à partir du signal à travers une inversion numérique de la transformée de Fourier, nous donnent des indications visuelles mais ne sont pas adaptés à des comparaisons précises. Une explication plus précise devra donc être envisagée. Par ailleurs, la dépendance des propagateurs en fonction de t_{Δ} n'a pas été considérée. Elle devra être étudiée par la suite à l'aide des vols de Lévy.

7.6 Conclusion

Les mesures de propagateurs et de moments longitudinaux des déplacements dans des écoulements insaturés dans un empilement de grains ont permis d'observer une dispersion longitudinale fortement anormale et de type super-dispersif : le second moment (des déplacements) σ^2 , calculé à l'aide de l'Équation 3.7, est proportionnel à t_{Δ}^a . Cet exposant ($a = 1.46$ pour 42 % de saturation) est nettement différent de la valeur de 1 qui correspond à la dispersion normale. La variabilité observée sur ces mesures de a est d'environ ± 0.04 . Le jeu de mesures réalisé (saturations allant de 100 à 42 %) ne permet pas d'observer l'évolution de la super-dispersion aux très faibles saturations. La diminution de la saturation engendre une augmentation du caractère super-dispersif traduisant une dispersion mécanique accrue. L'évolution du caractère super-dispersif en fonction de la saturation suit deux régimes dont la transition se situe vers 50 % de saturation. En dessous de 50 %, le caractère super-dispersif augmente plus rapidement avec la diminution de la saturation. Ce changement de régime, aussi observé pour la dispersion transverse, est très probablement la conséquence d'un changement de la répartition des phases.

La dispersion transverse dans ces mêmes écoulements insaturés a aussi été étudiée, et ce par les mêmes moyens. Les propagateurs observés sont symétriques mais non gaussiens et présentent une

forme similaire à celle des densités des lois stables. La dispersion transverse est aussi de type super-dispersive et dépend de la saturation, mais moins fortement que la dispersion longitudinale ($a = 1.16$ pour 42 % de saturation). On observe aussi un changement de relation entre le régime de dispersion et la saturation pour les saturations étudiées comprises entre 50 et 42 %. La dispersion transverse semble suivre, pour ces valeurs de la saturation, un régime faiblement super-dispersif quasi-constant et quasi-indépendant de la saturation. L'explication de ce phénomène n'a pu, pour l'instant, être trouvée. Des expériences complémentaires devront être effectuées.

Il a été mis en évidence de manière expérimentale que les dispersions longitudinales et transverses étaient mieux décrites par des lois stables, de type asymétrique dans le cas de la dispersion longitudinale, et symétrique dans le cas la dispersion transverse, que par des lois gaussiennes. Il semble cependant que les lois stables ne permettent pas, à elles seules, de décrire complètement les propagateurs et donc la dispersion. Un effort supplémentaire est nécessaire de ce point de vue. Un modèle plus complexe que les vols de Lévy utilisant un modèle MIM et des lois stables est en cours de développement et d'étude dans le cadre de l'ANR TRAM.

Afin de comparer l'approche RMN à l'approche classique, des expériences de traceur ont été réalisées en écoulement insaturé. Ces expériences ont montré que la dispersion du traceur était anormale, celui-ci étant en partie retardé, et ce d'autant plus que la saturation diminue. En outre, les expériences de traceur ont montré une dépendance en espace de la dispersion, les courbes de percées tendant à devenir plus symétriques avec l'augmentation du nombre de pores traversés.

Nous expliquons la dispersion anormale et la dépendance à la saturation de la dispersion, par l'évolution de la répartition des phases en fonction de la saturation. La phase eau, qui est la phase mouillante, est toujours connectée entre l'entrée et la sortie du système soit par des pores "pleins" soit par des films épais, cette phase est donc présente partout dans le milieu poreux. La co-injection eau-huile étant faite purement en drainage, la phase huile est supposée toujours connectée. La saturation en eau en diminuant, engendre une augmentation de la quantité d'huile dans les pores et donc du nombre de films d'eau, augmentant ainsi l'hétérogénéité du champ de vitesse et la tortuosité des écoulements. Par ailleurs, la diminution de la saturation semble conduire à une déconnection progressive des zones d'écoulements plus rapides des zones d'écoulements plus lents. Les molécules présentes dans ces zones lentes mettraient ainsi plus de temps à rejoindre les zones d'écoulements rapides avec la diminution de la saturation en eau et seraient donc ralenties, au contraire des molécules empruntant les chemins d'écoulements plus rapides. Ceci explique donc qu'il existe des molécules qui sont déplacées plus rapidement ou moins rapidement qu'en dispersion normale dans un milieu saturé.

Troisième partie

Marche aléatoire dans un réseau de pores

L'objectif de la marche aléatoire en réseau de pores est de simuler les expériences de RMN en écoulement saturé et insaturé, afin de pouvoir étudier la dispersion à des temps plus grands que ceux accessibles par la RMN. La marche aléatoire dans des réseaux de pores est une approche numérique simple de la dispersion d'un traceur passif dans un réseau représentatif du milieu poreux considéré. Cette approche repose sur des hypothèses concernant l'écoulement, ainsi que sur les mécanismes de dispersion.

Le réseau de pores déterministe utilisé est extrait d'un échantillon de milieu poreux par des méthodes d'imagerie micro-scanner avancées développées au sein du département Pétrophysique d'IF-PEN. Les images ensuite obtenues sont traitées pour extraire un réseau de pores caractéristique de l'échantillon (cf. Annexe E). Ce réseau de pores représente le milieu réel sous la forme de pores cubiques et de canaux de section triangulaire. Cette représentation simplifiée permet une mise en place simple des films lors d'écoulements diphasiques. La simulation des écoulements monophasiques et diphasiques dans les réseaux de pores extraits est présentée en Annexe F.

La marche aléatoire dans le réseau de pores utilisée dans notre cas, est effectuée par un algorithme de marche aléatoire proche de celui utilisé par Picard et Frey (2007). Cet algorithme est présenté dans le Chapitre 8. Il a été vérifié et validé par différents tests décrits dans le Chapitre 9. Enfin, les résultats de marches aléatoires dans un réseau de pores saturé extrait d'un empilement de grains de sable de Fontainebleau, étudié par RMN (*c.f* Paragraphe 6.2.1), sont présentés Chapitre 10. La comparaison avec les résultats expérimentaux permettra de valider ou non la mesure de la dispersion par ce type de méthode. Les conclusions tirées des résultats des simulations de marche aléatoire en écoulement saturé ont conduit à ne pas étudier les écoulements insaturés.

Chapitre 8

Algorithme de marche aléatoire

Sommaire

8.1	Déplacement des marcheurs dans le réseau	162
8.1.1	Généralités	162
8.1.2	Codage vectoriel du déplacement des marcheurs	163
8.1.3	Mouvement advectif	163
8.1.4	Mouvement diffusif	166
8.1.5	Répartition au passage des nœuds	166
8.2	Recirculation des marcheurs dans le réseau	167
8.3	Calculs des propagateurs de déplacement	168
8.4	Conclusion	168

L'algorithme de simulation de marche aléatoire dans un réseau de pores se base sur une approche Lagrangienne. Le but de la marche aléatoire étant de simuler les déplacements des molécules d'eau étudiés par RMN, les marcheurs sont considérés comme des particules de fluide. Les particules de fluide sont des particules ayant les mêmes caractéristiques (en particulier la même densité) que le fluide dans lequel elles se déplacent. En d'autres termes ce sont des traceurs parfaits, les marcheurs sont passifs et se déplacent en suivant les mêmes règles que les molécules d'eau.

Dans ce chapitre est décrit le déplacement des marcheurs dans le réseau (notamment quelques généralités, le codage vectoriel du déplacement des marcheurs, les mouvements advectifs et diffusifs, le passage des nœuds). D'autre part, le réseau représente un sous-volume du milieu poreux étudié. Nous discutons les conditions aux limites appliquées aux frontières de ce sous-volume, en particulier sous forme de règles pour la recirculation des marcheurs après leur arrivée à la face de sortie du réseau. Finalement, le calcul des propagateurs des déplacements après la marche aléatoire est présenté.

8.1 Déplacement des marcheurs dans le réseau

8.1.1 Généralités

La marche aléatoire se fait de manière semi-analytique et s'apparente à celle utilisée par Picard et Frey (2007), Zhao *et al.* (2010). Les marcheurs se déplacent de deux manières différentes durant chaque pas de temps de durée dt . En effet, ils effectuent un saut advectif L_{Adv} , fonction du pas de temps et du débit dans les canaux traversés. Puis, ils effectuent un saut diffusif instantané L_{Diff} positif ou négatif, dont la longueur est tirée aléatoirement dans une loi Normale centrée réduite d'écart type $\sqrt{2D_{eff} dt}$ (D_{eff} coefficient de diffusion effectif de la phase considérée dans le canal considéré).

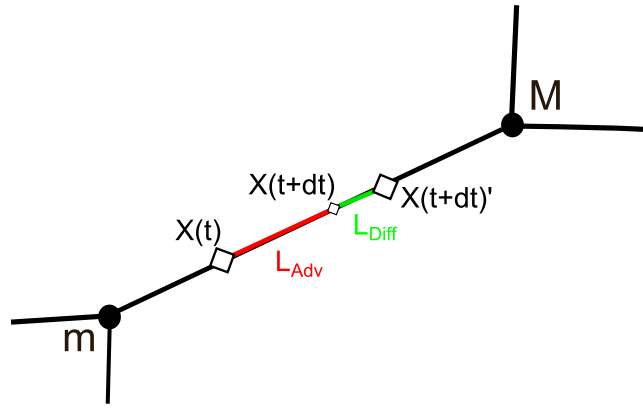


FIGURE 8.1 – Déplacement des marcheurs de deux manières différentes durant un pas de temps. Ils effectuent un saut advectif L_{Adv} , fonction du pas de temps et du débit dans les canaux traversés ; puis un saut diffusif instantané L_{Diff} positif ou négatif, dont la longueur est tirée aléatoirement dans une loi Normale centrée réduite d'écart type $\sqrt{2D_{eff} dt}$ (D_{eff} coefficient de diffusion effectif de la phase considérée et dt le pas de temps).

La nouvelle position des marcheurs $\vec{X}(t + dt)$ est obtenue à partir de la position précédente $\vec{X}(t)$ en ajoutant l'amplitude du saut advectif $L_{Adv}\vec{e}$ et du saut diffusif $L_{Diff}\vec{e}$. On obtient :

$$\vec{X}(t + dt) = \vec{X}(t) + L_{Adv}\vec{e} + L_{Diff}\vec{e} \quad (8.1)$$

avec :

$$L_{Adv} = v_{moy}dt \quad (8.2)$$

où, v_{moy} est la vitesse moyenne du fluide dans le canal ou se déplace la marcheur.

et :

$$L_{Diff} = \sqrt{2D_{eff}dt}N \quad (8.3)$$

où, N est une variable aléatoire indépendante et distribuée selon une loi Normale centrée réduite (cf. Annexe G).

Le déplacement des marcheurs à la vitesse moyenne dans les canaux suppose un brassage transverse total dans les canaux, c-a-d que la diffusion moléculaire est suffisamment importante par rapport à l'advection pour engendrer un mélange total des marcheurs sur toute la largeur du canal (Sorbie et Clifford, 1991). Pour que cette hypothèse se vérifie, le nombre de Peclet local au canal doit être faible (Picard et Frey, 2007). Dans ce cas, la dispersion est uniquement longitudinale, et le régime de dispersion est celui décrit par Taylor (Taylor, 1954) si la longueur du canal est suffisante. Dans le cas du réseau de pores utilisé, les débits calculés dans les canaux supposent déjà l'établissement du régime de Poiseuille. Il faut donc que la largeur des canaux soit suffisamment petite devant leur longueur pour que la diffusion transversale ait le temps d'agir.

8.1.2 Codage vectoriel du déplacement des marcheurs

Le déplacement des marcheurs est implémenté de façon vectorielle (équation 8.4). C'est à dire que la nouvelle position M d'un marcheur dans le canal connectant les nœuds A et B (Figure 8.2) est décrite par l'équation 8.4 :

$$\overrightarrow{AM} = \frac{\|\overrightarrow{AM}\|}{\|\overrightarrow{AB}\|} \overrightarrow{AB} \quad (8.4)$$

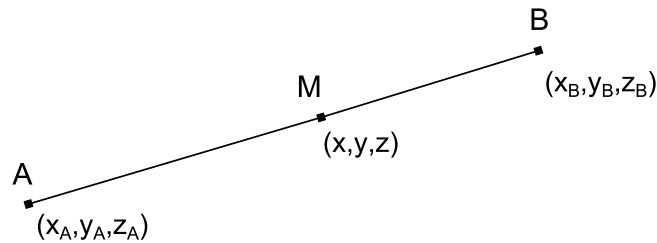


FIGURE 8.2 – Nouvelle position $M(x, y, z)$ d'un marcheur dans le canal connectant les nœuds $A(x_A, y_A, z_A)$ et $B(x_B, y_B, z_B)$ est décrite par l'équation vectorielle 8.4.

Ce type de formulation prend intrinsèquement en compte les différentes configurations spatiales des canaux, comme un canal ayant une coordonnée fixe (x , y ou z).

8.1.3 Mouvement advectif

En supposant que le régime de Taylor soit établi dans les canaux, les marcheurs se déplacent à une vitesse moyenne v_{moy} d'un nœud m à un nœud M (c'est à dire de centre de pore à centre de pore). Ce paragraphe décrit le calcul permettant d'obtenir cette vitesse moyenne. Dans le cas de la dispersion de marcheurs passifs, il a été montré que la dispersion dans les pores n'influence que faiblement la dispersion macroscopique (Park *et al.*, 2001b, Bruderer et Bernabe, 2001). On considère donc les pores comme ayant un volume négligeable. Les marcheurs se déplacent du centre du pore m (le nœud m) au centre du pore M dans le canal k , et ne changent de canal que lorsqu'ils arrivent au centre du pore M (Figure 8.3).

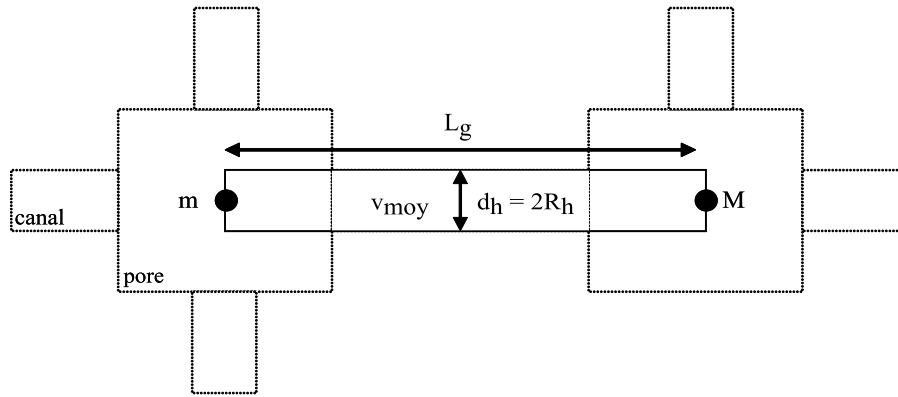


FIGURE 8.3 – Schéma équivalent à la structure du PNM servant à la marche aléatoire. La structure utilisée par la marche aléatoire est constituée de nœuds sans volumes et de canaux les reliant de manière géométrique.

La pression dans les nœuds étant considérée constante pour le calcul des vitesses d'écoulement, la vitesse du fluide dans le canal identifié par le numéro k est calculée sur la longueur hydraulique L_h inférieure à la longueur géométrique L_g (internodale) (Figure 8.4, cf. Annexe F). Or, le déplacement des marcheurs se fait de nœud à nœud en considérant une vitesse moyenne constante le long de la longueur géométrique. Si la vitesse considérée est la vitesse moyenne calculée sur la longueur hydraulique, la vitesse de déplacement des marcheurs est fortement surestimée. De fait elle ne prend pas en compte la vitesse plus faible du fluide dans les pores.

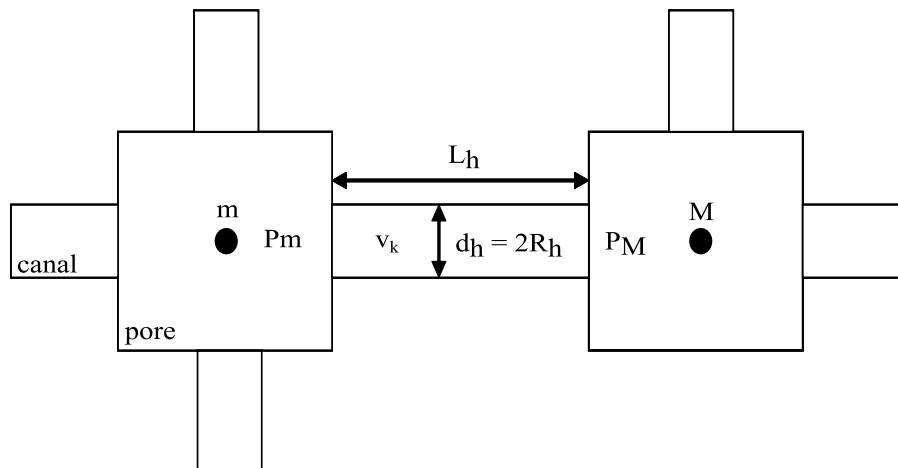


FIGURE 8.4 – Structure du PNM. Les débits sont calculés uniquement dans les canaux, la pression dans les pores est considérée constante.

Il est nécessaire de prendre en compte la vitesse du fluide dans les pores pour simuler de manière convenable le déplacement des marcheurs et pouvoir comparer ces simulations aux expériences. Un modèle équivalent a donc été mis en place (Figure 8.5) : le marcheur se déplace du nœud m au début du canal k à la vitesse du fluide dans le pore m (v_m), puis il se déplace sur la longueur hydraulique L_h à la vitesse du fluide dans le canal (v_k), et enfin du canal k au nœud M à la vitesse (v_M).

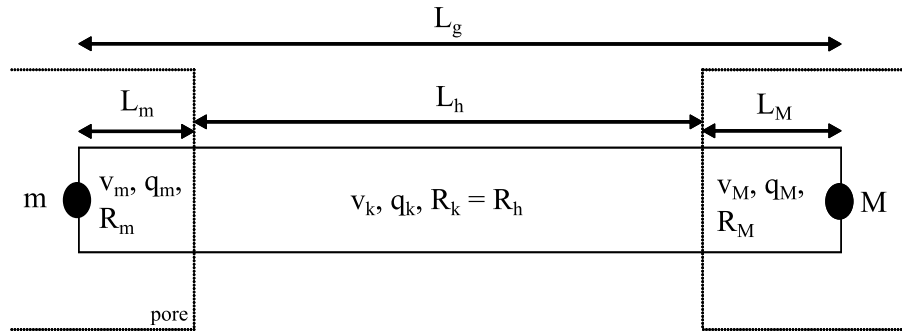


FIGURE 8.5 – Adaptation de la vitesse du fluide dans les canaux. Il est nécessaire de tenir compte de la vitesse du fluide dans les pores. Il faut donc calculer cette vitesse et l'adapter à la nouvelle structure du réseau sans volume dans les pores.

Les vitesses v_m et v_M peuvent être calculée à partir de v_k en considérant que le débit du canal k se conserve entre m et M . On a alors l'équation de conservation des débits suivante :

$$q_m = q_k = q_M \quad (8.5)$$

Soit,

$$v_m S_m = v_k S_k = v_M S_M \quad (8.6)$$

où, S_m est la section de l'élément m .

La vitesse dans le pore i peut donc s'exprimer en fonction de la vitesse dans le canal k :

$$v_i = v_k \frac{S_k}{S_i} \quad (8.7)$$

Soit,

$$v_i = v_k \frac{R_k^2}{R_i^2} = \frac{v_k}{A_{R_i}^2} \quad (8.8)$$

avec $A_{R_i} = \frac{R_i}{R_k}$, et R_i le rayon de l'élément i .

La vitesse moyenne équivalente dans le canal (v_{moy}) peut être exprimée comme une moyenne pondérée des vitesses du fluide sur les longueurs L_h , L_M et L_m :

$$v_{moy} = \frac{L_h v_k + L_M v_m + L_m v_M}{L_g} \quad (8.9)$$

Soit, en remplaçant v_m et v_M par leurs expressions (équation 8.8) :

$$v_{moy} = \frac{v_k}{L_g} \left(L_h + \frac{L_M}{A_{R_m}^2} + \frac{L_m}{A_{R_M}^2} \right) \quad (8.10)$$

Les longueurs L_m et L_M sont inconnues mais on dispose des rayons des sphères équivalentes décrivant les pores R_i . Comme on souhaite conserver le rapport d'aspect des pores R_m/R_M :

$$\frac{L_M}{R_m} = \frac{L_M}{R_M} \quad (8.11)$$

Or,

$$L_M + L_M = L_g - L_h \quad (8.12)$$

D'où

$$L_M = \frac{L_g - L_h}{1 + \frac{R_M}{R_m}} \quad (8.13)$$

$$L_M = \frac{L_g - L_h}{1 + \frac{R_m}{R_M}} \quad (8.14)$$

La vitesse moyenne équivalente v_{moy} est ensuite calculée pour chaque canal. Les marcheurs se déplacent par advection du nœud m au nœud M à cette vitesse.

8.1.4 Mouvement diffusif

Le mouvement diffusif des marcheurs est un saut de longueur L_{Diff} tiré aléatoirement dans une distribution Gaussienne centrée réduite d'écart-type $\sqrt{2D_{eff} dt}$ où D_{eff} est le coefficient de diffusion effectif de la phase considérée et dt le pas de temps (cf. paragraphe G).

Le régime de Taylor étant supposé établi dans les canaux, la diffusion est effective et l'expression de D_{eff} est (Taylor, 1954) :

$$D_{eff} = D_m \left(1 + \frac{P_{ed}^2}{192}\right) \quad (8.15)$$

où D_m est le coefficient de diffusion moléculaire et P_{ed} est le nombre adimensionnel de Peclet basé sur le diamètre d du cercle inscrit au canal triangulaire, et définit par :

$$P_{ed} = \frac{v_{moy}d}{D_m} \quad (8.16)$$

où v_{moy} est la vitesse moyenne dans le canal considéré.

Les déplacements dans le canal ayant été décrits, des règles sont nécessaires pour déterminer le choix du canal dans lequel un marcheur entre en sortant d'un nœud du réseau.

8.1.5 Répartition au passage des nœuds

Les écoulements expérimentaux qui seront comparés aux simulations de marche aléatoire, seront des écoulements à faible nombre de Peclet global (entre 1 et 2). La répartition des marcheurs lors du passage des nœuds se base donc sur l'hypothèse d'un brassage total dans les pores. Les canaux d'entrée et de sortie des marcheurs pour un nœud sont considérés indépendants (le canal de sortie choisi

pour un marcheur est indépendant du canal par lequel il est entré dans le nœud). Le mélange total dans les pores suppose que le nombre de Peclet dans les pores est faible ($Pe \ll 1$) (Mourzenko *et al.*, 2002), ce qui correspond à une diffusion moléculaire importante qui homogénéise la concentration en marcheur dans le pore (Park et Lee, 1999, Park *et al.*, 2001a, Bruderer et Bernabe, 2001). Au vu du nombre de Peclet global des écoulements considérés, on peut raisonnablement penser que cette hypothèse sera vérifiée pour une importante majorité de pores.

Les marcheurs peuvent passer un nœud de deux façons différentes : lors d'un saut advectif ou lors d'un saut diffusif. Le choix du canal de sortie se fait différemment dans les deux cas et se base sur les travaux de Rhodes et Blunt (2006) et de Bijeljic *et al.* (2004).

Si le marcheur passe un nœud lors d'un saut advectif, le canal suivant est choisi parmi les canaux efférents au nœud. Le choix du canal suivant est effectué de manière aléatoire et la répartition suit une loi uniforme pondérée par les débits dans les canaux. Ainsi, la probabilité que le marcheur aille dans un canal à fort débit est plus importante que la probabilité qu'il aille dans un canal à faible débit. Une fois le canal choisi, le marcheur effectue un saut dont la durée correspond à la durée restante du saut avant l'arrivée au nœud et se déplace à la vitesse du fluide du nouveau canal.

Si le marcheur passe un nœud lors d'un saut diffusif, le canal suivant est choisi parmi tous les canaux connectés au nœud, à l'exception du canal d'arrivée. La répartition des marcheurs dans les canaux liés au nœud se fait suivant une loi uniforme pondérée par la surface des canaux. La longueur du saut diffusif restant à effectuer par le marcheur dans le nouveau canal, correspond à la longueur restante du saut lors de l'arrivée au nœud.

8.2 Recirculation des marcheurs dans le réseau

La taille du réseau de pores est limitée par l'imagerie micro-scanner. Or, pour étudier la dispersion à des temps relativement grands avec une approche Lagrangienne sans perdre de marcheurs (sortie du réseau), il est nécessaire de considérer un réseau semi-infini. La recirculation des marcheurs dans le réseau est donc essentielle pour étudier le comportement des marcheurs sur de grandes durées (distances) malgré la taille restreinte du réseau extrait. Cette recirculation a pour hypothèse que le réseau utilisé (non connecté) est un volume élémentaire représentatif du milieu poreux réel, ce qui est le cas pour un milieu poreux homogène à l'échelle du réseau de pores.

L'algorithme d'extraction du réseau de pores connecte les faces latérales du réseau de pores, mais la face d'entrée n'est pas connectée à la face de sortie (cf. Annexe F). Un algorithme de Delaunay en trois dimensions permet de connecter ces deux surfaces, afin d'effectuer la marche aléatoire dans un réseau totalement périodique. Contrairement à la connexion transverse qui respecte la topologie du réseau, dans le cas de la connexion longitudinale du réseau, la triangulation de Delaunay n'est pas suivie d'une suppression aléatoire de connexions. Les marcheurs passent instantanément d'un nœud de sortie à un nœud d'entrée du réseau.

Le choix de la connexion, donc du nœud où l'on réinjecte le marcheur, se fait de manière aléatoire selon une loi uniforme. Le marcheur a une équiprobabilité d'aller dans un des nœuds d'entrée

connectés au nœud où il est sorti du réseau. Un compteur de recirculation permet de connaître le nombre de recirculations pour chaque marcheur ($Nb_{recirculation}$) ; et, en post-traitement, de recalculer la vraie position x_{reel} des marcheurs à l'aide de la longueur moyenne longitudinale du réseau : L_{reseau} .

$$x_{reel} = x + Nb_{recirculation} L_{reseau} \quad (8.17)$$

8.3 Calculs des propagateurs de déplacement

L'algorithme de marche aléatoire donne la position des marcheurs dans le réseau à chaque pas de temps, ainsi que le nombre de recirculations entre l'entrée et la sortie que ces mêmes marcheurs ont subi. Un programme annexe permet d'exploiter ces informations et de calculer le propageur de déplacement lié au déplacement des marcheurs entre les instants t_1 et t_2 , soit durant le temps d'observation $t_\Delta = t_2 - t_1$.

Le programme calcule tout d'abord, pour tous les marcheurs, la distance longitudinale $\Delta X(t_2 - t_1)$ parcourue entre deux instants t_1 et t_2 fixés manuellement (équation 8.18). Les déplacements utilisés sont les projections du déplacement tri-directionnel selon une direction (classiquement la direction longitudinale définie par la face d'entrée et la face de sortie, L_{reseau} est la longueur longitudinale du réseau de pores).

Le déplacement selon l'axe x d'un marcheur entre t_1 et t_2 est donné par :

$$\Delta X(t_\Delta) = (pos_x[t_2] + L_{reseau} Nb_{recirculation}[t_2]) - (pos_x[t_1] + L_{reseau} Nb_{recirculation}[t_1]) \quad (8.18)$$

où $pos_x[t]$ est la position en x du marcheur au temps t , $Nb_{recirculation}[t]$ est le nombre de recirculation du marcheur dans le réseau au temps t .

Le programme définit ensuite la taille d'une classe dh , en fonction des déplacements minimal ΔX_{min} et maximal ΔX_{max} durant t_Δ et du nombre de classe souhaité h (équation 8.19). La gamme des déplacements allant de ΔX_{min} à ΔX_{max} est découpée en h classes uniformes. On obtient donc :

$$dh = \frac{\Delta X_{max} - \Delta X_{min}}{h} \quad (8.19)$$

L'histogramme des déplacements est finalement réalisé en répartissant les marcheurs dans les différentes classes en fonction de leur déplacement $\Delta X(t_\Delta)$. Cet histogramme est comparable au propageur des déplacements.

8.4 Conclusion

L'algorithme de simulation de marche aléatoire dans un réseau de pores se base sur le suivi individuel de chaque marcheur, lui-même effectuant une succession de déplacements se composant d'un

saut advectif et d'un saut diffusif consécutif. Le premier est directement lié à la vitesse locale du fluide, tandis que le second dépend du coefficient de diffusion effectif local.

Le volume des pores est pris en compte dans le calcul de la vitesse. Les marcheurs se déplacent de centre de pore en centre de pore (c-a-d de nœud en nœud du réseau). Un mélange total des marcheurs dans les pores est supposé, le choix du canal de sortie du pore est donc indépendant du canal d'entrée. La répartition du marcheur dans le canal de sortie se fait différemment suivant si le marcheur est entré dans le pore lors d'un saut advectif ou d'un saut diffusif.

La périodicité du réseau selon l'axe longitudinal est assurée par des connections obtenues par triangulation de Delaunay.

Les différents nombres aléatoires intervenant lors des répartitions aux nœuds et des sauts diffusifs sont obtenus à l'aide d'un générateur de nombres pseudo-aléatoires TGSFR ("Twisted Generalised Shift Feedback Register") décrit par Matsumoto et Nishimura (1998), les détails en sont présentés en annexe G.

Les propagateurs sont calculés après la fin de la marche aléatoire par un programme indépendant.

Chapitre 9

Vérification de l'algorithme

Sommaire

9.1 Déplacement des marcheurs dans différentes configurations	171
9.2 Répartitions lors du passage d'un pore	173
9.2.1 Vérification de la répartition au pore lors d'un saut advectif	173
9.2.2 Vérification de la répartition au pore lors d'un saut diffusif	173
9.3 Dispersion dans des réseaux stochastiques	174
9.3.1 Réseau carré stochastique 0° :	174
9.3.2 Réseau carré stochastique 45° :	177
9.4 Conclusion	179

L'algorithme décrit au chapitre précédent nécessite d'être validé par différents des tests. Ces tests ont été mis en œuvre sur différents réseaux artificiels simples, de façon à étudier séparément le déplacement des marcheurs dans différentes configurations et les types de répartition des marcheurs lors du passage d'un pore. Ils permettent de plus d'étudier la dispersion dans des réseaux stochastiques cubiques d'orientation 0° et 45° , les recirculations transverses et longitudinales, et l'effet des zones stagnantes.

Les résultats des validations sont présentées dans ce chapitre. Le déplacement des marcheurs dans différentes configurations a été vérifié en premier, puis le respect des lois de répartition des marcheurs aux nœuds, et enfin le bon passage des nœuds dans différentes conditions de connectivité et la dispersion dans des réseaux stochastiques $2D$ de taille moyenne.

9.1 Déplacement des marcheurs dans différentes configurations

Les réseaux présentés en Figure 9.1 ont permis de vérifier le déplacement des marcheurs dans le réseau, en plusieurs étapes et de manière visuelle, en suivant le trajet de chaque marcheur.

Nous avons aussi vérifié sur ces réseaux, la possibilité pour un marcheur de passer plusieurs pores durant un seul pas de temps.

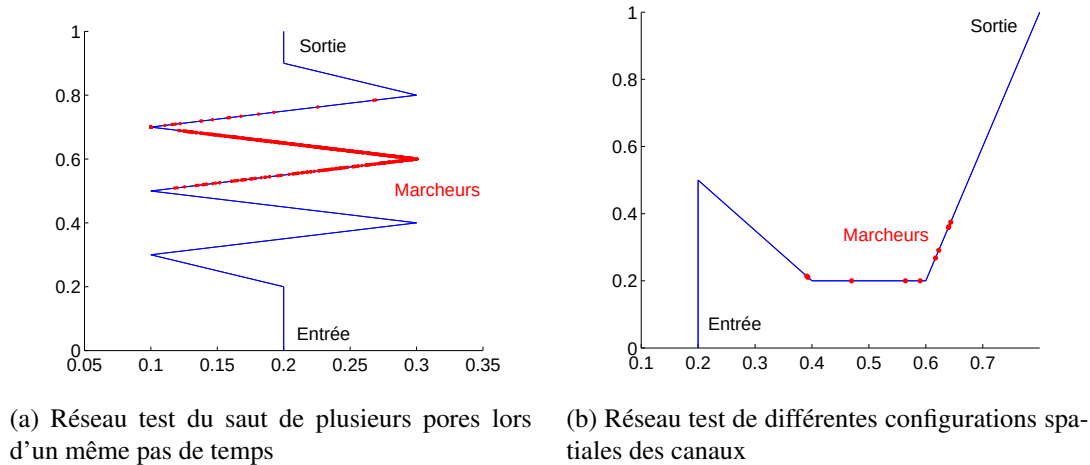


FIGURE 9.1 – Réseaux 2D de validation des déplacements des marcheurs : Ces deux réseaux ont servi à vérifier le bon déplacement des marcheurs dans des canaux possédant différentes configurations spatiales, ainsi que le passage d'un marcheur par plusieurs pores durant un même pas de temps.

La vérification de la marche aléatoire a en sus été effectuée sur un réseau de pores simple bidimensionnel composé de onze pores (Figure 9.2). Ceci a permis de vérifier la simulation numérique dans un cas plus complexe que les réseaux test présentés précédemment. Ce réseau permet notamment de tester différents nombres et différents types de connection aux pores.

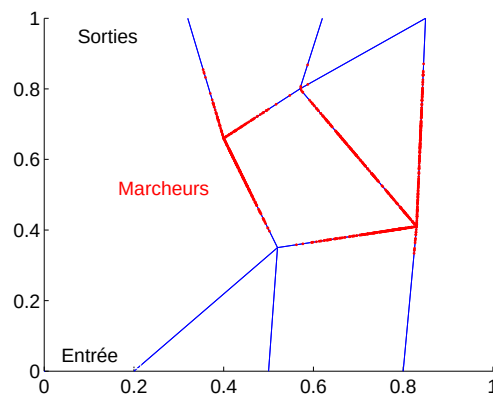


FIGURE 9.2 – Réseau 2D à 11 pores, trois pores inférieur d'entrée et trois pores supérieurs de sortie. Ce réseau a été utilisé comme réseau test pour le développement de l'algorithme de marche aléatoire.

L'algorithme a aussi été vérifié visuellement sur un réseau simple tridimensionnel de quelques pores. Les vérifications ont été effectuées de manière visuelle. Les marcheurs restent bien dans les canaux et les nœuds et ne se déplacent pas en dehors du réseau.

Le passage d'un pore se fait selon des règles simples présentées dans le chapitre précédent, le bon respect de ces règles doit aussi être vérifié.

9.2 Répartitions lors du passage d'un pore

Le réseau présenté Figure 9.3 permet de tester efficacement les types de répartition des marcheurs lors du passage des pores.

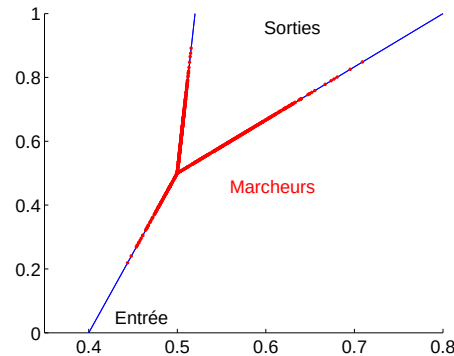


FIGURE 9.3 – Réseau de test des modes de répartition des marcheurs lors du passage des pores par saut advectif, ou saut diffusif. Les marcheurs sont injectés au niveau du pore inférieur et comptés aux pores supérieurs.

9.2.1 Vérification de la répartition au pore lors d'un saut advectif

Le passage du pore lors d'un saut advectif se fait suivant une loi uniforme pondérée par le débit dans les canaux efférents (cf. paragraphe 8.1.5). Pour tester cette répartition, les marcheurs sont lâchés à l'entrée du réseau (Figure 9.3) et le mouvement diffusif n'est pas considéré. Dans le cas où le débit est identique dans tous les canaux, le nombre de marcheurs aux pores de sortie est de l'ordre de $1/2 - 1/2$. Si les débits ont un rapport $1/3 - 2/3$, le nombre de marcheurs aux pores de sortie est de l'ordre de $1/3 - 2/3$. Le mode de répartition des marcheurs lors du passage d'un pore lors d'un saut advectif est vérifié.

9.2.2 Vérification de la répartition au pore lors d'un saut diffusif

Le passage du pore lors d'un saut diffusif se fait suivant une loi uniforme pondérée par la surface des canaux. Les marcheurs sont toujours lâchés à l'entrée du réseau ; les canaux possèdent tous le même débit, ce qui donne une répartition $1/2 - 1/2$ si le marcheur passe le pore par un saut advectif. Dans le cas où la surface de tous les canaux est identique, le nombre de marcheurs aux pores de sortie est de l'ordre de $1/2 - 1/2$. Si les surfaces ont un rapport $1/3 - 2/3$, le nombre de marcheurs aux pores de sortie est de l'ordre de $1/3 - 2/3$. Le mode de répartition des marcheurs lors du passage d'un pore lors d'un saut diffusif est vérifié.

Il a aussi été vérifié sur un autre réseau (Figure 9.2), la possibilité pour un marcheur de tomber dans un canal afférent au pore lors du passage de ce pore par saut diffusif (c-a-d d'aller à "contre-courant" par diffusion). L'étude du déplacement des marcheurs à chaque pas de temps a montré qu'il

existait une probabilité non-nulle pour qu'un marcheur passant un pore par saut diffusif puisse se déplacer dans un canal afférent au pore et donc à "contre-courant" du flux.

Le tirage aléatoire des sauts gaussiens par le générateur de nombres pseudo-aléatoires (décrit Annexe G) a été vérifié de manière indépendante. Le coefficient de dispersion effective calculé à partir du moment d'ordre 2 ($\sigma^2 = \langle (x - \langle x \rangle)^2 \rangle$) de la distribution des sauts gaussiens obtenue par tirage de 10000 valeurs par le générateur de nombres pseudo-aléatoires, est égal au coefficient de diffusion moléculaire utilisé pour le tirage aléatoire des sauts. Ceci valide le tirage des sauts gaussiens.

9.3 Dispersion dans des réseaux stochastiques

Des vérifications complémentaires sont réalisées dans des réseaux stochastiques carrés 0° et 45° . Ces vérifications ont pour but de valider la dispersion des marcheurs dans un réseau de pores simplifié engendrant une dispersion simple, ainsi que de vérifier l'effet de zones stagnantes sur la dispersion des marcheurs.

9.3.1 Réseau carré stochastique 0° :

Le réseau stochastique carré utilisé est constitué de 2500 pores et de 10000 canaux. La face d'injection est constituée de 50 pores reliés chacun à un seul pore de la face de sortie (constituée elle aussi de 50 pores). Le réseau a une orientation de 0° , c'est à dire qu'il est constitué pour moitié de canaux perpendiculaires au flux et pour moitié de canaux colinéaires au flux (Figure 9.4).

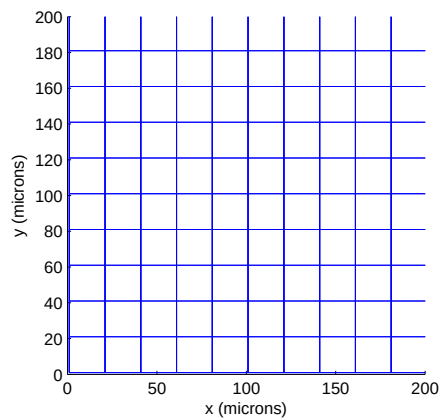


FIGURE 9.4 – Structure du réseau carré stochastique 0° (flux horizontal).

Le réseau est périodique dans toutes les directions. Les caractéristiques des pores et des canaux sont fixes : la longueur internodale (L_g) vaut $20 \mu m$, le diamètre des pores est de $12 \mu m$, le diamètre des canaux est de $6 \mu m$, la longueur des canaux (L_h) est de $8 \mu m$. La vitesse interstitielle, ou vitesse de Darcy, v_0 est fixée à $205.06 \mu m/s$, le nombre de Peclet dans les canaux longitudinaux est d'environ 3.1.

Le flux est nul dans les canaux transverses, la vitesse dans les canaux colinéaires au flux est constante (et égale à deux fois la vitesse interstitielle $v_{moy} = 410.12 \mu m/s$) puisque tous les canaux ont les mêmes dimensions. L'écoulement dans un tel réseau s'effectue uniquement dans les canaux parallèles au flux. Ce type de réseau permet de vérifier l'effet des zones stagnantes sur la dispersion des marcheurs.

Les simulations de marche aléatoire ont été réalisées avec 50000 marcheurs. La Figure 9.5a, résultat d'une marche aléatoire sans sauts diffusifs, montre que les marcheurs se répartissent en deux catégories non connectées : les marcheurs présents dans les canaux transverses qui ne se déplacent pas et les marcheurs dans les canaux longitudinaux qui se déplacent à la vitesse maximale ($v_{moy} = 410.12 \mu m/s$). La vitesse moyenne calculée à partir du propagateur est cohérente avec la vitesse interstitielle du fluide dans le réseau, à l'erreur près liée à la répartition initiale aléatoire des marcheurs dans le réseau.

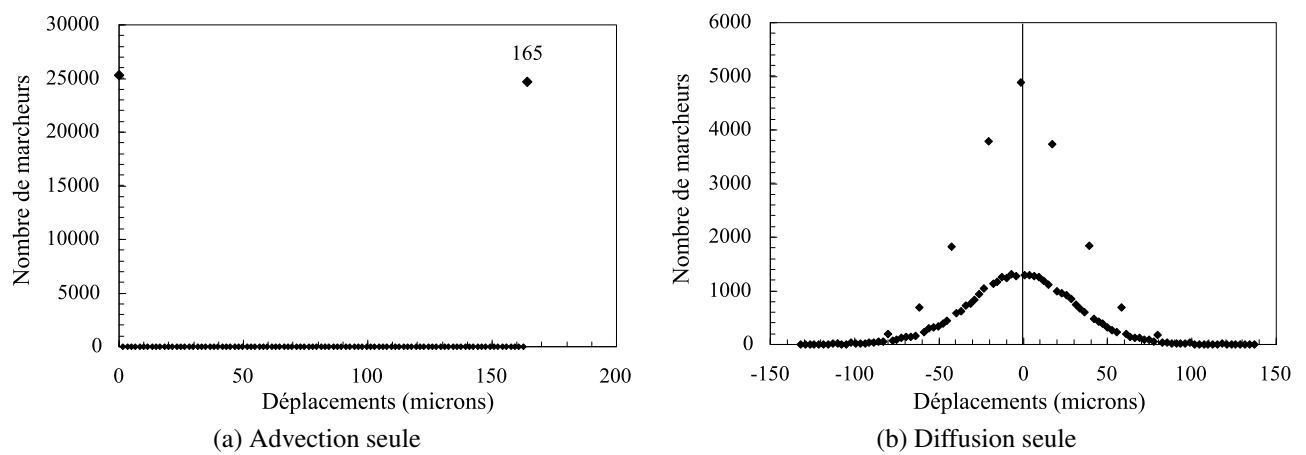


FIGURE 9.5 – Propagateurs numériques pour des simulations respectivement sans diffusion (9.5a) et sans advection (9.5b) et un temps d'observation de 400 ms.

Les propagateurs numériques de marche aléatoire sans sauts advectifs (Figure 9.5b) sont de forme gaussienne et centrés sur le déplacement nul, ce qui est un trait caractéristique du mouvement diffusif pur. Ils présentent une série de pics décrivant une seconde gaussienne. Ces pics correspondent à des déplacements longitudinaux dont les amplitudes sont des multiples de la longueur des canaux du réseau L_g . Ils sont liés à la structure du réseau de pores, les marcheurs constituant ces pics sont des marcheurs étant initialement dans un canal transverse (donc à déplacement longitudinal nul) et qui, après en être sortis, se retrouvent dans d'autres canaux transverses. Leurs déplacements longitudinaux sont donc des multiples de la longueur des canaux longitudinaux.

On retrouve ce comportement Gaussien et les pics superposés pour une marche aléatoire comportant des sauts diffusifs et advectifs (Figure 9.6). L'évolution des propagateurs en fonction du temps d'observation (Figures 9.6a, 9.6b et 9.6c) montre clairement la corrélation entre les déplacements d'un canal transverse à un autre et les pics superposés à une gaussienne centrée sur le déplacement moyen.

La diffusion moléculaire permet aux marcheurs d'échantillonner toutes les vitesses du réseau.

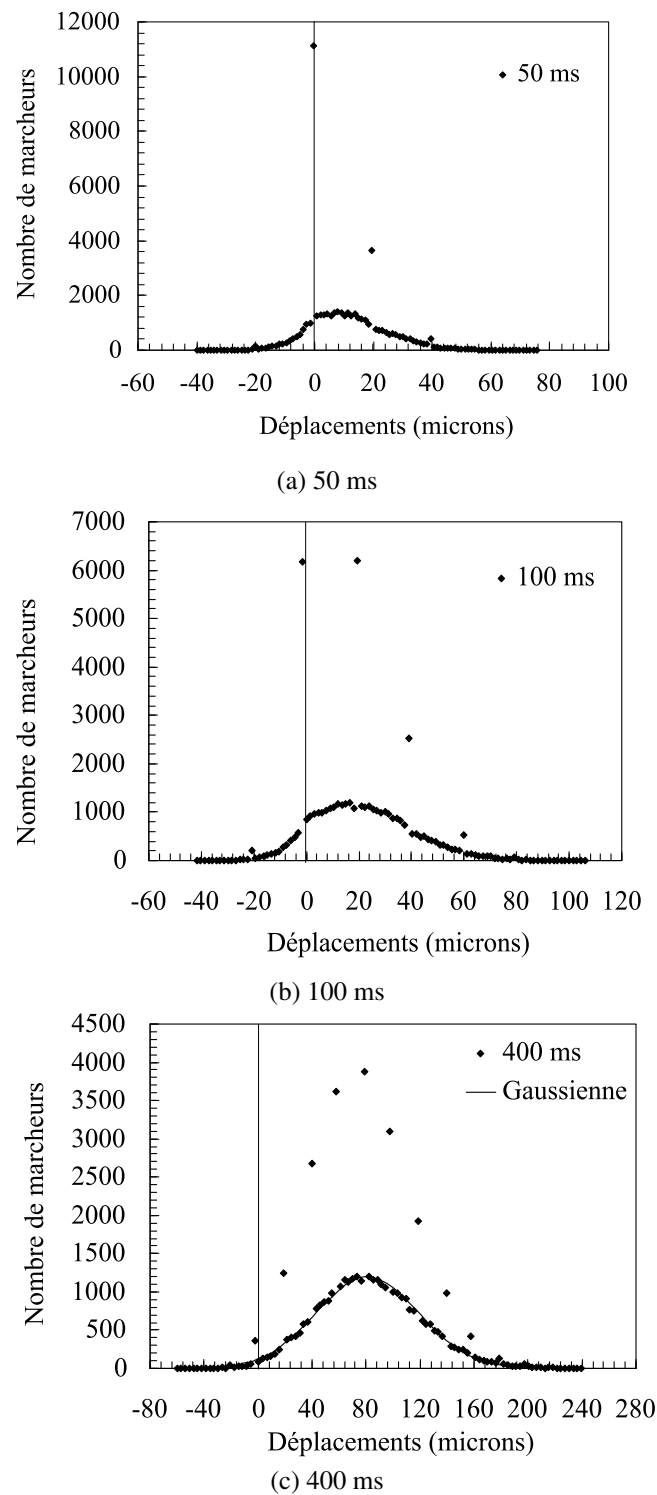


FIGURE 9.6 – Propagateurs numériques pour des simulations avec diffusion et advection en fonction du temps d'observation. Le propagateur est Gaussien mais présente des pics aux déplacements multiples de la longueur des canaux. Ces pics correspondent à des marcheurs se déplaçant d'un canal transverse à un autre, le déplacement longitudinal alors subi est égal à un multiple de la longueur d'un canal.

Grâce aux sauts diffusifs, les marcheurs peuvent sortir des zones stagnantes mais aussi y entrer. Il n'a pas été mis en évidence de phénomènes de concentration des marcheurs dans les canaux stagnants ou les canaux circulants. Les flux entre ces deux espaces se compensent. La vitesse instantanée du nuage de marcheurs est stable au cours du temps, et est égale à la vitesse interstitielle de fluide.

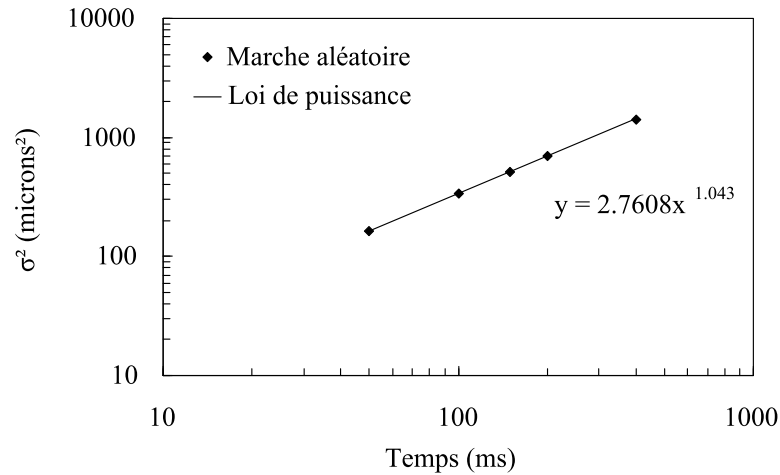


FIGURE 9.7 – Évolution du moment d'ordre 2 (σ^2) en fonction du temps. La relation de type $\sigma^2 \propto t_{\Delta}^1$ est caractéristique d'une dispersion Gaussienne.

L'évolution du moment d'ordre 2 représentée Figure 9.7 ($\sigma^2 = \langle (x - \langle x \rangle)^2 \rangle$, où x est la position longitudinale d'un marcheur et $\langle x \rangle$ la position moyenne des marcheurs) en fonction du temps présente une relation de type $\sigma^2 \propto t_{\Delta}^1$, caractéristique d'une dispersion Gaussienne.

Lorsque $\sigma^2 \propto t_{\Delta}^1$, $\sigma^2 = 2D_{eff}t_{\Delta}$, où D_{eff} est le coefficient de dispersion effective. Ici, $D_{eff} = 1380.4 \mu m^2/s$, à comparer à la valeur du coefficient de diffusion moléculaire $D_m = 2600 \mu m^2/s$ (donnée d'entrée de la simulation). La dispersion à l'échelle du réseau est ralentie par l'effet des canaux transverses à l'écoulement et la valeur de D_{eff} obtenue est à-peu-près égale à la moitié de D_m . Cette dispersion diminuée est vérifiée dans le cas d'un mouvement purement diffusif, le coefficient de dispersion effectif calculé est de $1236.7 \mu m^2/s$, soit aussi équivalent à la moitié du coefficient de diffusion moléculaire D_m . Le facteur 2 observé s'explique par le fait que les marcheurs sont équirépartis dans les zones stagnantes et les zones à vitesse constante non nulle.

9.3.2 Réseau carré stochastique 45° :

Ce réseau stochastique carré est constitué de 5000 pores et de 20000 canaux. La face d'injection est constituée de 100 pores reliés chacun à un seul pore de la face de sortie (constituée elle aussi de 100 pores). Le réseau a une orientation de 45°, c'est à dire qu'il est constitué de canaux faisant un angle de 45° par rapport à l'axe du flux (Figure 9.8). Ce réseau ne présente pas de zones stagnantes.

Le réseau est périodique dans toutes les directions. Les caractéristiques des pores et des canaux sont fixes : la longueur internodale (L_g) vaut $20\sqrt{2} \mu m$, le diamètre des pores est de $12 \mu m$, le

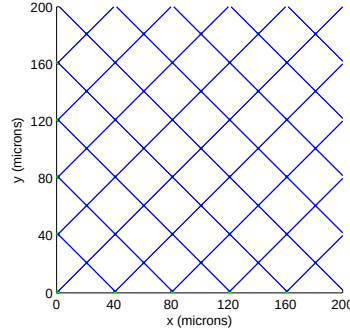


FIGURE 9.8 – Structure du réseau carré stochastique 45° (flux horizontal).

diamètre des canaux est de $6 \mu m$, la longueur hydraulique des canaux (L_h) est de $8 \mu m$. La vitesse interstitielle v_0 est fixée à $122.12 \mu m/s$, le nombre de Peclet est de 1.32. Le coefficient de diffusion moléculaire est toujours de $2600 \mu m^2/s$.

Dans le cas où l'on considère uniquement l'advection des marcheurs par le champ de vitesse, les vitesses dans les canaux étant identiques, les marcheurs se déplacent tous à la vitesse interstitielle, le propagateur est un pic (contenant tous les marcheurs) au déplacement lié à la vitesse interstitielle v_0 .

Lors de marches aléatoires purement diffusives (Figure 9.9), le propagateur est gaussien centré. La forme du propagateur est cohérente avec la dispersion attendue dans ce réseau de pore.

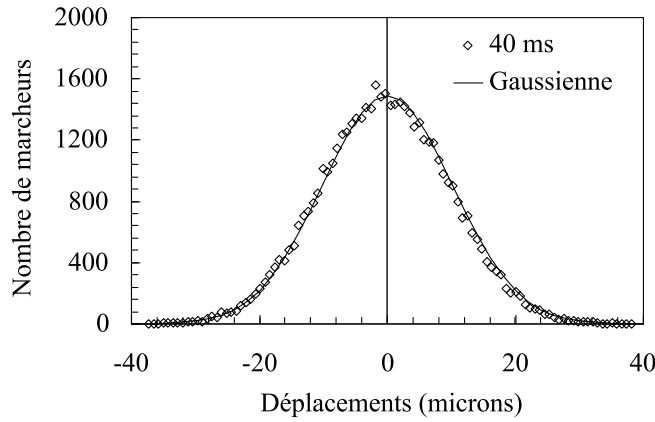


FIGURE 9.9 – Propagateurs numériques pour des simulations sans advection. Les propagateurs obtenus sont de type gaussien centré, l'évolution du moment d'ordre deux en fonction du temps est linéaire et le coefficient de dispersion effective est de $1266.4 \mu m^2/s$.

Le moment d'ordre deux σ^2 du propagateur est lié au coefficient de dispersion effective par la relation $\sigma^2 = 2D_{eff}t_{\Delta}$. Le coefficient de dispersion effective D_{eff} doit-être, dans le cas d'un déplacement purement gaussien, égal au coefficient de diffusion moléculaire de $2600 \mu m^2/s$. Or, le coefficient de dispersion effective calculé à partir du moment d'ordre deux est d'environ $1266.4 \mu m^2/s$. Soit environ 2.06 fois plus petit que le coefficient de diffusion moléculaire. Cette différence s'explique par le fait que le coefficient de dispersion longitudinal effective est calculé à partir des déplacements projetés sur l'axe longitudinal, tandis que les déplacements liés à la diffusion moléculaire se font le long de l'axe

des canaux, soit une inclinaison de 45° par rapport à l'axe longitudinal. La longueur de ces déplacements, projeté sur cet axe, est réduite d'un facteur $\sqrt{2}$. l'écart-type des déplacements σ est donc aussi réduit d'un facteur $\sqrt{2}$, donc, σ^2 est donc aussi réduit d'un facteur 2.

Si l'on considère l'ensemble des déplacements advectifs et diffusifs, le propagateur obtenu par marche aléatoire (Figure 9.10) est une gaussienne centrée sur le déplacement moyen lié à la vitesse interstitielle et d'écart-type $\sigma^2 = \sqrt{2D_{eff}t_\Delta}$. Ici aussi, la forme du propagateur est cohérente avec la dispersion attendue dans ce réseau de pore.

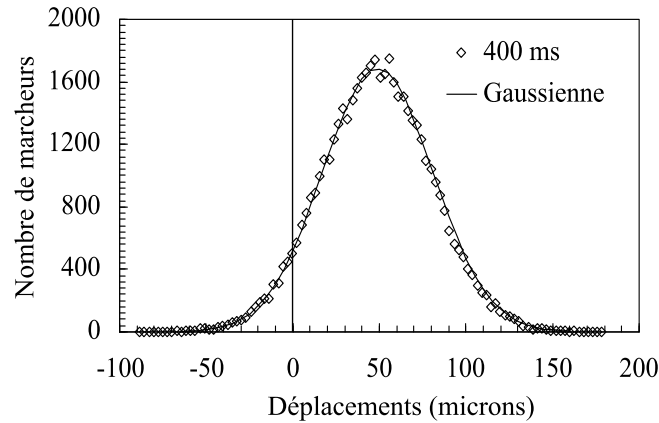


FIGURE 9.10 – Propagateurs numériques pour des simulations avec advection et diffusion. Les propagateurs obtenus sont de type gaussien et centrés sur le déplacement moyen lié à la vitesse interstitielle. L'évolution du moment d'ordre deux en fonction du temps est linéaire (typique d'une dispersion gaussienne) et le coefficient de dispersion effective est de $1261.7 \mu m^2/s$.

Le coefficient de dispersion effective D_{eff} calculé à partir du moment d'ordre deux est de $1261.7 \mu m^2/s$. Le coefficient de dispersion effective est équivalent à celui calculé lors de marche aléatoire purement diffusive. Le réseau utilisé n'engendre pas de dispersion mécanique, les mouvements advectifs étant identiques dans tous les canaux. L'erreur sur le coefficient de dispersion effective (entre les deux simulations avec et sans advection) est d'environ 3%.

L'évolution de σ^2 en fonction du temps est présentée Figure 9.11. Elle vérifie une relation de type $\sigma^2 \propto t_\Delta^1$ caractéristique d'une dispersion Gaussienne.

9.4 Conclusion

L'algorithme de marche aléatoire a été vérifié par des tests sur des réseaux simples bidimensionnels. La répartition des marcheurs aux pores et leurs bons déplacements dans les canaux ont été validés, de même que la recirculation transverse ou longitudinale et la dispersion dans des réseaux stochastiques. L'algorithme a aussi été vérifié visuellement sur un réseau simple tridimensionnel de quelques pores. Il a aussi été vérifié qu'en inversant l'ordre du saut advectif et diffusif les simulations donnaient les mêmes résultats.

Les réseaux stochastiques ont permis de valider la marche aléatoire du point de vue de la dis-

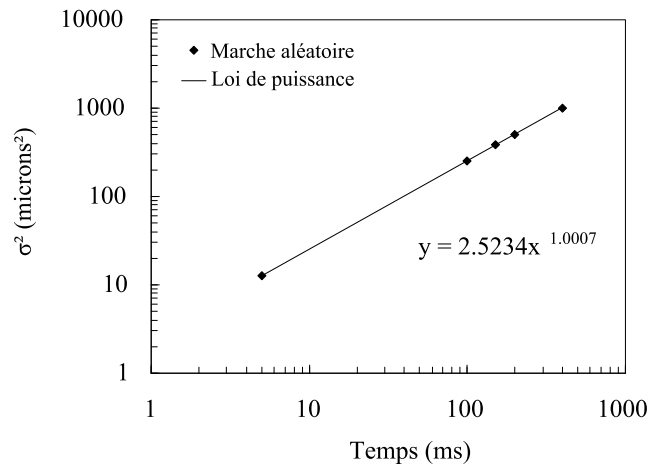


FIGURE 9.11 – Évolution du moment d'ordre 2 σ^2 en fonction du temps. La relation de type $\sigma^2 \propto t_{\Delta}^1$ est caractéristique d'une dispersion Gaussienne. Dans ce cas, $\sigma^2 = 2D_{eff}t_{\Delta}$, où D_{eff} est le coefficient de dispersion effective. $D_{eff} = 1261.7 \mu m^2/s$.

persion et de l'effet des zones stagnantes, la présence de marcheurs ne se déplaçant pas de manière longitudinale est uniquement due à des caractéristiques du réseau de pore.

D'autres tests sur l'algorithme de marche aléatoire ont été effectués pour connaître l'influence des différents paramètres que sont l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoire, le nombre de marcheurs et le choix du pas de temps. Ces tests ont été effectués sur un réseau déterministe (extrait par micro-scanner) d'un empilement de grains de Fontainebleau, empilement similaire à celui étudié par RMN (paragraphe 5.6.2). Ces validations sont présentées, avec les résultats de la marche aléatoire dans ce réseau, au chapitre suivant.

Chapitre 10

Résultats de la marche aléatoire dans un réseau de pores extrait d'un empilement de sable de Fontainebleau

Sommaire

10.1 Description du réseau de pores	182
10.1.1 Caractéristiques du réseau de pores	182
10.1.2 Isotropie et homogénéité du réseau	184
10.2 Répétabilité et influence de l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoires	185
10.3 Paramètres de la marche aléatoire	187
10.3.1 Choix du nombre de marcheurs	187
10.3.2 Choix du pas de temps	187
10.4 Influence de la répartition initiale des marcheurs	189
10.5 Vérification des hypothèses sur les déplacements dans les canaux	190
10.6 Propagateurs et moments caractéristiques en fonction du temps	190
10.7 Évolution des propagateurs de même temps d'observation t_{Δ} en fonction du temps initial t_1	192
10.8 Discussion sur la stagnation anormale des marcheurs	193
10.9 Comparaison des résultats des simulations avec les résultats expérimentaux et perspectives	196
10.10 Conclusion	197

Dans ce chapitre seront présentés et discutés les résultats des simulations de marche aléatoire dans un réseau de pores déterministe extrait de l'empilement de grains de sable de Fontainebleau de 80 μm . L'objectif est de comparer les résultats de la marche aléatoire à ceux issus des expériences de RMN réalisées sur le milieu réel (cf. Chapitre 6 Paragraphe 6.2.1).

Il est tout d'abord décrit le réseau de pore, puis l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoires et son influence sur les simulations, le choix des paramètres de la marche aléatoire (nombre de marcheurs et pas de temps) sont discutés. Enfin, les propagateurs obtenus à partir d'un lâcher uniforme de marcheurs dans le réseau, puis l'analyse de la dispersion des marcheurs dans le réseau sont présentés.

10.1 Description du réseau de pores

Dans cette section sont présentés les caractéristiques intrinsèques, mais aussi l'isotropie et l'homogénéité du réseau de pore.

10.1.1 Caractéristiques du réseau de pores

Les premiers résultats de la simulation de propageur de déplacement par marche aléatoire ont été produits sur un réseau de pores extrait d'un empilement de sable de Fontainebleau. La distribution des tailles de grains de ce sable et les images obtenues par micro-scanner montrent que c'est un sable monomodal composé de grains asymétriques et anguleux d'une taille moyenne de $80\ \mu m$. Le réseau de pores associé est un réseau de taille 450^3 voxels, soit 10185 pores et 25522 canaux pour une taille de $1575^3\ \mu m$ (la taille d'un voxel est de $3.5\ \mu m$). La face d'entrée est constituée de 333 pores et la face de sortie de 320.

La perméabilité du réseau est de 8709 mD (mDarcy) et sa porosité est de 40.7%, ce qui est très proche de la perméabilité et de la porosité de l'empilement de sable réel, qui ont été mesurées expérimentalement (respectivement 5014 mDarcy et 40 %).

Ce réseau de pores étant difficile à visualiser, les images de réseau de pores présentées par la suite correspondent à des images d'une partition de ce réseau de pore. La partition du réseau 450^3 voxels est de taille 250^3 voxels (Figure 10.1). Les caractéristiques et résultats présentés restent ceux du grand réseau.

Les diamètres des pores du réseau sont compris entre $24\ \mu m$ et $174\ \mu m$, avec une moyenne de $60\ \mu m$. La distribution de ces diamètres est présentée Figure 10.2a. En moyenne le nombre de coordination des pores est 5.

La distribution des diamètres hydrauliques est présentée Figure 10.2b. Le diamètre hydraulique moyen des canaux est $24.46\ \mu m$.

La distribution des diamètres des canaux (Figure 10.2b) montre la présence de canaux de diamètre inférieur à la taille d'un voxel de l'image micro-scanner, ce qui est incohérent. Il a été vérifié que l'influence de ces canaux était négligeable en comparant les résultats de marches aléatoires dans le réseau de pores amputé de ces canaux et le réseau de pores initial, les résultats sont identiques à de très faibles variations près.

Les distributions des longueurs hydrauliques et géométriques des canaux sont présentées sur la Figure 10.3. La longueur hydraulique moyenne est $28.35\ \mu m$, la longueur géométrique moyenne est

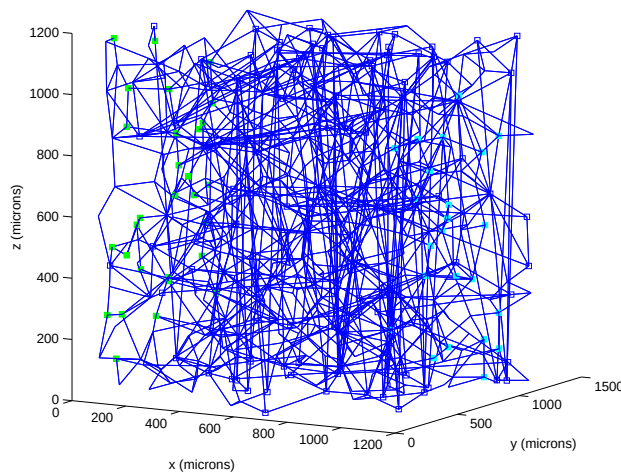
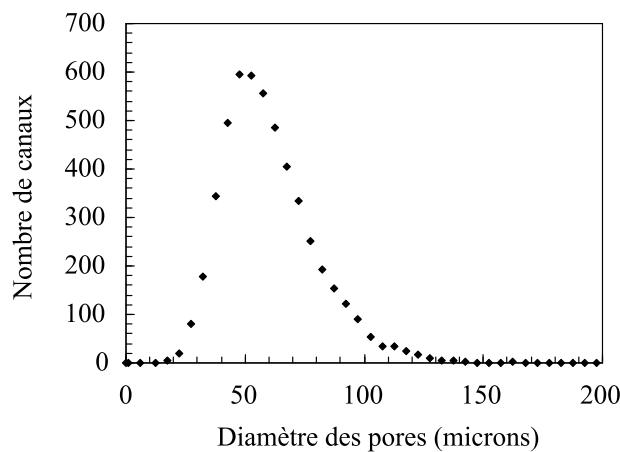
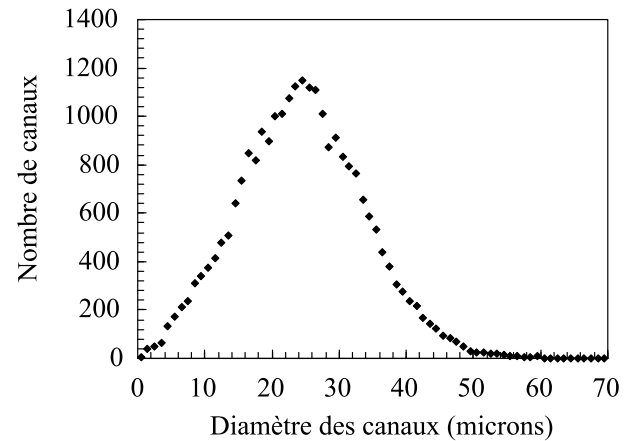


FIGURE 10.1 – réseau de pores d'un empilement de sable de Fontainebleau en 3D (taille 250^3 voxels). Les pores d'entrée sont en vert, les pores de sortie en cyan et les pores connectés en x et y sont les carrés bleus. Les traits verticaux représentent les connections transverses.



(a) Distribution des diamètres de pores



(b) Distribution des rayons hydrauliques des canaux

FIGURE 10.2 – Distribution des diamètres des pores et des canaux du réseau extrait de l'empilement de sable de Fontainebleau : Les diamètres de pores sont compris entre $24\mu m$ et $174\mu m$, avec une moyenne de $60\mu m$. Les diamètres des canaux sont les diamètres hydrauliques, le diamètre moyen est $24.46\mu m$.

$79.80\mu m$.

Le réseau présente 35 "cul-de-sac" (pores n'ayant qu'un seul voisin), et un seul pore connecté seulement à deux voisins, dont un est un cul-de-sac.

La vitesse interstitielle peut-être réglée pour étudier différents régimes de Peclet et simuler les conditions expérimentales, le champ de vitesse restant identique aux valeurs près. La distribution des vitesses est présentée Figure 10.4. La forme de la distribution en graphique semilog est celle d'une log-normale, typique des champs de vitesse extraits d'empilements homogènes et isotropes de grains (Manwart *et al.*, 2002).

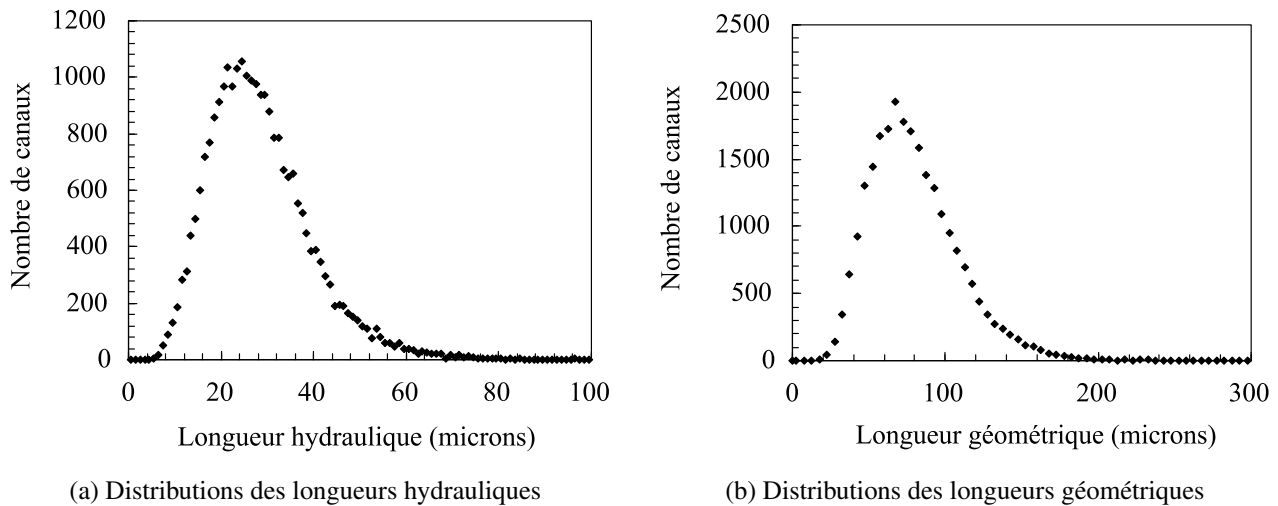


FIGURE 10.3 – Caractéristiques des longueurs des hydrauliques et géométriques des canaux du réseau de pores de l'empilement de sable de Fontainebleau : La longueur hydraulique moyenne est $28.35 \mu m$, la longueur géométrique moyenne est $79.80 \mu m$.

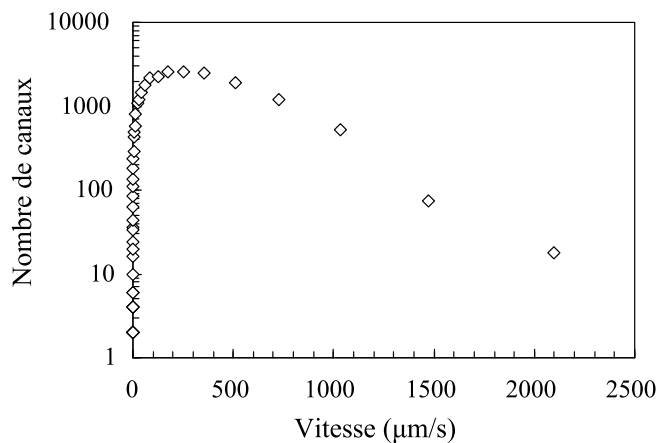


FIGURE 10.4 – Distribution des vitesses dans le réseau de pores saturé extrait d'un empilement de sable de Fontainebleau pour une vitesse interstitielle $v_0 = 283.09 \mu m/s$. La forme de la distribution en graphique semilog correspond à une loi log-normale.

10.1.2 Isotropie et homogénéité du réseau

Des simulations de marche aléatoire, avec advection et diffusion, ont été effectuées dans les trois directions du réseau afin de vérifier l'isotropie de ce dernier. Les simulations montrent des résultats identiques quelle que soit la direction considérée (Figure 10.5). Le réseau est donc isotrope. Ce qui est cohérent avec le fait que le milieu poreux réel est aussi homogène et isotrope.

Le champ de pression dans le réseau lors d'un écoulement monophasique est homogène transversalement (Figure 10.6). Ce qui se traduit par des débits faibles dans les canaux transverses (cf. équation F.1 paragraphe F.1).

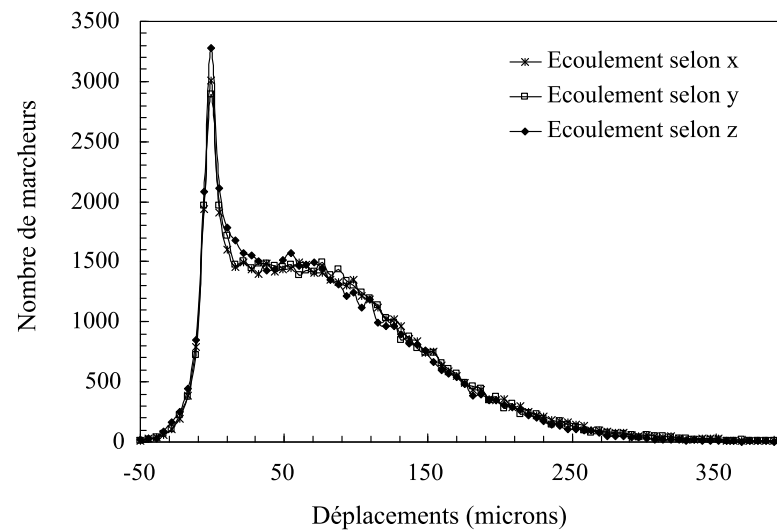


FIGURE 10.5 – Des simulations de marche aléatoire ont été effectuée dans les trois directions du réseau, afin de vérifier l'isotropie du réseau de pore. Les simulations montrent des résultats identiques quelle que soit la direction considérée. Le réseau est donc isotrope.

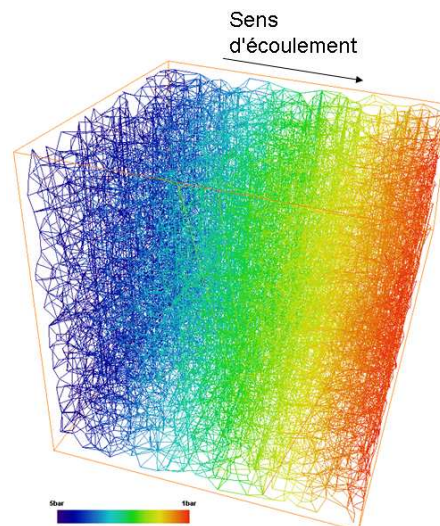


FIGURE 10.6 – Le champ de pression dans le réseau lors d'un écoulement saturé est homogène transversalement.

10.2 Répétabilité et influence de l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoires

Des tests ont été effectués pour garantir la répétabilité des simulations et étudier l'influence de l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoires. Des simulations avec des paramètres identiques à l'exception de l'initialisation du générateur ont été réalisées. Les résultats de ces tests sont présentés Figure 10.7a (pour trois simulations différentes et des initialisations du générateur identiques) et Figure 10.7b (pour trois simulations différentes et des initialisations du générateur dif-

férentes). Ces tests sont réalisés avec 50000 marcheurs, un pas de temps $dt = 0.0005$ s, et une vitesse interstitielle de $404 \mu m/s$.

Le générateur de nombres pseudo-aléatoires nécessite une valeur initiale nommée graine. Lorsque cette graine est constante, la suite de nombres produite par le générateur est identique pour toutes les simulations. Les simulations à graine constante sont identiques en tous points (Figure 10.7a). La répétabilité des simulations est parfaite.

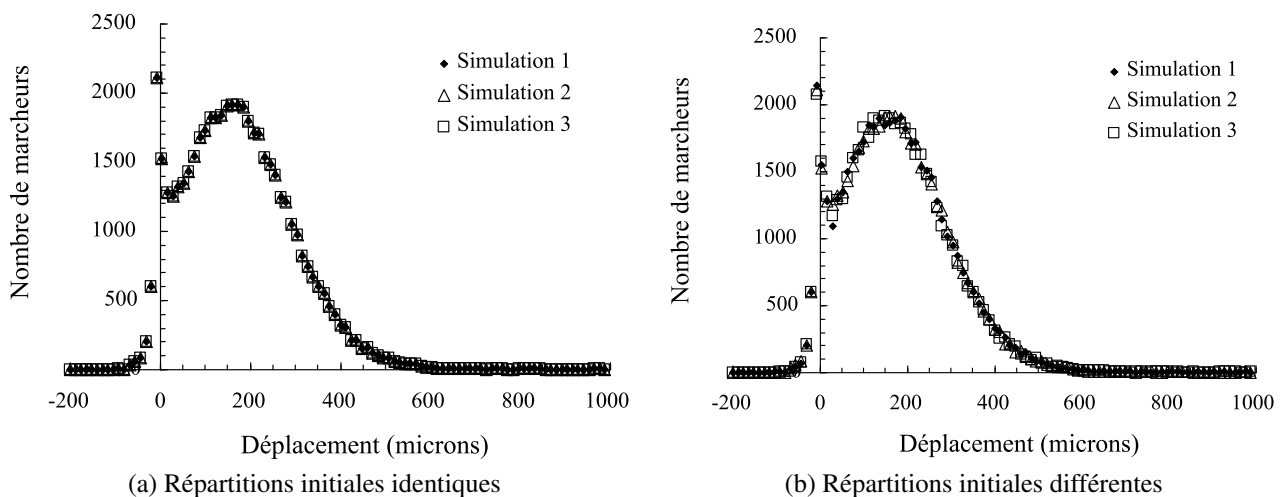


FIGURE 10.7 – Répétabilité des simulations pour des répartitions initiales identiques ou différentes du générateur de nombre pseudo-aléatoire : 10.7a : trois simulations aux paramètres identiques ont été réalisées avec une graine du générateur de nombres pseudo-aléatoire constante (11168), ces trois simulations donnent des résultats strictement identiques. 10.7b : trois simulations avec des répartitions initiales différentes, les variations observées sont mineures et s'expliquent par les différences de tirage des nombres pseudo-aléatoires.

Lorsque la graine est différente pour chaque simulation, la suite de nombres produite par le générateur est différente. Toutefois, la suite de nombres produite doit toujours vérifier la distribution souhaitée (uniforme). La Figure 10.7b montre que la répétabilité pour des graines variables est aussi assurée, les propagateurs présentant des variations mineures.

Lors de simulations avec une graine variable (Figure 10.7b), des variations sont observées au niveau du pic aux faibles déplacements, ainsi qu'aux grands déplacements (non visibles sur la figure). Les variations du pic s'expliquent par une répartition initiale légèrement différente des marcheurs et des tirages différents des sauts diffusifs. Les différences observées aux grands déplacements (positifs comme négatifs) sont dues à des déplacements exceptionnels d'un très faible nombre de marcheurs (un à deux). La distribution gaussienne des sauts diffusifs implique que l'on tire de temps en temps (avec une faible probabilité) de grands déplacements.

10.3 Paramètres de la marche aléatoire

La marche aléatoire repose sur deux paramètres fondamentaux non déterminés par l'expérience RMN et les lois physiques : le nombre de marcheurs et la durée du pas de temps dt . Cette partie présente comment sont choisis ces paramètres.

10.3.1 Choix du nombre de marcheurs

Le choix du nombre de marcheurs utilisés par la marche aléatoire doit répondre à deux critères, ce nombre doit être suffisamment grand pour que les résultats soient représentatifs du milieu et des écoulements considérés et suffisamment petit pour minimiser la durée des simulations. En première approximation, on peut estimer qu'il faudra au minimum un à deux marcheurs par canaux. Une série de simulations de marche aléatoire a été réalisée pour étudier comment les résultats dépendent du nombre de marcheurs (Figure 10.8). Ces simulations ont été réalisées pour des nombres de marcheurs allant de 1000 à 50000, le pas de temps dt étant de 0.0005 et le nombre de pas de temps étant 10000, avec une vitesse interstitielle de $404 \mu\text{m/s}$. La position des marcheurs est sauvegardée tous les 100 pas de temps, soit toutes les 0.005 secondes.

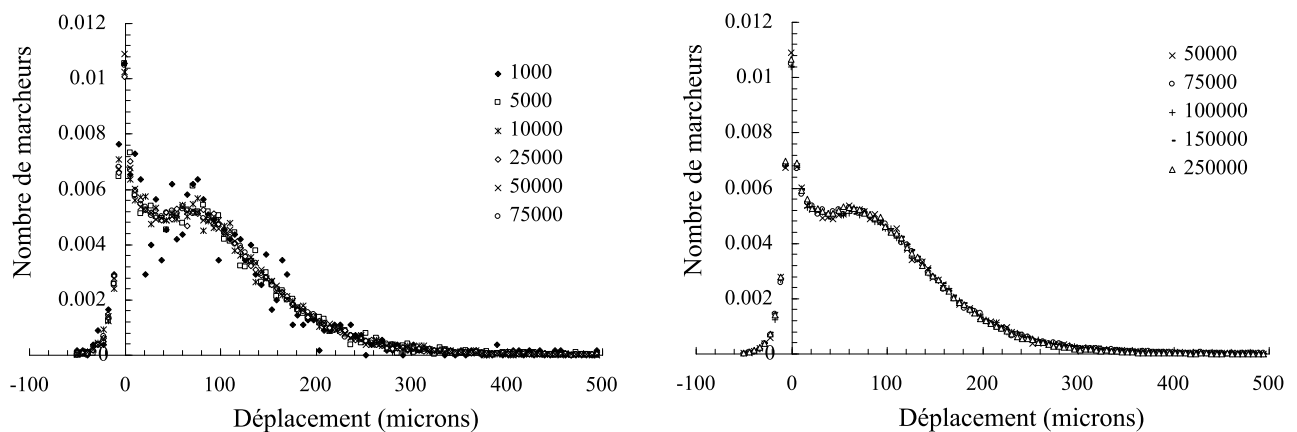


FIGURE 10.8 – Propagateurs à un temps donné ($t_{\Delta} = 200 \text{ ms}$) et une vitesse interstitielle de $404 \mu\text{m/s}$ pour les différents nombres de marcheurs : Au delà de 50000 marcheurs, l'augmentation du nombre de marcheurs n'améliore plus le propagateur de manière significative.

Les simulations, Figure 10.8, montrent que, pour le réseau de pores considéré, le nombre de marcheurs optimal est 50000. L'augmentation du nombre de marcheurs, si elle permet d'améliorer quelque peu les résultats, son rôle n'est toutefois pas critique.

10.3.2 Choix du pas de temps

Classiquement, le pas de temps optimal est déterminé de telle façon qu'un marcheur ne puisse pas parcourir les canaux d'un seul mouvement (advectif et diffusif) (Press *et al.*, 2007). Ce qui revient à rechercher dt tel que :

$$L_{min} = v_{max} dt + \sqrt{2 D_{eff_{max}} dt} \quad (10.1)$$

où, L_{min} est la longueur du plus petit canal, v_{max} la vitesse maximale dans les canaux, et $D_{eff_{max}}$ le coefficient de diffusion effectif maximal local (dans un canal).

Dans le cas du réseau de pores extrait de l'empilement de sable de $80 \mu m$ et une vitesse interstitielle de $404 \mu m/s$: $L_{gmin} = 9.95 \mu m$, $v_{max} = 5083.9 \mu m.s^{-1}$ et $D_{eff_{max}} = 51111.9 \mu m^2/s$. Ce qui donne pour pas de temps dt :

$$dt = 0.00053 s \quad (10.2)$$

Des marches aléatoires de 50000 marcheurs, de vitesse interstitielle $404 \mu m/s$, et de différents pas de temps dt , ont été réalisées. Les positions des marcheurs ont été enregistrées à des intervalles de temps réguliers et identiques pour les différentes simulations. Les propagateurs pour un même temps d'observation t_{Δ} et des pas de temps dt différents sont présentés Figure 10.9.

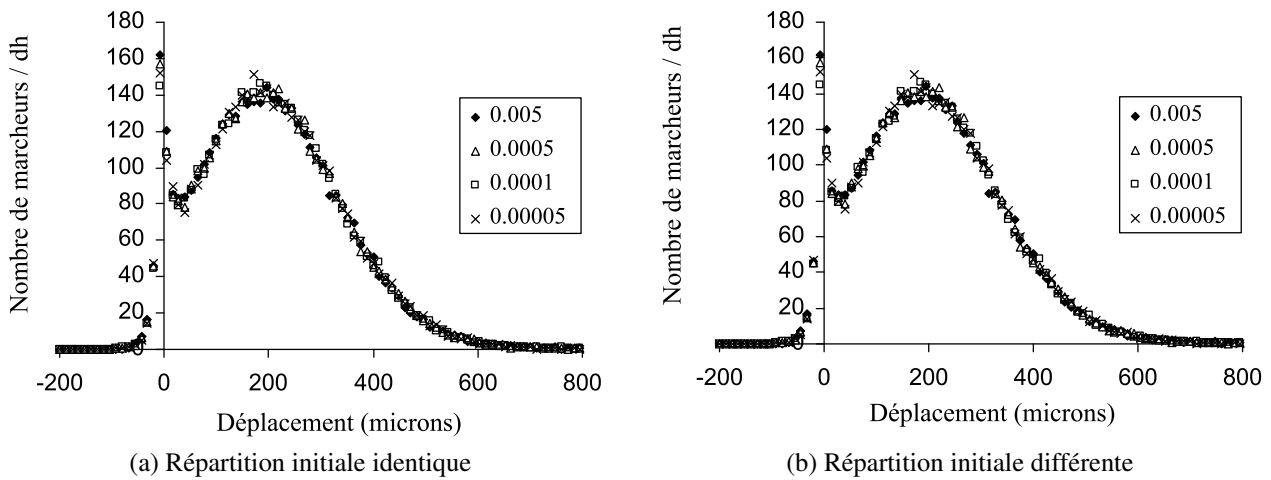


FIGURE 10.9 – Propagateurs pour un même temps d'observation, des pas de temps variables et des répartitions initiales identiques ou différentes : 50000 marcheurs, vitesse interstitielle $404 \mu m/s$, temps d'observation $t_{\Delta} = 450 ms$. L'influence du pas de temps sur les résultats de la marche aléatoire est faible. Les variations observées sont dues principalement aux différents tirages de nombres pseudo-aléatoires.

L'influence du pas de temps a été étudiée avec une liste unique de nombres pseudo-aléatoires (l'initialisation du générateur de nombres pseudo-aléatoires étant identique). Les résultats sur le propagateur pour un temps d'observation de $450 ms$ sont présentés Figure 10.9a. La variation des pas de temps entraîne une utilisation différente de la liste de nombres pseudo-aléatoires pour chaque pas de temps. Pour des pas de temps différents le mouvement d'un marcheur durant un pas de temps varie (augmente avec le pas de temps), chaque marcheur a donc plus de probabilité de passer un nœud et donc utilise plus de nombres pseudo-aléatoires durant un pas de temps. Cette utilisation différente de

la liste de nombres pseudo-aléatoires explique les variations observées.

Les marches aléatoires donnant les résultats de la Figure 10.9b sont effectuées avec des répartition initiales aléatoires. Le générateur de nombres pseudo-aléatoires engendre une liste spécifique à chaque simulation. Les variations observées sur le propagateur sont mineures et peuvent aussi s'expliquer par la répartition initiale des marcheurs différente à chaque simulation.

Ces résultats montrent que la variation du pas de temps n'influence pas de façon significative les résultats de la marche aléatoire. Les variations observées restent dans la gamme de celles engendrées par une variation de la répartition initiale des marcheurs et de la liste de nombre pseudo-aléatoire.

10.4 Influence de la répartition initiale des marcheurs

La vitesse instantanée du nuage de marcheurs (vitesse calculée pour un déplacement durant un pas de temps), dans le cas d'une répartition initiale des marcheurs pondérées par les volumes est constante au cours du temps et correspond à la vitesse interstitielle du fluide dans le réseau (Figure 10.10).

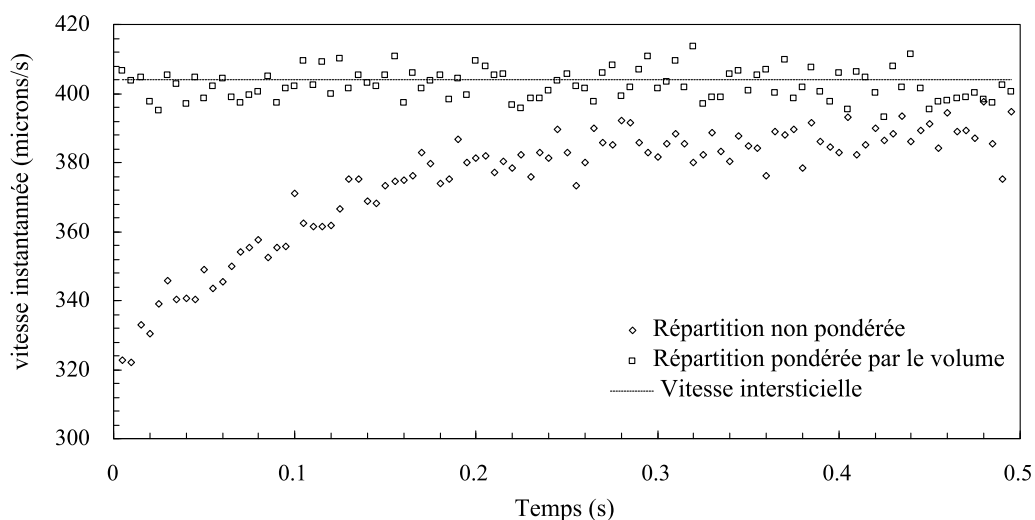


FIGURE 10.10 – Évolution de la vitesse instantanée du nuage de marcheurs au cours du temps : Les règles de répartition des marcheurs aux nœuds permettent d'influencer la répartition des marcheurs dans le réseau et tend à répartir les marcheurs suivant les volumes des canaux et des pores.

La comparaison avec une simulation où les marcheurs ont été aléatoirement répartis dans le réseau sans pondération est présentée Figure 10.10. La répartition des marcheurs dans le réseau change au cours du temps et le déplacement moyen initial est beaucoup plus faible que le déplacement moyen théorique, le déplacement moyen tend ensuite vers le déplacement moyen théorique. On remarque que les règles de répartition des marcheurs aux nœuds permettent d'influencer la répartition des marcheurs dans le réseau et tendent à répartir les marcheurs suivant les volumes des canaux et des pores.

La répartition initiale des marcheurs en fonction du volume correspond à la réalité physique de la mesure RMN, le traceur étant présent partout dans le milieu de manière uniforme (concentration constante).

10.5 Vérification des hypothèses sur les déplacements dans les canaux

Les déplacements à la vitesse moyenne dans les canaux présupposent l'établissement de l'écoulement de Poiseuille et de la dispersion de Taylor dans les canaux. La vérification de ces hypothèses a été faite pour un écoulement de vitesse interstitielle $404 \mu m/s$. L'établissement de l'écoulement de Poiseuille dans tous les canaux a été vérifiée. La longueur nécessaire à l'établissement du profil de Poiseuille L_{Pois} est :

$$L_{Pois} = \frac{1}{4} Re d \quad (10.3)$$

$$(10.4)$$

où L_{Pois} est la longueur d'établissement, Re le nombre de Reynolds et d le diamètre du canal.

Pour que l'écoulement de Poiseuille soit établi dans un canal il faut que $L_{Pois} \ll L_g$. L'ensemble des canaux du réseau de pores vérifient l'établissement de l'écoulement de Poiseuille.

La dispersion de Taylor a pour hypothèses (cf. paragraphe 1.1.2.3) :

$$\frac{d}{L_g} \ll 1 \quad (10.5)$$

$$L_g \gg \frac{Pe_d d}{4} \quad (10.6)$$

où Pe_d le nombre de Peclet local basé sur le diamètre d du canal.

La première condition n'est pas vérifiée pour 1.6 % des canaux. La seconde basée sur le nombre de Peclet n'est pas vérifiée dans 15.4 % des cas ne vérifiant pas non plus la première condition. Soit 15.4 % des canaux dans lesquels le régime de dispersion de Taylor n'est pas validé.

10.6 Propagateurs et moments caractéristiques en fonction du temps

L'objectif des simulations numériques étant une comparaison avec les expériences de RMN, des simulations de marche aléatoire ont été effectuées avec des paramètres similaires à ceux d'une expérience de RMN réalisée sur l'empilement de grains de sable de Fontainebleau (résultats RMN présentés paragraphe 6.2.1). Le paramètre permettant de comparer les simulations à l'expérience est la vitesse interstitielle, ici elle est de $404 \mu m/s$, ce qui correspond à la vitesse interstitielle de l'expérience RMN pour un débit de $250 ml/h$. Les temps d'observation sont dans des gammes similaires, de $50 ms$ à $1000 ms$, la simulation permet d'atteindre des temps beaucoup plus importants comme

4000 ms . Les propagateurs résultants des simulations sont présentés Figure 10.11.

On note la présence nette d'un pic aigu aux très faibles déplacements (Figure 10.11a et 10.11b), disparaissant pour de grands temps d'observation (Figure 10.11d). Ce pic correspond à une stagnation importante des marcheurs et traduit la présence de zones de faible vitesse dont les marcheurs mettent du temps à sortir (cf. Chapitre 4 paragraphe 4.2 et les travaux de Lebon *et al.* (1997)). La provenance de ce pic sera traitée dans le paragraphe 10.8.

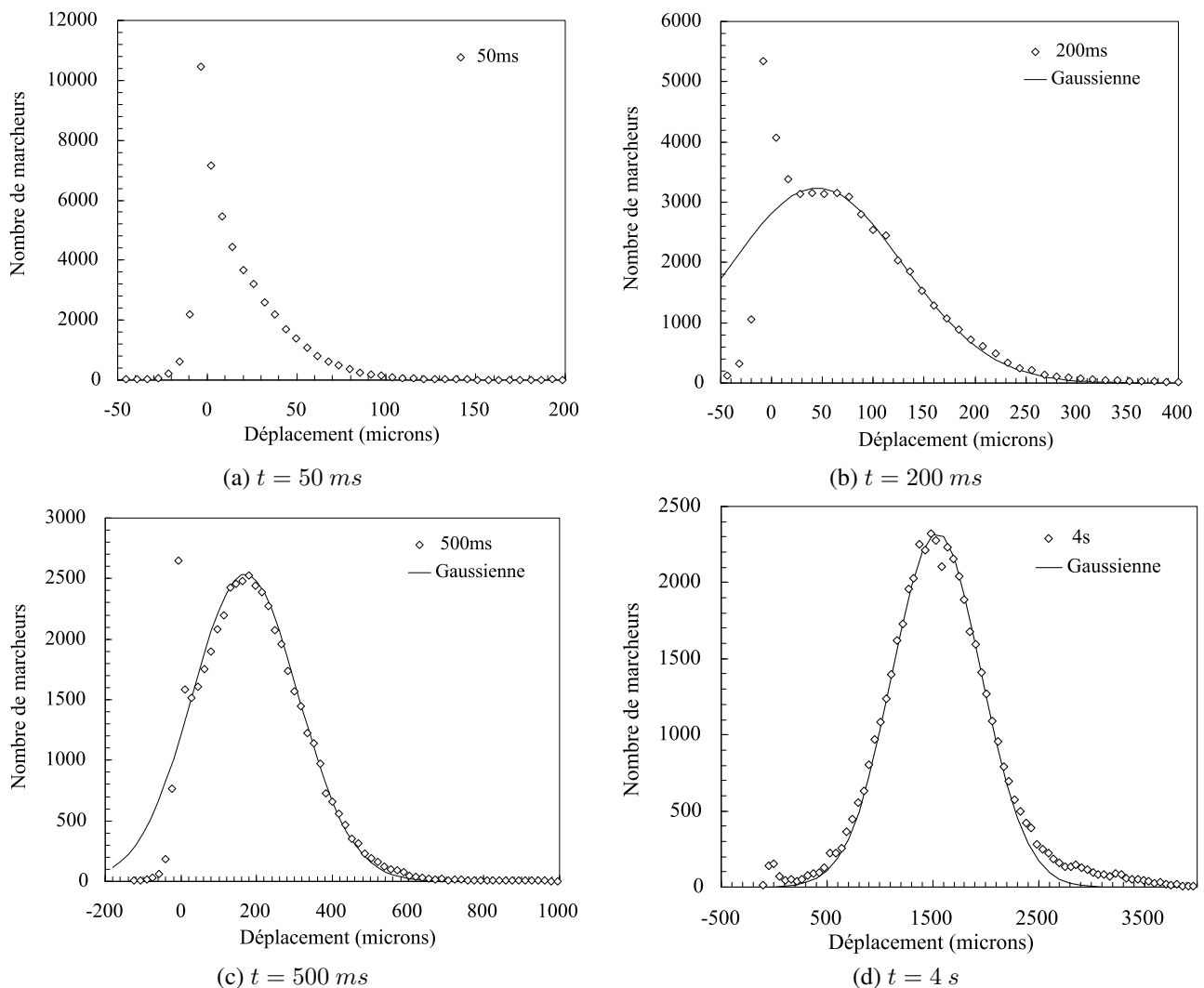


FIGURE 10.11 – Propagateurs en fonction du temps d'observation t .

Les propagateurs présentent, pour des temps d'observation supérieurs à 50 ms , un second pic arrondi qui tend vers une forme gaussienne centrée sur le déplacement moyen (Figure 10.11b et 10.11c).

Pour les grands temps d'observation, le propagateur présente une légère déviation de la gaussienne pour les grands déplacements (Figure 10.11d). Quelques marcheurs se déplacent de manière anormalement rapide. Le pic disparaît traduisant le fait qu'aux grands temps, les marcheurs étant initialement dans les zones à faible vitesse réussissent à en sortir. Il a été montré dans le paragraphe 10.4

que la répartition des marcheurs dans le réseau est en permanence uniforme. Les marcheurs initialement présents dans les zones stagnantes et composant le pic stagnant du propagateur sont remplacés par des marcheurs venant d'autres zones du réseau de pore, le nombre de marcheurs stagnants à un instant donné est constant (cf. paragraphe 10.7).

L'évolution du moment d'ordre deux en fonction du temps est présentée Figure 10.12. Elle montre un changement de cinétique vers 500 ms. Avant 500 ms, le moment d'ordre 2 évolue en t_{Δ}^a , avec $a = 1.46$. Après 500 ms, $a = 1.22$. La valeur initiale très élevée de a est sans doute liée à la disparition progressive du pic augmentant de manière anormale le moment d'ordre 2 au cours du temps. À partir de 500 ms, l'influence de la stagnation anormale sur l'évolution du nuage de marcheurs devient négligeable, les marcheurs étant initialement dans les zones stagnantes ayant réussi à en sortir.

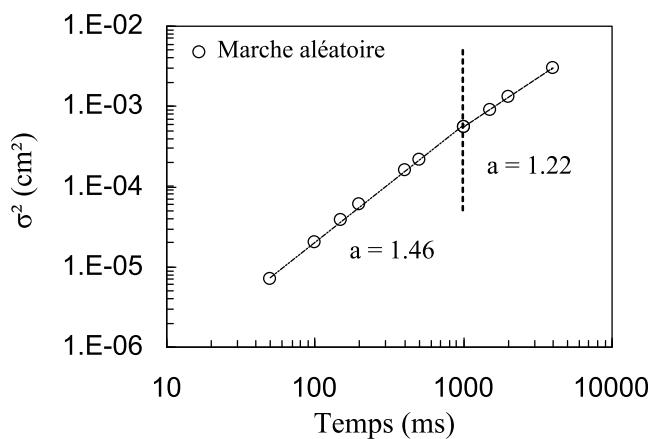


FIGURE 10.12 – Évolution du moment d’ordre 2 en fonction du temps.

10.7 Évolution des propagateurs de même temps d’observation t_{Δ} en fonction du temps initial t_1

Chaque propagateur est mesuré pour un intervalle de temps $[t_1, t_2]$ de durée $t_{\Delta} = t_2 - t_1$ fixe (le temps d’observation). L’évolution du propagateur pour un temps d’observation fixe et un t_1 variable permet d’observer les variations du déplacement ou de la position des marcheurs au cours de la simulation. Si ces propagateurs sont identiques, la simulation est stable et la répartition des marcheurs dans le réseau en fonction des vitesses des canaux est constante.

Les propagateurs pour un temps d’observation de 500 ms sont mesurés pour des t_1 variables (0.5, 1, 2.5 et 4 s). Ces propagateurs sont présentés Figure 10.13. Ils sont identiques.

La répartition des marcheurs dans le réseau et surtout le nombre de marcheurs dans les zones de faible vitesse (composant le pic aux déplacements nuls) est constant. Le pic stagnant ne provient pas d’une capture des marcheurs dans des zones de faible vitesse. Le nombre de marcheurs présents dans les zones stagnantes est constant au cours du temps.

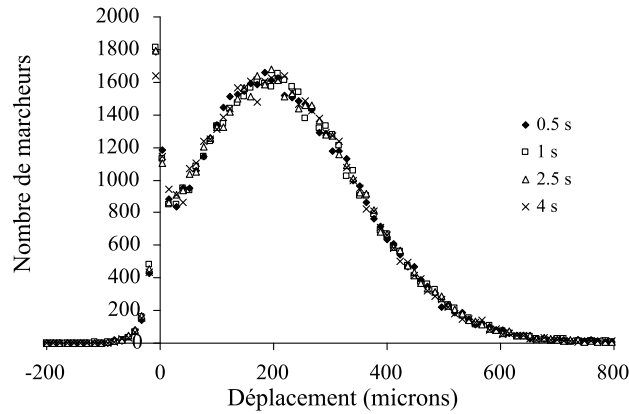


FIGURE 10.13 – Propagateurs pour un même temps d’observation $t_{\Delta} = t_2 - t_1 = 500 \text{ ms}$ et un début de t_{Δ} (t_1) variable (0.5, 1, 2.5 et 4 s). Les propagateurs ne montrent pas des formes différentes. La répartition des marcheurs dans le réseau et surtout le nombre de marcheurs dans les zones de faible vitesse (composant le pic aux déplacements nuls) est constant.

10.8 Discussion sur la stagnation anormale des marcheurs

Comme il a été montré au paragraphe précédent la stagnation anormale des marcheurs n’est pas liée à un problème de concentration des marcheurs dans des canaux ayant une faible vitesse. Une autre hypothèse pouvant expliquer la présence de marcheurs stagnants est la structure monodirectionnelle des canaux : Le propagateur est mesuré selon l’axe longitudinal, les déplacements d’un marcheur selon une direction transverse engendrent un faible déplacement longitudinal, même si la vitesse du canal est élevée. De plus, le champ de vitesse est calculé par application d’un différentiel de pression entre la face d’entrée et la face de sortie. Le champ de pression dans le réseau de pores (Figure 10.6) montre une faible variation transverse de pression, la vitesse des canaux transverses à l’écoulement principal est donc globalement faible.

L’inclinaison des canaux par rapport à l’axe longitudinal est définie telle que présentée Figure 10.14. Trois angles sont définis : a_y , a_z et φ . a_y est l’angle que forme la projection du canal considéré dans le plan xy avec la direction de l’écoulement (x). a_z est l’angle que forme la projection du canal dans le plan xz avec la direction de l’écoulement (x). φ est l’angle que forme le canal avec la direction longitudinale.

La répartition des canaux selon leur inclinaison par rapport à la direction de l’écoulement a été étudiée. La répartition en fonction de la valeur de l’angle est constante pour les trois angles a_y , a_z et φ . L’isotropie du réseau est confirmée par ce résultat.

La position des marcheurs stagnants pour un propagateur a été étudiée pour une vitesse interstitielle de $404 \mu\text{m/s}$ et un temps d’observation $t_{\Delta} = 500 \text{ ms}$. Sur 3751 marcheurs stagnants (déplacement longitudinal durant t_{Δ} compris entre $\pm 13 \mu\text{m}$), 1965 (52.4 % des marcheurs stagnants) ne circulent que dans un seul canal, 137 (3.6 %) circulent dans deux canaux (tableau 10.1). Au-delà d’un canal traversé le nombre de marcheurs stagnants décroît avec l’augmentation du nombre de canaux visités. 1337 (35.6 %) marcheurs se déplacent de $\pm 13 \mu\text{m}$ en visitant plus de 5 canaux.

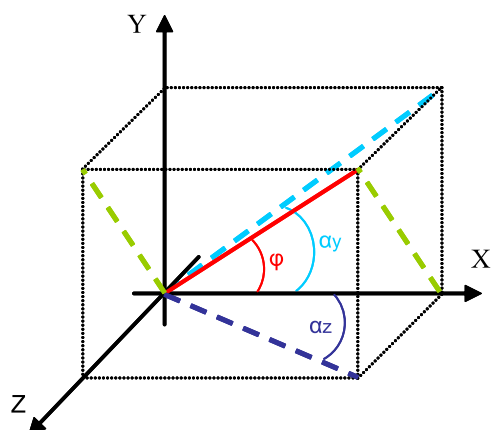


FIGURE 10.14 – Définition des angles liés au canal k défini par les nœuds m et M .

Nombre de nœuds traversés	Nombre de marcheurs	Pourcentage
0	1965	52.4
1	137	3.6
2	110	2.9
3	104	2.7
4	98	2.6
> 5	1337	35.6

TABLE 10.1 – Nombre de nœuds traversé par les marcheurs stagnants. 52.4 % des marcheurs stagnants restent dans un seul canal durant le temps d'observation considéré.

Sur les 3751 marcheurs stagnants, seuls 522 (13.9 %) sont situés dans des connections transverses (canaux connectant les faces transverses du réseau de pore). La stagnation anormale des marcheurs provient par conséquent du réseau de pores lui-même et non des canaux de connection. De plus, le nombre de cul-de-sac (Dead-end) étant faible, la stagnation anormale des marcheurs ne provient pas de ces canaux.

La moitié du pic stagnant (52.4 %) vient de marcheurs restant dans un seul canal. Une étude de l'angle de ces canaux dans lesquels les marcheurs ne se déplacent pas horizontalement a été faite, la distribution des marcheurs selon les angles d'inclinaison de leurs canaux est présentée Figure 10.15. Cette figure montre que les marcheurs stagnants sont principalement localisés dans les canaux très inclinés par rapport à l'axe longitudinal ($\varphi > 70^\circ$).

Afin de corroborer le rôle des canaux transverses dans la stagnation des marcheurs, des simulations ont été effectuées avec des coefficients de diffusion effective augmenté d'un facteur 10 pour les canaux inclinés d'un angle φ de plus de 60 ou 70 degrés par rapport à l'axe longitudinal (Figure 10.16). Le but de ces simulations étant de confirmer le rôle des canaux transverses dans la stagnation générant le pic du propageur, la valeur du coefficient de diffusion effectif est augmentée de façon arbitraire et ces simulations ne sont pas comparées aux expériences RMN. Les propageurs montrent une disparition nette de la plus grande partie du pic. En augmentant le coefficient de diffusion effectif, on augmente la probabilité pour les marcheurs d'effectuer un saut les faisant sortir du canal où ils se trouvent. Le temps de séjour dans un canal transverse diminue donc, ce qui explique la disparition du pic. La

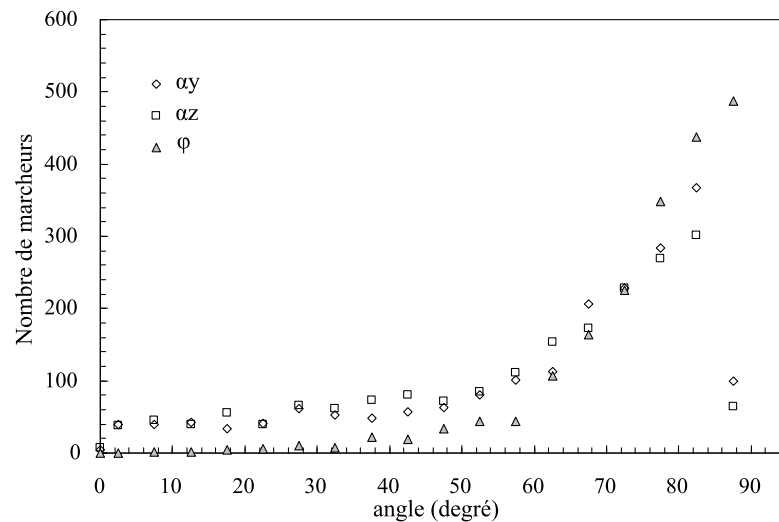


FIGURE 10.15 – Répartition des marcheurs stagnants (dans un seul canal) en fonction de l'inclinaison de leurs canaux : La majorité des marcheurs stagnants sont dans des canaux inclinés (par rapport à la direction de l'écoulement) d'un angle supérieur à 70° .

stagnation résiduelle observée peut s'expliquer par le fait que quelques marcheurs stagnent dans des canaux d'inclinaison φ comprise entre 40 et 60 % (Figure 10.15).

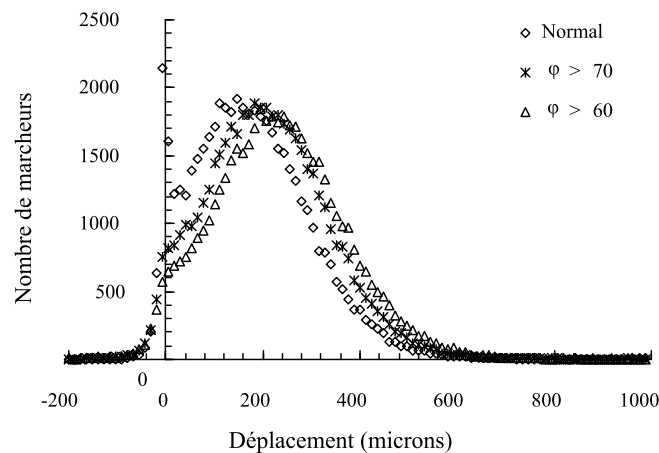


FIGURE 10.16 – Propagateurs et influence du coefficient de diffusion effective dans les canaux transverses : 50000 marcheurs, vitesse interstitielle $404 \mu m/s$, temps d'observation $500 ms$. L'augmentation du coefficient de diffusion effective dans les canaux transverses inclinés de plus de 60 ou 70 degrés par rapport à l'axe longitudinal engendre une disparition du pic de marcheurs stagnants. La stagnation des marcheurs est due à la structure du réseau de pores et notamment à ses canaux transverses.

Ces simulations confirment le fait que la stagnation des marcheurs est due à la structure du réseau de pores et notamment aux canaux transverses. Ces stagnations n'étant pas observés dans les expériences en laboratoire, on peut conclure que la structure actuelle du réseau de pores engendre un biais dans la dispersion, non représentatif de la dispersion occurring dans le milieu réel, notamment aux faibles temps qui correspondent aux temps expérimentaux.

10.9 Comparaison des résultats des simulations avec les résultats expérimentaux et perspectives

Les résultats des simulations numériques de marche aléatoire pour une vitesse interstitielle de $404 \mu\text{m/s}$, ont été comparés avec les résultats des expériences RMN sur l'empilement de sable de Fontainebleau avec un débit de 250 ml/h (soit une vitesse moyenne de $404 \mu\text{m/s}$) en écoulement saturé.

Les propagateurs sont présentés Figure 10.17. Ces propagateurs ne coïncident pas de manière quantitative. Le pic stagnant observé sur le propagateur numérique (Figure 10.17a) n'est pas retrouvé sur le propagateur expérimental (Figure 10.17). La largeur du propagateur est plus importante pour le propagateur numérique que pour le propagateur expérimental. Ces deux différences peuvent être expliquées comme résultant du mécanisme générant le pic stagnant. Certains marcheurs étant anormalement retardés, la largeur du propagateur augmente.

La comparaison entre les deux propagateurs montre aussi des déplacements accélérés de marcheurs dans la simulation. Cette dispersion accrue de la simulation pourrait provenir d'un transport accéléré dans des canaux colinéaires au flux principal, mais aussi des hypothèses faites sur le transport des marcheurs dans les canaux et dans les nœuds. De fait, le régime de dispersion de Taylor n'est pas validé dans 15.4 % des canaux du réseau. Le déplacement des marcheurs à la vitesse moyenne dans ces canaux n'est donc pas strictement valable. L'écoulement de Poiseuille étant validé dans tous les canaux du réseau de pore, il serait nécessaire d'introduire un déplacement des marcheurs de type analytique dans ces canaux. Les marcheurs se déplaceraient le long des lignes de courant décrivant le profil des vitesses parabolique caractéristique de l'écoulement de Poiseuille.

On remarque toutefois que l'apogée de second pic du propagateur numérique est situé à 6.1 fois la taille de grains, ce qui est cohérent avec l'apogée du propagateur expérimental situé à environ 5.9 fois la taille de grains. Ceci est cohérent avec le calage des vitesses interstitielles expérimentales et numériques.

La comparaison de l'évolution du moment d'ordre 2 en fonction du temps de mesure (Figure 10.18), confirme que la dispersion dans le réseau de pores est plus importante que la dispersion dans l'empilement de grains, le moment d'ordre 2 étant plus élevé pour les simulations que pour les expériences RMN.

La tendance des deux moments coïncide, que ce soit dans le régime pré-asymptotique ou asymptotique. La valeur asymptotique de a est de l'ordre de 1.20 pour la simulation comme pour l'expérience.

La simulation n'est pas quantitative pour les propagateurs ni pour les moments, mais elle reproduit correctement l'évolution des moments aux grands temps. La transition tardive du moment d'ordre 2 de la simulation numérique vers le comportement aux grands temps est sans doute due à la stagnation anormale des marcheurs.

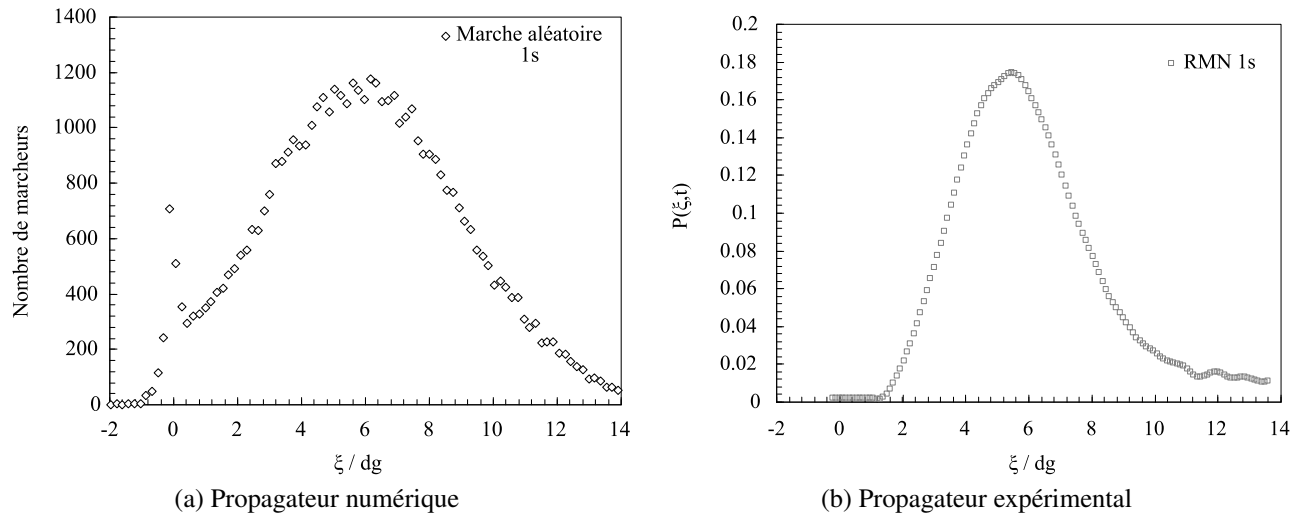


FIGURE 10.17 – Comparaison des propagateurs numériques et expérimentaux pour des conditions d'écoulement similaires dans l'empilement de grains de sable de Fontainebleau saturé. La vitesse interstitielle étant dans les deux cas de $404 \mu\text{m/s}$ et le temps d'observation de 1 s . Les propagateurs sont exprimés en fonction du déplacement normalisé par la taille de grains. L'intégrale du propagateur numérique n'a pas, contrairement à celle du propagateur expérimental, été normalisée.

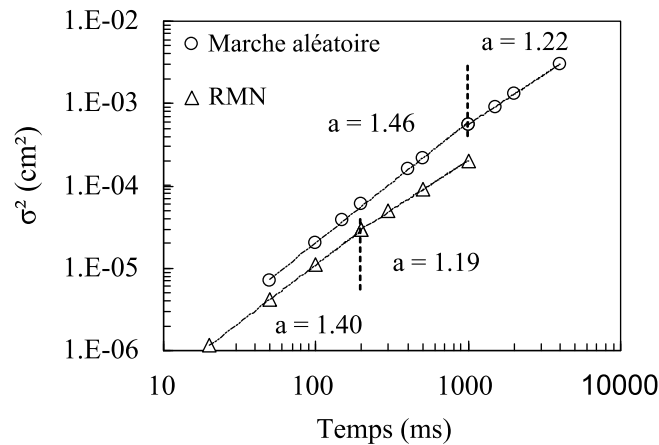


FIGURE 10.18 – Comparaison de l'évolution du moment d'ordre 2 en fonction du temps pour une simulation numérique et une expérience RMN de même vitesse interstitielle ($404 \mu\text{m/s}$).

10.10 Conclusion

Il a été montré dans ce chapitre que la structure même du réseau de pores ne permet pas de décrire de manière suffisante les détails complexes du champ de vitesse dans le milieu poreux réel et induit un biais fort dans la dispersion des marcheurs – une stagnation anormale de ceux-ci – causé par la présence de canaux transverses non représentatifs. L'analyse du réseau de pores telle qu'elle est actuellement réalisée ne permet pas de simuler de manière quantitative le déplacement des molécules d'eau dans un milieu poreux homogène fortement connecté comme un empilement de grains. Ceci explique pourquoi l'ensemble des auteurs étudiant les marches aléatoires dans ce type de ré-

seau de pores observent des propagateurs possédant un pic stagnant anormal, y compris dans des réseaux stochastiques (Damion *et al.*, 2000). Nous pensons toutefois que ceci ne s'applique pas dans le cas de milieux poreux hétérogènes et faiblement connectés comme certains milieux consolidés, les écoulements dans ces milieux étant moins diffus. Ce point reste à vérifier.

Afin de mieux décrire le champ de vitesse du fluide dans le milieu poreux réel, la marche aléatoire peut être directement effectuée dans l'image extraite par micro-scanner et non dans le réseau de pore. De telles simulations ont été effectuées en monophasique pour un empilement de grains de sable (Blunt *et al.*, 2012) et ne semblent pas présenter de stagnation anormale. Cette méthode présente cependant deux points faibles : le premier est la mise en place compliquée des phases en écoulement diphasique. Le second est la puissance et le temps de calcul nécessaires pour calculer le champ de vitesse dans l'image et effectuer la marche aléatoire.

Si la présence du pic stagnant est clairement due à la structure du réseau de pore, la dispersion accrue observée dans le réseau pourrait, elle, provenir des hypothèses faites sur le transport des marcheurs dans les canaux et dans les nœuds. De fait, l'établissement du régime de dispersion de Taylor dans les canaux n'est pas toujours vérifié. Le déplacement des marcheurs à la vitesse moyenne dans ces canaux n'est donc pas valide. L'écoulement de Poiseuille étant validé, il pourra être envisagé de coupler un déplacement advectif des marcheurs selon le profil de l'écoulement de Poiseuille avec un déplacement diffusif permettant de passer d'une ligne de courant à une autre (Bruderer et Bernabe, 2001, Sahimi *et al.*, 1986b).

Les résultats de la marche aléatoire présentent toutefois des points positifs. Le déplacement moyen du pic gaussien du propageur numérique coïncide avec le déplacement moyen du propageur expérimental. Par ailleurs, il a été montré que les moments d'ordre deux obtenus par simulation numérique suivent le comportement des moments obtenus par RMN. La marche aléatoire pourrait, en l'état actuel, être utilisée comme prédiction du comportement du moment d'ordre deux aux temps longs, supérieurs aux temps accessibles par RMN.

Un des objectifs de cette simulation en réseau de pores était de pouvoir modéliser l'expérience RMN en écoulement diphasique. À cause des difficultés rencontrées pour simuler la dispersion dans l'écoulement monophasique, la simulation en diphasique n'a pas été effectuée. Effectivement, la marche aléatoire n'a pu être validée en écoulement monophasique et l'écoulement diphasique présentant des faibles déplacements plus importants (cf. résultats expérimentaux décrits dans la partie II), nous estimons qu'il n'est pas possible d'exploiter correctement les simulations de marche aléatoire en écoulement diphasique.

Conclusion Générale

1 Conclusion Générale

La dispersion en milieux poreux est généralement abordée par l'intermédiaire des courbes de percée, une mesure de la concentration d'un traceur à la sortie d'un échantillon analysée à l'aide de modèles pouvant prendre en compte différents processus d'immobilisation ou d'accélération. Dans ce travail de thèse, nous proposons une autre approche plus directe utilisant à la fois une mesure expérimentale de la distribution des déplacements locaux des molécules lors de l'écoulement, et une analyse de ces mesures par l'intermédiaire d'une simulation de ces déplacements dans un réseau de pore simplifié représentant l'espace poral réel. Cette simulation doit également permettre d'extrapoler les mesures expérimentales et d'atteindre ainsi des déplacements non observables directement. Cette double approche expérimentale et numérique s'appuie d'une part sur des mesures de résonance magnétique nucléaire (RMN) permettant d'obtenir des informations sur les déplacements locaux des molécules d'eau présentes dans le milieu poreux à différentes échelles de temps, et d'autre part sur des simulations de marche aléatoire dans un réseau de pores extrait du milieu poreux réel par imagerie micro-scanner. Ces deux résultats expérimentaux et numériques sont en principe directement comparables. Nous nous sommes particulièrement intéressés au cas de la dispersion d'un fluide mouillant en présence d'un autre fluide non mouillant à différents degrés de saturation, cas peu traité dans la littérature de manière classique, et pas du tout avec notre approche directe. Dans ce cadre, une étude approfondie de la dispersion en milieu saturé a préalablement été réalisée afin de servir de base de comparaison.

Les milieux poreux étudiés sont des empilements de grains homogènes (sable de Fontainebleau, grains anguleux de carbure de silicium) qui ont été utilisés par le passé pour de nombreuses études. Les empilements utilisés sont composés de grains de même taille, celle-ci a été variée dans des grandes proportions (de 8 à 110 μm). Ces empilements sont par ailleurs très poreux (40 %), ce qui facilite les mesures. Une technique de co-injection eau-huile fluorée a été utilisée pour faire varier la saturation.

La technique RMN de mesure des déplacements permet d'obtenir des distributions locales de vitesse des molécules d'eau durant un temps d'observation donné que l'on peut faire varier ($P(v, t_\Delta)$), ainsi que les moments des déplacements des molécules d'eau comme le déplacement moyen $\langle \xi \rangle$ ou la variance σ^2 . Ces mesures ont été mises en œuvre et validées dans deux dispositifs expérimentaux différents : un appareil RMN 2 MHz pouvant accueillir une petite cellule de 6 cm entièrement incluse dans la zone de mesure (embouts compris), et un imageur RMN 20 MHz pouvant accueillir

une grande cellule traversante de 30 *cm*. Le dernier montage expérimental présenté permet une mesure locale des déplacements des molécules d'eau dans une tranche d'épaisseur 8 *mm*. Ce montage permet de s'affranchir de l'influence des embouts d'injection, et de mesurer, en plus des déplacements longitudinaux, les déplacements transverses. La technique RMN permet par ailleurs de déterminer la porosité et la saturation, mais aussi, par un montage approprié développé au cours de la thèse, de mesurer des courbes de percées locales dans le cas du déplacement d'un traceur (le Deutérium) de manière identique aux techniques classiques.

En écoulements saturés, les régimes de dispersion pré-asymptotique et asymptotique ont été mis en évidence et leur transition a été quantifiée à l'aide de critères structuraux portant sur la taille de grains d_g et d'un critère universel portant sur l'évolution de $\sigma / \langle \xi \rangle$ en fonction de $\langle \xi \rangle / d_g$. Il a été montré que la transition entre ces deux régimes dépend du milieu poreux. L'étude du moment d'ordre deux σ^2 s'est révélée représenter un moyen fiable de déterminer le régime de dispersion pour un temps et une vitesse d'écoulement donnés. Si la dispersion transverse est gaussienne, la dispersion longitudinale asymptotique dans ces empilements homogènes s'est, elle, révélée anormale de type faiblement super-dispersive. La dispersion asymptotique longitudinale est dépendante du temps : $\sigma^2 \propto t_{\Delta}^{a=1.17}$. Il a été mis en évidence, de manière claire et incontestable, une dispersion anormale en milieu poreux homogène saturé bien connecté. Les mesures de traceur dans ces empilements présentent des courbes de percée locales quasi-gaussiennes déviant très peu du comportement asymptotique normal. La dispersion anormale mise en évidence par la RMN est trop faible pour pouvoir être clairement mise en évidence par les expériences de traceur. Ces mesures en écoulements saturés ont permis de déterminer que le type de grains optimal à utiliser (en fonction des caractéristiques de la cellule d'empilement, des caractéristiques RMN des empilements et des critères d'établissement du régime asymptotique de dispersion) pour étudier les écoulements insaturés sont les grains de SiC de 30 μm .

En écoulements insaturés, l'étude de la dispersion longitudinale et transverse, du point de vue RMN, a permis de montrer que la dispersion longitudinale est fortement anormale et dépendante de la saturation ($\sigma^2 \propto t_{\Delta}^{a=1.46}$ pour 42 % de saturation et $\sigma^2 \propto t_{\Delta}^{1.20}$ pour 67 %). Le régime de dispersion est super-dispersif et l'augmentation du caractère super-dispersif avec la diminution de la saturation change de régime à partir de 50 % de saturation. En dessous de cette saturation, le caractère super-dispersif augmente plus rapidement avec la diminution de la saturation que pour des saturations supérieures à 50 %. La dispersion transverse, par contre, est faiblement anormale et super-dispersive. La dispersion transverse est fortement dépendante de la saturation en eau pour des valeurs comprises entre 100 et 50 % ($1 \leq a \leq 1.17$), en dessous de 50 % la dépendance est faible (entre 50 et 42 %, $a \approx 1.17$). Les changements de régime d'évolution du comportement super-dispersif en dessous de la saturation 50 % sont dûs à un changement de la répartition des phases dans le milieu poreux. Les expériences de traceur sont venues corroborer les mesures RMN. Les courbes locales de percées obtenues sont fortement asymétriques et dépendantes à la saturation. De plus, l'exploitation des signaux RMN a permis de montrer que la dispersion anormale observée est mieux décrite par des lois stables de Lévy que par des lois Normales, et ce même dans le cas d'écoulements saturés.

L'approche numérique, basée sur une marche aléatoire dans un réseau de pores déterministe, extrait par imagerie micro-scanner, devait permettre de simuler de manière correcte les mesures RMN et de pouvoir extrapoler les résultats à des temps inatteignables de manière expérimentale. L'algorithme de marche aléatoire se base sur une approche Lagrangienne du mouvement des marcheurs dans le réseau de pores, ceux-ci se déplaçant par un enchainement de sauts advectifs et diffusifs gaussiens le long des canaux du réseau. La répartition des marcheurs dans le réseau est uniforme, tout comme la répartition des molécules d'eau dans l'espace poral lors de l'expérience RMN. Cet algorithme a, au cours de la thèse, été développé puis validé sur différents réseaux stochastiques comme des réseaux carrés 0° et 45° . La marche aléatoire dans le réseau déterministe extrait d'un empilement de sable de Fontainebleau a ensuite été étudiée de façon approfondie.

Les propagateurs et les deux premiers moments des déplacements des marcheurs ont été obtenus pour un écoulement dans un réseau de pores extrait de l'empilement des grains de sable de Fontainebleau, et comparés à des mesures par RMN équivalentes. Les propagateurs obtenus ont montré la présence d'un pic stagnant aux temps longs non observé par RMN. Cette stagnation anormale est observée dans toutes les simulations en réseau de pores similaires présentées dans la littérature mais aucune explication convaincante de ce phénomène n'est développée. De nombreux tests ont été effectués pour déterminer l'origine de ce pic et il a été mis en évidence que celui-ci était dû à la présence de canaux transverses non représentatifs. Il a été montré que la structure actuelle du réseau de pores de ce milieu poreux homogène bien connecté ne permettait pas de simuler parfaitement les propagateurs d'écoulements dans le milieu poreux. La dispersion observée dans le réseau est plus importante que dans le milieu poreux réel. Cette différence provient du phénomène de stagnation anormale, mais aussi certainement d'un transport accéléré de marcheurs par des canaux colinéaires au flux principal et du fait que la dispersion de Taylor n'est pas toujours établie dans les canaux. La structure actuelle du réseau de pores ne permet pas de reproduire les détails complexes du champ de vitesse local, détails essentiels dans un milieu poreux comme un empilement de grains. Nous pensons toutefois que ces limitations sont sujettes à caution dans le cas de milieux poreux faiblement connectés et hétérogènes. Nous avons tout de même pu mettre en évidence une convergence des comportements asymptotiques de la simulation et de l'expérience, l'évolution du second moment montre que la dispersion des marcheurs pour des temps longs est de type super-dispersive, tout comme la dispersion observée par RMN.

En conclusion, les résultats expérimentaux obtenus permettent de mieux comprendre la dispersion en écoulements saturés et l'effet des hétérogénéités de phases sur la dispersion en écoulements insaturés. Il semble que de très faibles hétérogénéités de structure puissent engendrer une dispersion anormale de type super-dispersion en milieu saturé. De plus, la diminution de la saturation et donc l'augmentation de l'hétérogénéité de répartition des phases, en écoulement insaturé, favorise fortement le comportement anormal super-dispersif. Les résultats et les méthodes expérimentales, obtenus et développées au cours de la thèse ouvrent de nombreuses et prometteuses perspectives.

2 Perspectives

Les résultats des simulations en réseau de pores nous conduisent à penser qu'il serait profitable d'effectuer les simulations de marche aléatoire directement dans l'image après avoir obtenu le champ de vitesse du fluide par résolution des équations de Stokes, à l'image de ce qui est réalisé par d'autres chercheurs (Blunt *et al.*, 2012). Toutefois, il serait certainement intéressant d'effectuer les marches aléatoires dans un réseau de pores extrait d'un milieu poreux consolidé hétérogène.

Pour ce qui est des mesures expérimentales, il nous semble important d'améliorer les mesures de traceur par RMN pour obtenir les coefficients de dispersion effective, ainsi que d'améliorer la description de la dépendance en espace de la dispersion. La relation entre la dépendance en temps de la dispersion observée par RMN et la dispersion en espace observée par traceur est un domaine qui reste à explorer. Les mesures locales de propagateurs et de moments doivent permettre d'étudier la dispersion lors de l'installation des phases en imbibition, ce qui n'a pu être fait faute de temps. Ceci permettra de comparer ces résultats avec ceux réalisés pour une insaturation mise en place en drainage. L'objectif de ces mesures est de mieux comprendre l'effet de la répartition des phases qui est différente en drainage et en imbibition. De plus il serait profitable de coupler ces mesures avec une observation par micro-scanner de la répartition des phases, afin notamment de comprendre le changement d'évolution du comportement de la dispersion pour des saturations inférieures à 50 %. Il est par ailleurs envisageable d'effectuer les mêmes séries de mesures de déplacement par RMN sur la phase non-mouillante. Ceci permettrait de décrire de manière complète la dispersion lors d'écoulements insaturés dans des milieux poreux homogènes. Une cellule d'écoulement avec confinement doit permettre d'effectuer l'ensemble de ces mesures sur des milieux poreux consolidés.

Le rôle des lois de Lévy dans la dispersion anormale est encore à approfondir, notamment du point de vue de l'évolution de la dispersion dans le temps. Un modèle couplant une approche MIM et des lois de Lévy est en cours d'étude dans le cadre de l'ANR TRAM et présente déjà des résultats intéressants qui devraient être publiés sous peu.

Les perspectives ouvertes par ce travail sont innombrables, les outils étant maintenant développés et validés, les mesures à effectuer devraient pouvoir être rapidement effectuées et assurer de nombreuses avancées et publications par le futur.

Bibliographie

- J-Y. ARNS, V. ROBINS, A. P. SHEPPARD, R. M. SOK, W. V. PINCZEWSKI et M. A. KNACKSTEDT : Effect of Network Topology on Relative Permeability. *Transport in Porous Media*, 55(1):21–46, 2004. ISSN 0169-3913.
- D.G. AVRAAM et A.C. PAYATAKES : Flow regime and relative permeabilities during steady-state two-phase flow in porous media. *Journal of Fluid Mechanics*, 293:207–236, 1995.
- J-C. ; BACRI, N. RAKOTOMALA et D. SALIN : Anomalous Dispersion and Finite-Size Effects in Hydrodynamic Dispersion. *Physics of Fluids A-Fluid Dynamics*, 2(5):674–680, 1990.
- O. BANTON, F. DELAY et G. POREL : A new time domain random walk method for solute transport in 1-D heterogeneous media. *Ground Water*, 35(6):1008–1013, 1997a.
- O. BANTON, G. POREL et F. DELAY : Coupling of the time domain random walk method with the finite fragment method to simulate flow and transport in 1-D heterogeneous media. *Journal of Hydrology*, 201(1-4):49–61, 1997b.
- F. BARBERON : *Etude par une technique RMN d'écoulements diphasiques air/eau a poches*. Thèse de doctorat, Université Paris 6, 2001.
- D. BAUER, S. YOUSSEF, M. HAN, S. BEKRI, E. ROSENBERG, M. FLEURY et O. VIZIKA : From computed microtomography images to resistivity index calculations of heterogeneous carbonates using a dual-porosity pore-network approach : Influence of percolation on the electrical transport properties. *Physical Review E*, 2011.
- S. BEKRI et P-M. ADLER : Dispersion in multiphase flow through porous media. *International Journal of Multiphase Flow*, 28(4):665–697, 2002.
- D. A. BENSON, S. W. WHEATCRAFT et M. M. MEERSCHAERT : Application of a fractional advection-dispersion equation. *Generic*, 2000.
- B. BERKOWITZ : Characterizing flow and transport in fractured geological media : A review. *Advances in Water Resources*, 25(8-12):861–884, 2002.
- B. BERKOWITZ, A. CORTIS, M. DENTZ et H. SCHER : Modeling non Fickian transport in geological formations as a continuous time random walk. *Reviews of Geophysics*, 44(2), 2006.
- B. BERKOWITZ, C. NAUMANN et L. SMITH : Mass transfer at fracture intersections an evaluation of mixing models. *Water Resources Research*, 30(6):1765–1773, 1994.
- B. BERKOWITZ et H. SCHER : Anomalous transport in random fracture networks. *Physical Review Letters*, 79(20):4038–4041, 1997.

- B. BERKOWITZ et H. SCHER : Theory of anomalous chemical transport in random fracture networks. *Physical Review e*, 57(5):5858–5869, 1998.
- B. BERKOWITZ et H. SCHER : The role of probabilistic approaches to transport theory in heterogeneous media. *Transport in Porous Media*, 42(1-2):241–263, 2001.
- B. BERKOWITZ et H. SCHER : Exploring the nature of non-Fickian transport in laboratory experiments. *Advances in Water Resources*, 32(5):750–755, mai 2009. ISSN 03091708.
- P. BERNE, P. BACHAUD et M. FLEURY : Diffusion Properties of Carbonated Caprocks from the Paris Basin. *Oil and Gas Science and Technology*, 2009.
- B. BIJELJIC et M. J. BLUNT : Pore-scale modeling and continuous time random walk analysis of dispersion in porous media. *Water Resources Research*, 42(1), 2006.
- B. BIJELJIC, A. H. MUGGERIDGE et M. J. BLUNT : Pore-scale modeling of longitudinal dispersion. *Water Resources Research*, 40(11), 2004.
- F. BLOCH : Nuclear Induction. *Physical Review*, 70(7-8):460–474, 1946.
- F. BLOCH, W.W. HANSEN et M. PACKARD : The nuclear induction experiment. *Phys. Rev.*, 70 (7-8):474–485, 1946.
- M. J. BLUNT, B. BIJELJIC, H. DONG, O. GHARBI, S. IGLAUER, P. MOSTAGHIMI, A. PALUSZNY et C. PENTLAND : Pore-scale imaging and modelling. *Advances in Water Resources*, avril 2012. ISSN 03091708.
- J. BODIN, G. POREL et F. DELAY : Simulation of solute transport in discrete fracture networks using the time domain random walk method. *Earth and Planetary Science Letter*, 208 (2003):297–304, 2003.
- J BODIN, G POREL, F DELAY, F UBERTOSI, S BERNARD et J R de DREUZY : Simulation and analysis of solute transport in 2D fracture/pipe networks : The SOLFRAC program. *Journal of Contaminant Hydrology*, 89(1-2):1–28, 2007.
- E. S. BOEK et M. VENTUROLI : Lattice-Boltzmann studies of fluid flow in porous media with realistic rock geometries. *Computers and Mathematics with Applications*, 59(7):2305–2314, avril 2010. ISSN 08981221.
- G. BOGERFORS : Hierarchical chamfer matching a parametric edge matching algorithm. *IEEE Transactions on pattern analysis and machine intelligence*, 10(6):849–865, 1988.
- S. BORAK, W. HÄRDLE et R. WERON : Stable Distributions. *SFB 649 Economic Risk*, 2005.
- G. E. P. BOX et M. E. MULLER : A note on the generation of random normal deviates. *Ann. Math. Stat.*, 21:455, 1950.
- H. BRENNER : The diffusion model of longitudinal mixing in beds of finite length. Numerical values, avril 1962. ISSN 00092509.
- W.E. BRIGHAM : Mixing equation in short laboratory cores. *Society of Petroleum Engineers Journal*, 1974.

- C. BRUDERER et Y. BERNABE : Network modeling of dispersion : Transition from Taylor dispersion in homogeneous networks to mechanical dispersion in very heterogeneous ones. *Water Resources Research*, 37(4):897–908, 2001.
- C. BRUDERER-WENG, P. COWIE, Y. BERNABE et I. MAIN : Relating flow channelling to tracer dispersion in heterogeneous networks. *Advances in Water Resources*, 27(8):843–855, 2004.
- P.T. CALLAGHAN : *Principles of Nuclear Magnetic Resonance Microscopy*. Oxford University Press, New York, NY, USA, oxford sci édition, 1991.
- H. Y. CARR et E. M. PURCELL : Effects of Diffusion on Free Precession in Nuclear Magnetic Resonance Experiments. *Phys. Rev.*, 94(3):630, 1954.
- J.M. CHAMBERS, C.L. MALLOWS et B.W. STUCK : A Method for Simulating Stable Random Variables. *Journal of the American Statistical Association*, 71(354):340–344, 1976.
- E. CHARLAIX, J-P. HULIN, C. LEROY et C. ZARCONI : Experimental-Study of Tracer Dispersion in Flow Through Two-Dimensional Networks of Etched Capillaries. *Journal of Physics D-Applied Physics*, 21(12):1727–1732, 1988.
- K.H. COATS et B.D. SMITH : Dead-End Pore Volume and Dispersion in Porous Media. *Society of Petroleum Engineers Journal*, 4(1), mars 1964. ISSN 0197-7520.
- S. L. CODD, B. MANZ, J. D. SEYMOUR et P. T. CALLAGHAN : Taylor dispersion and molecular displacements in Poiseuille flow. *Physical Review E*, 60:3491–3494, 1999.
- A CORTIS et B BERKOWITZ : Anomalous transport in "classical" soil and sand columns. *Soil Science Society of America Journal*, 68(5):1539–1548, 2004.
- R. M. COTTS, M. J. R. HOCH, T. SUN et J. T. MARKERT : Pulsed Field Gradient Stimulated Echo Methods for Improved NMR Diffusion Measurements in Heterogeneous Systems. *Journal of Magnetic Resonance*, 83(2):252–266, 1989.
- R. A. DAMION, K. J. PACKER, K. S. SORBIE et S. R. MCDUGALL : Pore-scale network modelling of flow propagators derived from pulsed magnetic field gradient spin echo NMR measurements in porous media. *Chemical Engineering Science*, 55(24):5981–5998, 2000. ISSN 0009-2509.
- H. DARCY : *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*. Victor Dalmont, Paris, 1856.
- P.G. DE GENNES : Hydrodynamic dispersion in unsaturated porous media. *Journal of Fluid Mechanics*, 136:189–200, 1983.
- F. DELAY, P. ACKERER et C. DANQUIGNY : Simulating Solute Transport in Porous or Fractured Formations Using Random Walk Particle Tracking. *Vadose Zone Journal*, 4(2):360, 2005. ISSN 1539-1663.
- M. DENTZ et D. M. TARTAKOVSKY : Delay mechanisms of non-Fickian transport in heterogeneous media. *Geophysical Research Letters*, 33(16), 2006.
- N. E. DORSEY : *Properties of Ordinary Water-substance*. Reinhold New York, 1940.
- T. C. FARRAR et E.D. BECKER : *Pulse and Fourier transform NMR : introduction to theory and methods*. Academic Press, San Diego, 1971.

- J. FEYEN, D. JACQUES, A. TIMMERMAN et J. VANDERBORGHT : Modelling Water Flow and Solute Transport in Heterogeneous Soils : A Review of Recent Approaches *. 1996(September 1996):231–256, 1998.
- M. FLEURY et N. AZANCHEEV : NMR diffusion in porous media and emulsions. Report, 2006.
- C. FOUARD, G. MALANDAIN, S. PROHASKA, M. WESTERHOFF, F. CASSOT, C. MAZEL, D. ASSELOT et J.P. MARC-VERGNES : Skeletonization by blocks for large 3-D datasets : application to the brain microcirculation. 2004.
- M. FOURAR, G. KONAN, C. FICHEN, E. ROSENBERG, P. EGERMANN et R. LENORMAND : Tracer Tests for various carbonate cores using X-Ray CT. *In International Symposium of the Society of Core Analysts*, Toronto, 2005.
- M. FOURAR et G. RADILLA : Non-Fickian Description of Tracer Transport Through Heterogeneous Porous Media. *Transport in Porous Media*, 80(3):561–579, avril 2009. ISSN 0169-3913.
- R. FREEMAN : *A Handbook of Nuclear Magnetic Resonance 2nd Edition*. Longman, 1997.
- J.J. FRIED et M.A. COMBARNOUS : Dispersion in Porous Media. *Advances Hydrosciences*, 7:169–282, 1971.
- G.A. GIST, A.H. THOMPSON et A.J. KATZ : Hydrodynamic dispersion and pore geometry in consolidated rock. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 2(9), 1990.
- R. GORENFLO et F. MAINARDI : Fractional Calculus : Integral and Differential equations of fractional order. *In Fractals and Fractional Calculus in continuum mechanics*, pages 223–276. Springer Verlag, Wien and New-York, 2000.
- P. GOUZE, T. Le BORGNE, R. LEPROVOST, G. LODS, T. POIDRAS et P. PEZARD : Non-Fickian dispersion in porous media : 1. Multiscale measurements using single-well injection withdrawal tracer tests. *Water Resources Research*, 44(6), 2008.
- V. GUILLON, D. BAUER, M. FLEURY et M-C. NELL : Rapport Bibliographique. 2010.
- E. GUYON, J-P. HULIN et L. PETIT : *Hydrodynamique Physique*. Savoirs ac édition, 2001.
- E. GUYON, J-P. NADAL et Y. POMEAU : *Disorder and mixing*, volume 152. Kluwer Academic Publishers, serie e : a édition, 1988.
- F. HOFFMAN, D. RONEN et Z. PEARL : Evaluation of flow characteristics of a sand column using magnetic resonance imaging. *Journal of Contaminant Hydrology*, 22(1-2):95–107, mars 1996. ISSN 01697722.
- M. HOLTZ, S. R. HEIL et A. SACCO : Temperature-dependent self-diffusion coefficients of water and six selected molecular liquids for calibration in accurate proton NMR PFG measurements. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2:4740–4742, 2000.
- M-H. HUI et M. J. BLUNT : Effects of Wettability on Three-Phase Flow in Porous Media. *The Journal of Physical Chemistry B*, 104(16):3833–3845, 2000.
- S. JAVELOT : *Réalisation d'un dispositif utilisant la RMN pour caractériser les écoulements multiphasiques*. Thèse de doctorat, Université de Paris VI, FRANCE, 1994.

- M.H. KALOS et P.A. WHITLOCK : Pseudorandom Numbers. *In Monte Carlo Methods*, pages 179–195. 2008.
- A. KHRAPITCHEV : Spatial dependence of dispersion. *Magnetic Resonance Imaging*, 21(3-4):373–375, mai 2003. ISSN 0730725X.
- R. KIMMICH : *NMR : Tomography, Diffusometry, Relaxometry*. Springer, Berlin, New-York, 1997.
- A. KLEMM, R. METZLER et R. KIMMICH : Diffusion on random-site percolation clusters : Theory and NMR microscopy experiments with model objects. *Physical Review E*, 65(2):1–11, janvier 2002. ISSN 1063-651X.
- D. L. KOCH et J. F. BRADY : Dispersion in Fixed-Beds. *Journal of Fluid Mechanics*, 154(MAY):399–427, 1985.
- D. L. KOCH, R. J. HILL et A. S. SANGANI : Brinkman screening and the covariance of the fluid velocity in fixed beds. *Physics of Fluids*, 10(12):3035, 1998. ISSN 10706631.
- N. KREPYSHEVA, L. Di PIETRO et M. C. NEEL : Fractional diffusion and reflective boundary condition. *Physica A-Statistical Mechanics and Its Applications*, 368(2):355–361, 2006.
- R. KUBO, M. TODA et N. HASHITSUME : *Statistical physics II*. Springer Verlag, 1991.
- C. LAROCHE et O. VIZIKA : Two-Phase Flow Properties Prediction from Small-Scale Data Using Pore-Network Modeling. *Transport in Porous Media*, 61(1):77–91, 2005. ISSN 0169-3913.
- L. LEBON, J. LEBLOND et J-P. HULIN : Experimental measurement of dispersion processes at short times using a pulsed field gradient NMR technique. *Physics of Fluids*, 9(3):481–490, 1997.
- L. LEBON, L. OGER, J. LEBLOND, J. P. HULIN, N. S. MARTYS et L. M. SCHWARTZ : Pulsed gradient NMR measurements and numerical simulation of flow velocity distribution in sphere packings. *Physics of Fluids*, 8(2):293, 1996. ISSN 10706631.
- R. LENORMAND : Use of fractional derivatives for fluid flow in heterogeneous media. 1992.
- R. LENORMAND, C. ZARCONI et A. SARR : Mechanisms of the displacement of one fluid by another in a network of capillary ducts. *Journal of Fluid Mechanics*, 135:337–353, 1983.
- M. LEVY et B. BERKOWITZ : Measurement and analysis of non-Fickian dispersion in heterogeneous porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, 64(3-4):203–226, 2003.
- G. M. LI : Tracer mixing at fracture intersections. *Environmental Geology*, 42(2-3):137–144, 2002.
- Y. LI, G. FARRHER et R. KIMMICH : Sub- and superdiffusive molecular displacement laws in disordered porous media probed by nuclear magnetic resonance. *Physical Review E*, 74(6):1–7, décembre 2006. ISSN 1539-3755.
- J-M. LOMBARD : *Influence de micro-hétérogénéités de mouillabilité sur les déplacements en milieu poreux*. Thèse de doctorat, Université Paris VI, 1992.
- C. LOWE : The super long-time decay of velocity fluctuations in a two-dimensional fluid. *Physica A : Statistical and Theoretical Physics*, 220(3-4):251–260, novembre 1995. ISSN 03784371.
- R. S. MAIER, D. M. KROLL, R. S. BERNARD, S. E. HOWINGTON, J. F. PETERS et H. T. DAVIS : Pore-scale simulation of dispersion. *Physics of Fluids*, 12(8):2065–2079, 2000.

- C. MANWART, U. AALTOSALMI, A. KOPONEN, R. HILFER et J. TIMONEN : Lattice-Boltzmann and finite-difference simulations for the permeability for three-dimensional porous media. *Phys. Rev. E*, 66(1):16702, 2002.
- B. MANZ, L. F. GLADDEN et P. B. WARREN : Flow and dispersion in porous media : Lattice-Boltzmann and NMR studies. *Aiche Journal*, 45(9):1845–1854, 1999.
- G. MARGOLIN et B. BERKOWITZ : Continuous time random walks revisited : first passage time and spatial distributions. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 334(1-2):46–66, 2004.
- M. MATSUMOTO et T. NISHIMURA : Mersenne twister : a 623-dimensionally equidistributed uniform pseudo-random number generator. *ACM Trans. Model. Comput. Simul.*, 8(1):3–30, 1998. ISSN 1049-3301.
- J. MAX : *Methodes et techniques de traitement du signal et applications aux mesures physiques tome 1 : Principes generaux et methodes classiques*. Masson, 1985.
- R. METZLER et J. KLAFTER : The random walks guide to anomalous diffusion : a fractional dynamics approach. *Physics Reports*, 339:1–77, 2000.
- J. MITCHELL, D. A. GRAF VON DER SCHULENBURG, D. J. HOLLAND, E. J. FORDHAM, M. L. JOHNS et L. F. GLADDEN : Determining NMR flow propagator moments in porous rocks without the influence of relaxation. *Journal of magnetic resonance (San Diego, Calif. : 1997)*, 193(2):218–25, août 2008. ISSN 1096-0856.
- V. V. MOURZENKO, F. YOUSEFIAN, B. KOLBAH, J-F. THOVERT et P-M. ADLER : Solute transport at fracture intersections. *Water Resources Research*, 38(1), 2002.
- M-C. NÉEL, A. ABDENNADHER et J. SOLOFONIAINA : A continuous variant for Grunwald-Letnikov fractional derivatives. *Physica A-Statistical Mechanics and Its Applications*, 387(12):2750–2760, 2008.
- M-C. NÉEL, A. ZOIA et M. JOELSON : Mass transport subject to time-dependent flow with nonuniform sorption in porous media. *Physical Review e*, 80(5), 2009.
- S. OSWALD, W. KINZELBACH, A. GREINER et G. BRIX : Observation of flow and transport processes in artificial porous media via magnetic resonance imaging in three dimensions. *Geoderma*, 80(3-4):417–429, novembre 1997. ISSN 00167061.
- K PACKER, S STAPF, J TESSIER et R DAMION : The characterisation of fluid transport in porous solids by means of pulsed magnetic field gradient NMR. *Magnetic Resonance Imaging*, 16(5-6):463–469, juin 1998. ISSN 0730725X.
- Y-J. PARK, J-R. de DREUZY, K-K. LEE et B. BERKOWITZ : Transport and intersection mixing in random fracture networks with power law length distributions. *Water Resources Research*, 37(10):2493–2501, 2001a.
- Y-J. PARK et K-K. LEE : Analytical solutions for solute transfer characteristics at continuous fracture junctions. *Water Resources Research*, 35(5):1531–1537, 1999.
- Y-J. PARK, K-K. LEE et B. BERKOWITZ : Effects of junction transfer characteristics on transport in fracture networks. *Water Resources Research*, 37(4):909–923, 2001b.

- G. PICARD et K. FREY : Method for modeling transport of particles in realistic porous networks : Application to the computation of NMR flow propagators. *Physical Review e*, 75(6), 2007.
- A. POHLMEIER, D. van DUSSCHOTEN, L. WEIHERMÜLLER, U. SCHURR et H. VEREECKEN : Imaging water fluxes in porous media by magnetic resonance imaging using D(2)O as a tracer. *Magnetic resonance imaging*, 27(2):285–92, février 2009. ISSN 0730-725X.
- J.L.M. POISEUILLE : Recherches expérimentales sur le mouvement des liquides dans les tubes de très petits diamètres, 1840a.
- J.L.M. POISEUILLE : Recherches expérimentales sur le mouvement des liquides dans les tubes de très petits diamètres, 1840b.
- W. H. PRESS, S. A. TEUKOLSKY, W. T. VETTERLING et B. P. FLANNERY : *Numerical Recipes in C : The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, 3rd édition, 2007.
- W. S. PRICE : Pulsed-field gradient nuclear magnetic resonance as a tool for studying translational diffusion : Part 1. Basic theory. *Concepts in Magnetic Resonance*, 9(5):299–336, 1997. ISSN 10437347.
- C. PUDNEY : Distance-Ordered Homotopic Thinning : A Skeletonization Algorithm for 3D Digital Images. *Computer Vision and Image Understanding*, 72(3):404–413, décembre 1998. ISSN 10773142.
- M. E. RHODES et M.J. BLUNT : An exact particle tracking algorithm for advective-dispersive transport in networks with complete mixing at nodes. *Water Resources Research*, 42(4), 2006.
- M. SAHIMI : Flow phenomena in rocks : from continuum models to fractals , percolation , cellular automata , and simulated annealing. *October*, 65(142), 1993.
- M. SAHIMI : *Flow and Transport in Porous Media and Fractured Rock. From Classical methods to modern approaches*. VCH, vch édition, 1995.
- M. SAHIMI, A. A. HEIBA, H. T. DAVIS et L. E. SCRIVEN : Dispersion in Flow Through Porous-Media .2. 2-Phase Flow. *Chemical Engineering Science*, 41(8):2123–2136, 1986a.
- M. SAHIMI, B. D. HUGHES, L. E. SCRIVEN et H. T. DAVIS : Dispersion in Flow Through Porous-Media .1. One-Phase Flow. *Chemical Engineering Science*, 41(8):2103–2122, 1986b.
- E. SCALAS, R. GORENFLO et F. MAINARDI : Uncoupled continuous-time random walks : solutions and limiting behaviour of the master equation. 2004.
- A.E. SCHEIDEGGER : An evaluation of the accuracy of the diffusivity equation for describing miscible displacement in porous media, 1959.
- H. SCHER, G. MARGOLIN et B. BERKOWITZ : Towards a unified framework for anomalous transport in heterogeneous media. *Chemical Physics*, 284(1-2):349–359, 2002.
- U. M. SCHEVEN : Stray field measurements of flow displacement distributions without pulsed field gradients. *Journal of Magnetic Resonance*, 174(2):338–342, 2005.
- U. M. SCHEVEN, R. HARRIS et M. L. JOHNS : Quasi-asymptotic Dispersion. *Magnetic Resonance in Porous Media*, 1081:18–21, 2008.

- U. M. SCHEVEN, J. G. SELAND et D. G. CORY : NMR propagator measurements on flow through a random pack of porous glass beads and how they are affected by dispersion, relaxation, and internal field inhomogeneities. *Physical Review e*, 69(2), 2004.
- U. M. SCHEVEN et P. N. SEN : Spatial and temporal coarse graining for dispersion in randomly packed spheres. *Physical Review Letters*, 89(25), 2002.
- K. S. SORBIE et P. J. CLIFFORD : The Inclusion of Molecular-Diffusion Effects in the Network Modeling of Hydrodynamic Dispersion in Porous-Media. *Chemical Engineering Science*, 46(10): 2525–2542, 1991.
- S. STAPF et S.-I. HAN : *NMR Imaging in Chemical Engineering*. Wiley-VCH, 2006.
- E.O. STEJSKAL et J.E. TANNER : Spin diffusion measurements : spin echoes in the presence of a time-dependent field gradient. *The journal of chemical physics*, 42(1):288–292, 1965.
- K. TALLAKSTAD, H. KNUDSEN, T. RAMSTAD, G. LØ VOLL, K. Må løY, R. TOUSSAINT et E. FLEKKØ Y : Steady-State Two-Phase Flow in Porous Media : Statistics and Transport Properties. *Physical Review Letters*, 102(7):100–103, février 2009. ISSN 0031-9007.
- G. TAYLOR : The Dispersion of Matter in Turbulent Flow through a Pipe. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 223(1155):446–468, 1954.
- J. J. TESSIER, K. J. PACKER, J.-F. THOVERT et P. M. ADLER : NMR measurements and numerical simulation of fluid transport in porous solids. *AIChE Journal*, 43(7):1653–1661, juillet 1997. ISSN 0001-1541.
- H. C. TORREY : Bloch Equations with Diffusion Terms. *Phys. Rev.*, 104(3):563–565, 1956.
- C. VAN DEN BROECK : A stochastic description of longitudinal dispersion in uniaxial flows.pdf. *Physica*, pages 343–352, 1982.
- S. YOUSSEF, E. ROSENBERG, N. GLAND, S. BEKRI et O. VIZIKA : Quantitative 3D characterisation of the pore space of real rocks : improved $\mu - CT$ resolution and pore extraction methodology. *SCA*, 17:1–13, 2007.
- X. ZHANG et M. LIU : Persistence of anomalous dispersion in uniform porous media demonstrated by pore-scale simulations. *Water Resources Research*, 43(7):1–11, juillet 2007. ISSN 0043-1397.
- W. S. ZHAO, G. PICARD, G. LEU et P. M. SINGER : Characterization of Single-Phase Flow Through Carbonate Rocks : Quantitative Comparison of NMR Flow Propagator Measurements with a Realistic Pore Network Model. *Transport in Porous Media*, 81(2):305–315, 2010.

Annexes

Annexe A

Spécification technique des huiles fluorinert

3M™ Fluorinert™ Liquids Typical Properties

(Not for Specification Purposes)

All values determined at 25°C unless otherwise specified

Properties	Fluorinert Liquid									
	FC-87	FC-72	FC-84	FC-77	FC-3255	FC-3283	FC-40	FC-43	FC-70	FC-5312
Average Molecular Weight	290	340	388	415	438	21	650	670	820	820
Typical Boiling Point, °C	30	56	80	97	103	128	165	175	215	215
Pour Point, °C	-101	-90	-95	-95	-30	-50	-50	-40	-25	-25
Density, g/cm ³	1.63	1.68	1.73	1.78	1.77	1.82	1.87	1.88	1.94	1.93
Density, -54°C g/cm ³	1.84	1.90	1.93	1.97	■	■	■	■	■	■
Kinematic Viscosity, cs	0.4	0.4	0.55	0.8	0.71	0.75	2.2	2.8	14.0	12.6
Kinematic Viscosity, -54°C cs	1.1	1.9	4.0	6.9	■	■	■	■	■	■
Vapor Pressure, torr	610	232	79	42	31	11	3	1.3	<0.1	<0.1
Specific Heat, cal/g · °C	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
Heat of Vaporization @ Boiling Point, cal/g	24	22	19	20	22	18	17	17	16	16
Thermal Conductivity, watts/(cm ²) (°C/cm)	0.00056	0.00057	0.00060*	0.00063*	0.00064	0.00066*	0.00066*	0.00066	0.00070*	0.00070*
Coefficient of Expansion cm ³ /(cm ³)(°C)	0.0016	0.0016	0.0015	0.0014	0.0014	0.0013	0.0012	0.0012	0.0010	0.0010
Surface Tension, dynes/cm	9.5	12	13	15	15	16	16	16	18	18
Refractive Index	1.238	1.251	1.261	1.280	1.270	1.281	1.290	1.291	1.303	1.303
Dielectric Strength, KV(2.54 mm gap)	42	38	42	40	40	43	46	42	40	40
Dielectric Constant, (1KHz)	1.72	1.76	1.81*	1.86	1.90	1.89	1.89	1.90	1.96	1.96
Dissipation Factor, (1KHz)	<0.0005	<0.0003	<0.0003*	<0.0003	N/A	<0.0003*	<0.0003	<0.0001	<0.0001	<0.0001
Volume Resistivity, ohm-cm	5.6x10 ⁹	1.0x10 ¹⁰	1.0x10 ¹⁰	1.9x10 ¹⁰	N/A	5.0x10 ¹¹ *	4.0x10 ¹¹	3.4x10 ¹¹	2.3x10 ¹¹	2.3x10 ¹¹
Solubility of Water ppm(wt.)	7	10	11*	13	11	7*	7	7	8	8
Solubility of Air ml gas/100 ml liquid	54	48	43*	41	N/A	30*	27	26	22	22

* Estimated values ■ Not measured due to relative proximity to pour point N/A—not available

Annexe B

Réglages des paramètres de la sélection de tranche

Seul le réglage des paramètres de la sélection de tranche (amplitude du pulse long radio-fréquence et des gradients) est abordé dans ce document. Les différentes durées sont prédéfinies : la durée du pulse radio-fréquence est fixée à 500 *ms*, la durée du gradient de sélection est de 700 *ms* et la durée du gradient de rephasage est de 250 *ms*. La forme du pulse long a été choisie en fonction du profil obtenu par sélection de tranche, la forme choisie est un sinus cardinal à sept lobes répartis en 128 points sur 500 *ms* (soit $\sin(t)/t$ avec t allant de -4π à 4π).

B.1 Amplitude du pulse radio-fréquence de sélection de tranche

La vérification du basculement de l'aimantation lors d'un pulse radiofréquence de sélection de tranche se fait à l'aide d'une séquence FID Free Induction Decay, qui est constituée d'un unique pulse radio-fréquence $\pi/2$ long suivi d'une période d'acquisition.

L'objectif est d'obtenir l'amplitude optimale du pulse radio-fréquence pour que le basculement de l'aimantation globale $\vec{M}$ soit de $\pi/2$. Pour ce faire, l'intensité du pulse de sélection de tranche est variée de 0 à 100% de la puissance de l'amplificateur radio-fréquence. Les amplitudes maximales du signal observé correspondent au basculement à 90° de l'aimantation, alors que les minimums correspondent à des basculements de 180°. Le basculement de l'aimantation doit être le plus précis possible pour éviter les échos parasites.

On retient pour valeur de l'amplitude du pulse la valeur associée au premier pic. Dans le cas de la tranche qui sera utilisée pour les expériences RMN (Confer paragraphe 3.3), l'amplitude du pulse radio-fréquence long est de 12% de la puissance maximale de l'amplificateur radio-fréquence.

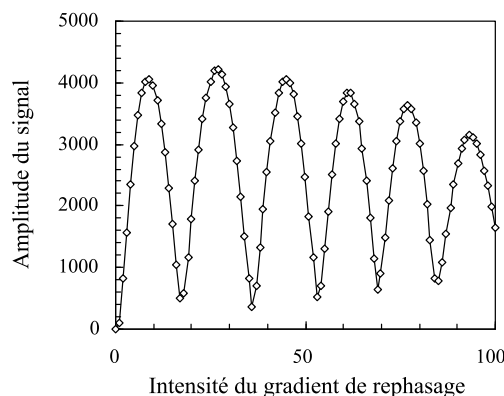


FIGURE B.1 – Réglage de l'amplitude du pulse radio-fréquence de sélection de tranche. Ce graphique représente l'amplitude de l'écho observé en fonction de la valeur de la puissance $\vec{B}_1$. Chaque pic correspond à un basculement $\pi/2$, et chaque creux à un basculement π de l'aimantation.

B.2 Gradient de sélection

Le gradient de sélection est ajusté "manuellement" pour obtenir la largeur de tranche voulue. Pour ce faire, on utilise une séquence permettant de visualiser un profil de la zone de l'échantillon qui est excitée. La durée du gradient de sélection a été fixée à 700 *ms*. Ce qui, pour la tranche présentée au paragraphe 3.3, donne une force de gradient de 4.8 $G\ cm^{-1}$.

B.3 Gradient de rephasage

La combinaison du basculement de l'aimantation liée au pulse long et de la dispersion de l'aimantation due au gradient nécessite de refocaliser l'aimantation selon une direction transverse, ce qui est effectué à l'aide du gradient de rephasage (cf. paragraphe 2.3.2).

Le réglage de ce gradient de rephasage se fait à l'aide de la séquence FID transformée présentée Figure 3.2 Paragraphe 3.1.2.

Le mécanisme est le même que pour le réglage de l'intensité du pulse radio-fréquence de sélection de tranche. On fait varier le gradient de rephasage et on cherche à obtenir un signal à l'intensité maximale.

La durée du gradient de raphasage a été fixée à 250 *ms*. Ce qui, pour la tranche présentée au paragraphe 3.3, donne une force de gradient de $-5.6\ G\ cm^{-1}$.

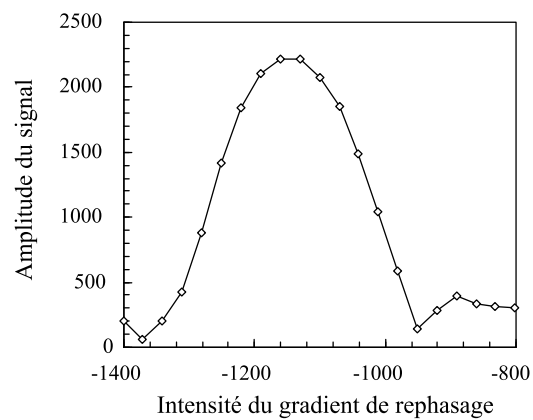


FIGURE B.2 – Réglage de l'amplitude du gradient de rephasage.
Le rephasage optimal est obtenu pour l'amplitude du gradient correspondant à un écho maximal.

Annexe C

Transformée de Fourier du signal RMN

Initialement, la transformée de Fourier inverse permettant d'obtenir le propagateur à partir du signal RMN était réalisée à partir d'un algorithme de Transformée de Fourier Rapide (FFT).

Les algorithmes de Transformée de Fourier Rapide (FFT) reposent sur l'expression discrète de la transformée de Fourier. Si l'on considère un signal $S(q)$ échantillonné, dans le domaine temporel, par N points régulièrement espacés de δ . La transformée de Fourier discrète de $S(q)$, associée aux N points du domaine temporel, N point du domaine fréquentiel (Freeman, 1997) :

$$P(r) = \frac{1}{2\pi} \sum_{q=q_{min}}^{q_{max}} S(q) \exp\left(\frac{2\pi i q r}{N}\right) dq \quad (C.1)$$

Un échantillonnage du signal temporel en δ équivaut à un échantillonnage du signal fréquentiel en $\frac{1}{N\delta}$.

Le signal est complété artificiellement par la méthode du "zero-filling" qui permet d'améliorer les résultats de la transformée de Fourier discrète. Cette méthode consiste à ajouter $n - 1$ blocs de N zéros au signal. Le signal est alors composé de nN valeurs. La transformée de Fourier du signal devient :

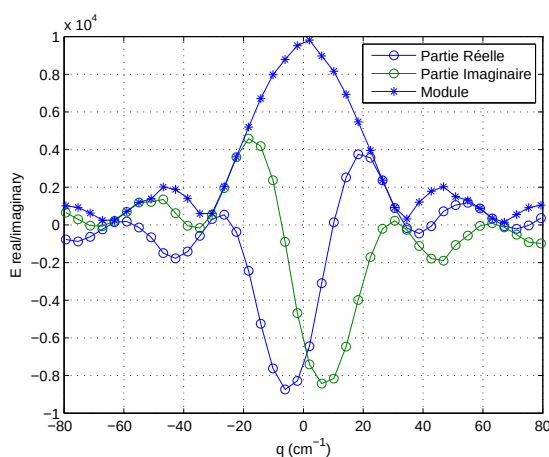
$$P(r) = \frac{1}{2\pi} \sum_{q=q_{min}}^{q_{max}} S(q) \exp\left(\frac{2\pi i q r}{nN}\right) dq \quad (C.2)$$

Le signal fréquentiel est alors échantillonné en $\frac{1}{nN\delta}$. Si $n \rightarrow \infty$, l'équation C.2 montre que la transformée discrète tend vers la transformée de Fourier continue. Freeman (1997) explique que le "zero-filling" permet, jusqu'à un certain point, de retrouver l'information perdue par l'acquisition incomplète du signal. A partir du moment où la période temporelle a été doublée, le zero-filling ne permet plus de retrouver de l'information perdue mais améliore la résolution numérique de la transformée de Fourier. Le programme de traitement des mesures de propagateur (Paragraphe D.2) permet de choisir le zero-filling à effectuer sur les propagateurs. L'action du zero-filling sur le propagateur d'un signal acquis partiellement est montrée Figure C.1. La comparaison des propagateurs avec et sans zero-filling montre que le zero-filling améliore significativement la résolution du propagateur et

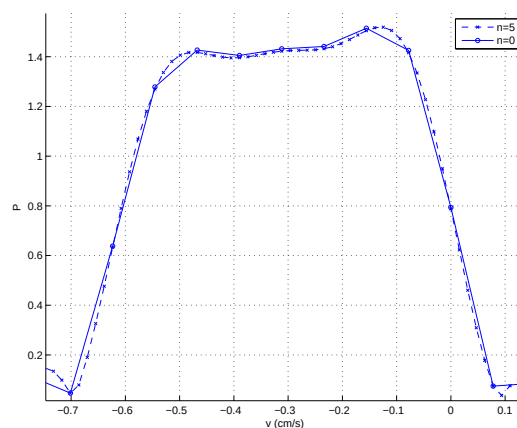
permet de retrouver une partie des informations perdues par l'acquisition incomplète du signal.

Par la suite, l'imageur 20 MHz a permis de s'intéresser au signal RMN et notamment à l'extraction des moments, nécessitant une bonne description du signal pour les faibles valeurs de gradient. La condition sur l'échantillonnage à pas constant du signal, nécessaire au fonctionnement de l'algorithme de FFT, est devenue problématique. Un algorithme permettant d'échantillonner le signal sans se soucier de la condition de pas constants a été mis en place. L'algorithme de Transformée de Fourier Directe (DFT) calcule la transformée de Fourier directement à l'aide de la méthode des trapèzes. Cet algorithme a été utilisé pour exploiter toutes les données obtenues sur l'imageur 20 MHz .

Lorsque le signal est incomplètement acquis, des oscillations, dites oscillations de Gibbs, peuvent apparaître. C'est ce que l'on peut remarquer sur le propagateur Figure C.1b. L'apodisation du signal RMN permet de tenir compte de ces oscillations et de les supprimer. L'apodisation est une méthode classique de traitement du signal décrite de manière détaillée dans l'ouvrage de Max (1985).



(a) Signal RMN



(b) Propagateur avec ($n=5$) et sans zero-filling ($n=0$)

FIGURE C.1 – Action du zero-filling sur le propagateur d'un signal acquis partiellement (écoulement monophasique de débit 500 ml.h^{-1} dans un cylindre de 7 mm de diamètre). Le zero-filling améliore significativement la résolution du propagateur et permet de retrouver une partie des informations perdues par l'acquisition incomplète du signal.

Annexe D

Présentation des logiciels de traitement des données RMN

Deux logiciels de traitement des mesures RMN sont utilisés ; l'un pour l'obtention du coefficient de diffusion moléculaire ou de dispersion, l'autre pour l'obtention des propagateurs. Ces logiciels sont des programmes Matlab interfacés.

D.1 Programme d'Analyse des Echos de Diffusion (AED)

Ce programme calcule le coefficient de dispersion associé à un propagateur gaussien et plus particulièrement le coefficient de diffusion moléculaire. Ce programme reconnaît différentes séquences utilisées dans le laboratoire, traite les données RMN, exprime la variation de $\ln(E(q, t_\Delta))$ en fonction d'un facteur b qui est fonction de la force des gradients g . L'utilisateur peut choisir différentes façons de traiter les échos, le nombre de point à traiter ou encore supprimer des échos. Le programme ajuste les échos RMN à l'aide de fonctions splines, ce qui permet de réduire l'influence du bruit. Il permet de calculer le second moment σ qui est directement relié, dans le cas d'une dispersion gaussienne, au coefficient de dispersion effectif D_{eff} par la relation $\sigma = \sqrt{2D_{eff}t_\Delta}$. Le second moment est calculé à partir de l'ajustement de $\ln(E(q, t_\Delta)) = b$, avec $b = \gamma^2 \delta^2 g^2 t_\Delta = q^2 t_\Delta$.

Son interface graphique (Figure D.1) rend l'utilisation simple et rapide.

D.2 Programme de traitement des mesures de propagateur (PROPA)

Le programme PROPA traite les échos RMN, calcule $E(q, t_\Delta)$ la variation de l'amplitude des échos en fonction de la force de gradient utilisée, le propagateur en effectuant la transformée de Fourier de $E(q, t_\Delta)$, et les trois premiers moments. Différentes options de post-traitement du propagateur sont disponibles, comme l'apodisation par différentes fonctions ou la réduction du bruit. Ce

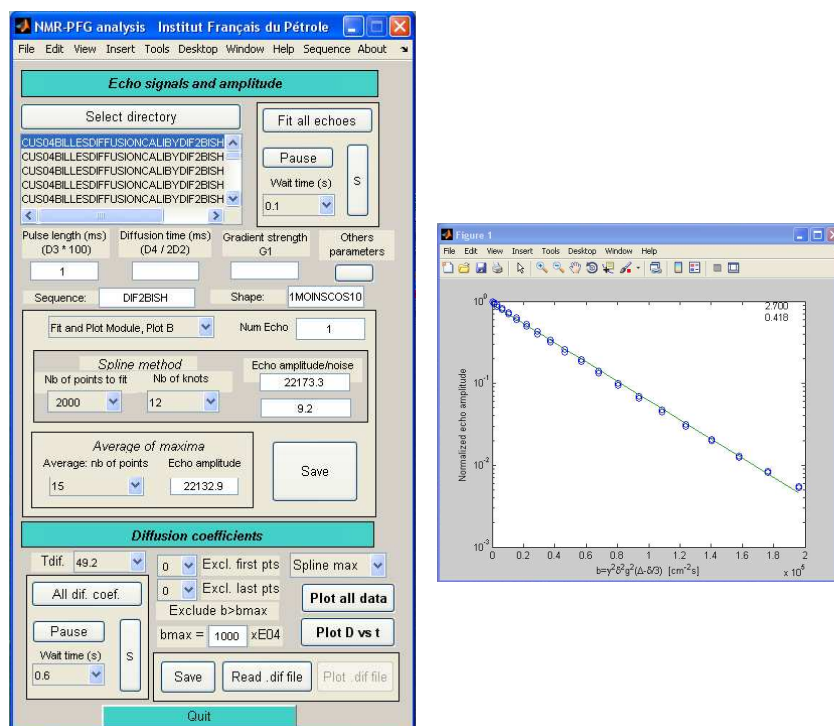


FIGURE D.1 – Interface graphique du programme d'Analyse des Echos de Diffusion.

programme permet aussi de choisir la valeur de l'écho à traiter. Durant certaines expériences, la position du maximum de l'écho peut changer, dans ce cas le programme permet de choisir de traiter le maximum de l'écho ou la valeur de l'écho à temps fixe.

L'interface graphique de ce programme est présentée Figure D.2.

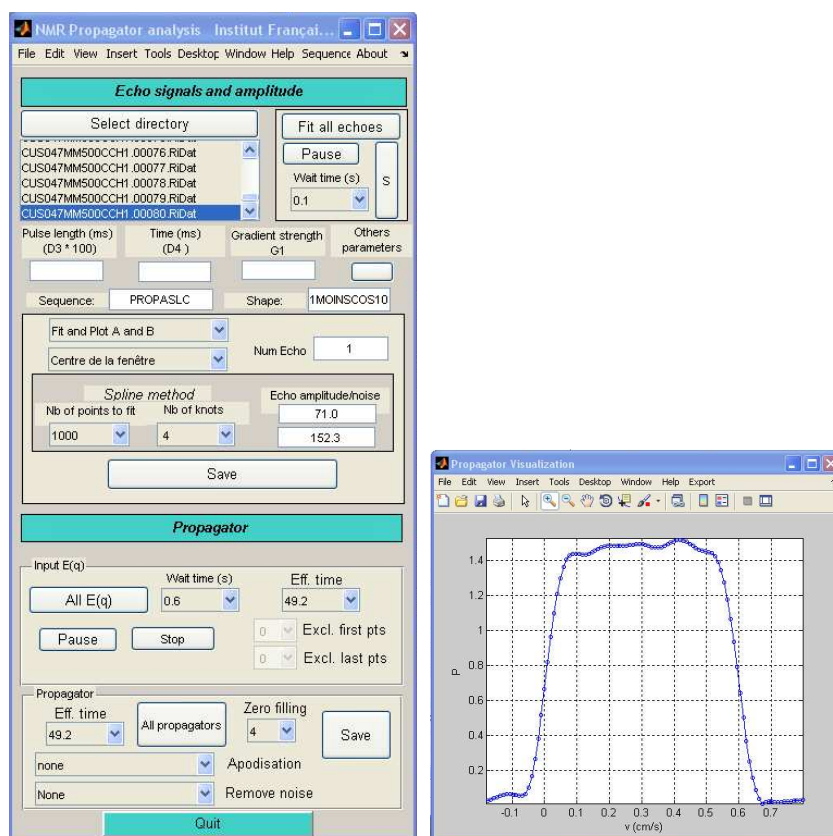


FIGURE D.2 – Interface graphique du programme de traitement des mesures des propagateurs.

Annexe E

Méthode d'extraction du réseau de pore à partir d'images micro-scanner

L'imagerie micro-scanner permet d'obtenir une image 3D de l'échantillon étudié. De cette image est extrait le réseau de pore, constitué de canaux cylindriques et de nœuds sphériques. Mais, pour faciliter la mise en place des phases en écoulement diphasique, les canaux du réseau de pores seront mis sous forme triangulaire et les nœuds sous forme cubique (paragraphe F.2). La figure E.1 montre l'étape initiale de l'extraction du réseau de pores (l'image 3D avant segmentation : figure E.1a) et l'étape finale (le réseau de pores : figure E.1b) de la méthode d'extraction du réseau de pores à partir d'images micro-scanner. Cette section décrit de manière succincte la méthode d'extraction du réseau de pores qui se décompose en cinq étapes : l'acquisition de l'image micro-scanner de l'échantillon de milieu poreux, la segmentation de cette image, l'extraction du squelette de l'espace poreux, le partitionnement de l'espace poreux et enfin la détermination des paramètres géométriques du réseau de pores et l'instauration de la périodicité transverse du réseau.

E.1 Acquisition de l'image micro-scanner du milieu poreux

Le milieu poreux est imagé à l'aide d'un micro-tomographe à rayon X de marque PHŒNIX X-RAY qui réalise des images d'une résolution maximale de $3\ \mu m$ (taille des voxels (c-a-d pixels) des images prises par le micro-scanner). La génération de l'image 3D débute par l'acquisition de séries de projections 2D. L'échantillon est tourné d'un incrément de moins d'un degré pour chaque nouvelle série de projections. L'acquisition est terminée lorsque l'échantillon a effectué une révolution complète. Chaque voxel est caractérisé par un niveau (une nuance) de gris spécifique dépendant de la densité moyenne de l'échantillon à cet endroit. Les projections 2D permettent de reconstruire une image 3D de l'échantillon telle que celle présentée en figure E.1a.

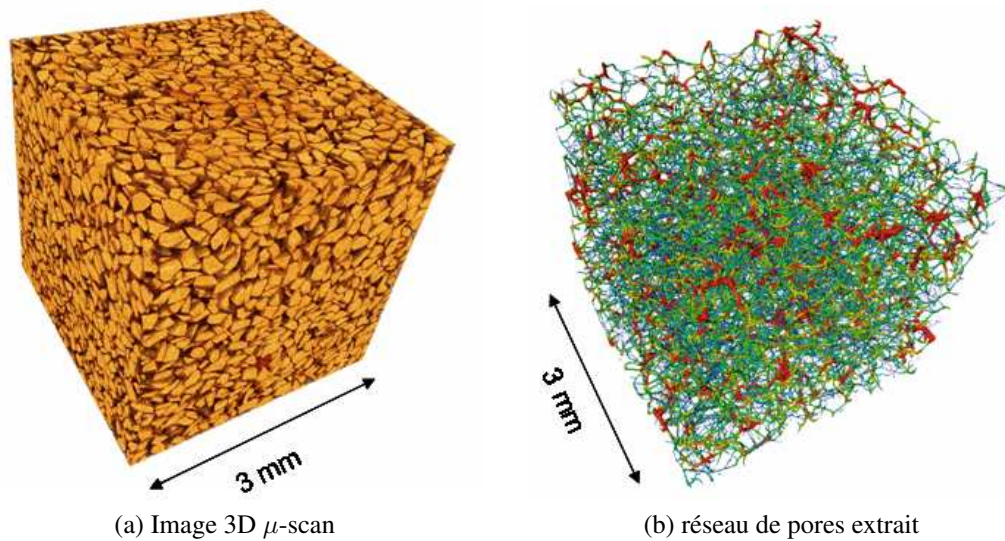


FIGURE E.1 – Image micro-scanner et réseau de pores extrait d'un empilement de grains de carbure de silicium.

E.2 Segmentation de l'image

L'extraction de l'espace poreux se base sur une binarisation de l'image brute (à niveau de gris, figure E.2 (a)). Les voxels sont classés en deux catégories : espace poreux, solide. Cette segmentation de l'image brute utilise l'étude de la distribution des niveaux de gris des voxels (histogramme de la figure E.2). La distribution des niveaux de gris présente deux pics plus ou moins distincts qui correspondent respectivement à l'espace poreux et au solide. Le seuil G_0 (minimum entre les deux pics) séparant ces deux pics permet de distinguer l'espace poreux du solide et donc de segmenter l'image (figure E.2 (b)).

Une fois la segmentation effectuée, un filtre améliorant la continuité des interfaces vide-solide est appliqué sur l'image. L'espace poreux non connecté ainsi que les ensembles de voxels solides (de taille inférieure à 2000 voxels pour un échantillon décrit par 500^3 voxels) isolés dans l'espace poreux sont supprimés de l'espace poreux extrait (figure E.2 (c)).

E.3 Extraction du squelette de l'espace poreux

Le squelette du réseau est extrait de l'espace poreux à l'aide d'une méthode dite "distance ordered homotopic thinning" (Fouard *et al.*, 2004, Pudney, 1998). La distance minimale à l'interface vide-solide en chaque point de l'espace poreux est calculé par une méthode de Chamfer (cette méthode minimise la distance entre le voxel considéré et l'interface vide-solide) (Bogerfors, 1988). Le résultat est exprimé sous la forme d'une carte de distance codée en niveau de gris. Cette carte de distance sert ensuite à affecter à chaque voxel de l'espace poreux sa distance minimum à l'interface vide-solide. L'image de l'espace poreux superposé à la carte de distance permet de constituer le squelette du réseau

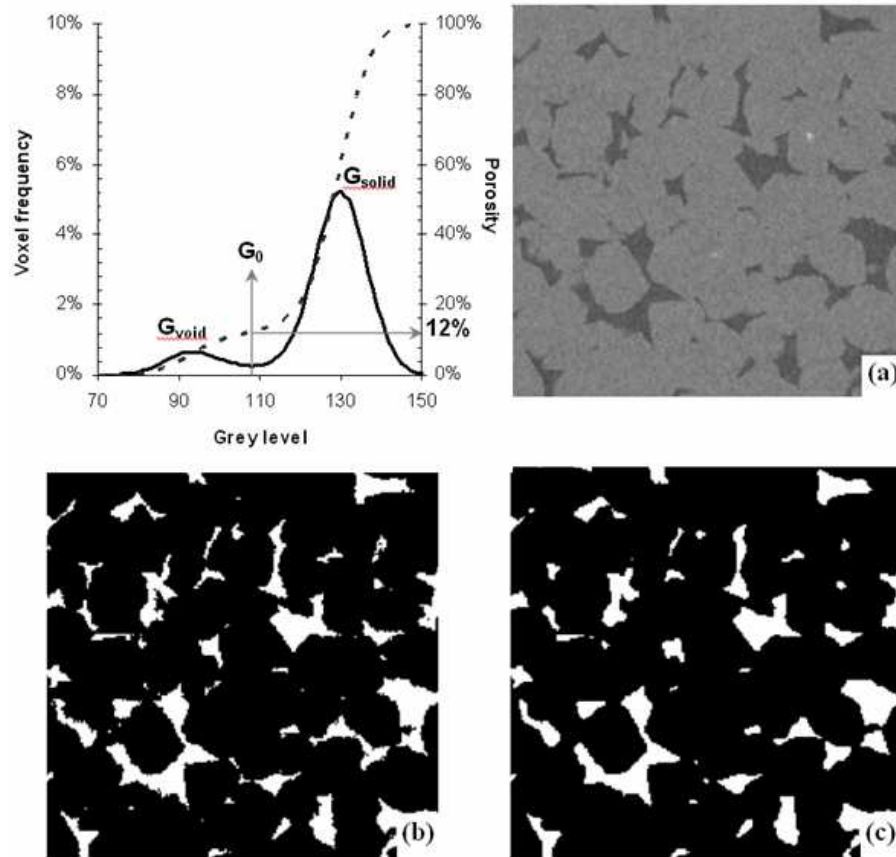


FIGURE E.2 – Histogramme des niveaux de gris d'un grès de Fontainebleau et seuil utilisé pour la segmentation de l'image 3D. Image brute (a), image segmentée à l'aide du seuil G_0 (b), et image finale après application d'un filtre et suppression de l'espace poreux non connecté, ainsi que des voxels solides isolés dans l'espace poreux (c) (Youssef *et al.*, 2007).

de pores en utilisant un algorithme d'amincissement : pour chaque section de l'espace poreux (d'un voxel d'épaisseur), les voxels les plus proches de l'interface vide-solide sont successivement retirés jusqu'à ce qu'il ne reste plus que le voxel le plus loin de l'interface vide-solide. L'ensemble de ces voxels pour toutes les sections sont reliés et forment des lignes d'un voxel de large (figure E.3 (a)).

E.4 Partitionnement de l'espace poreux

La dernière étape de la construction du réseau de pores est de partitionner l'espace poreux en pores distincts. Cette étape utilise le squelette pour trouver les restrictions de l'espace poreux. L'algorithme de partitionnement du squelette suit quatre étapes qui correspondent aux étapes (a) à (d) de la figure E.3. La première étape repère les lignes des canaux et les ensembles de lignes associées aux pores (figure E.3 (a) et (b)) ; ces lignes sont détectées en comparant leurs longueurs avec le diamètre de la sphère inscrite à la section la plus petite le long des lignes, si la longueur est inférieure au diamètre, la ligne appartient à un pore. La seconde étape repère les restrictions de l'espace poreux le long des lignes correspondants à des canaux, ainsi que les seuils associés (figure E.3 (c)). Le diamètre minimal

le long d'une ligne correspondant à un canal repère la position du seuil et son diamètre. La troisième étape repère les groupes de lignes correspondants aux mêmes pores. Puis, à chaque pore, est associé un niveau de gris spécifique (figure E.3 (d)). La dernière étape sépare définitivement les pores les uns des autres, elle finalise le partitionnement du squelette en pores liés par des canaux.

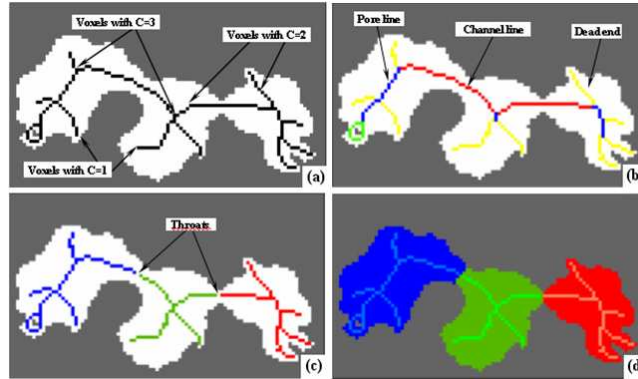


FIGURE E.3 – Les trois premières étapes du partitionnement du squelette. L'algorithme de partitionnement du squelette débute par quatre étapes qui correspondent aux étapes (a) à (d). La première étape repère les lignes des canaux et les ensembles de lignes associées aux pores ((a) et (b)). La seconde étape repère les restrictions de l'espace poreux et les seuils associées (c). A chaque voxel composant la ligne décrivant le canal, on associe une sphère centrée sur ce voxel et inscrite dans la section de l'espace poreux à ce voxel. La sphère de rayon minimal le long du canal repère la position du seuil. La troisième étape repère les groupes de lignes correspondants au même pore et à chaque pore est associé un niveau de gris spécifique (d).

La description du réseau de pores n'est, à cette étape, pas encore terminée puisqu'il manque un certain nombre de paramètres.

E.5 Extraction des paramètres géométriques du réseau de pores

Les paramètres décrivant le réseau de pores final constitué de canaux triangulaires et de pores cubiques sont extraits de l'espace poreux partitionné. Ces paramètres sont le centre des pores (ou nœuds), le diamètre des pores, le nombre de connections de chaque pore, le rayon des seuils de pores et enfin la longueur hydraulique des canaux. Si le réseau de pores est constitué de formes géométriques angulaires qui permettent l'établissement de films lors d'un écoulement insaturé, la définition des différents volumes et longueurs se fait en considérant les cercles ou sphères inscrites dans les triangles et les cubes.

Paramètres des pores Les nœuds du réseau, ou centres des pores sont situés au barycentre des pores et n'ont pas de volume. Le volume des pores est mesuré à partir de la partition du milieu poreux (c'est le volume de l'ensemble des voxels appartenant au pore). Le diamètre des pores est défini comme le diamètre de la sphère de volume équivalent. Le nombre de connections d'un pore est le nombre de pores qui lui sont connectés.

Paramètres des seuils de pores Comme décrit dans la section précédente, les seuils de pores correspondent à la restriction de l'espace poreux entre deux pores. Ils sont définis par leur aire A_{seuil} , leur périmètre P_{seuil} et leur rayon minimal $r_{min_{seuil}}$, que l'on peut observer figure E.4. Le rayon minimal des seuils $r_{min_{seuil}}$ correspond au rayon de la plus grande sphère inscrite dans la section du seuil repérée lors de la partition du squelette (figure E.4).

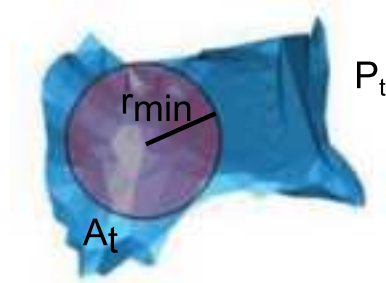


FIGURE E.4 – Volume d'un seuil de pore : aire A_{seuil} , périmètre P_{seuil} et rayon minimal $r_{min_{seuil}}$.

Le rayon hydraulique du seuil $r_{h_{seuil}}$ est défini par :

$$r_{h_{seuil}} = \frac{2A_{seuil}}{P_{seuil}} \quad (E.1)$$

Le rayon hydraulique décrit la surface réelle du seuil vu par le fluide, contrairement au rayon minimal qui correspond au rayon de la plus grande sphère inscrite dans la section du seuil. Dans le cas de l'étude des écoulements dans le réseau de pore, le rayon hydraulique représente mieux la géométrie du seuil que le rayon minimal.

Paramètres des canaux Les canaux du réseau de pores ont une section uniforme sur leur longueur, ce qui suppose une diminution de pression linéaire dans le canal. Dans le milieu poreux, la section du canal varie sur sa longueur, la diminution de la pression n'est donc pas linéaire et n'a pas lieu sur toute la longueur internodale. Il est donc nécessaire de calculer une longueur de canal équivalente que l'on appellera longueur hydraulique L_h prenant en compte l'impact des variations de diamètre du canal sur sa conductance. Lorsque cette longueur équivalente est calculé pour un canal équivalent cylindrique de rayon $r_{min_{seuil}}$, la longueur hydraulique équivalente est alors appelée $L_{h_{min}}$ et est calculée à partir d'un modèle représentant le canal comme une série de cylindres de longueur constante l_i (un voxel) et de rayon r_{min_i} et de conductance g_i variables (figure E.5).

La conductance du fluide dans un cylindre élémentaire est donnée par la loi de Poiseuille :

$$g_i = \frac{\pi r_{min_i}^4}{8\mu l_i} \quad (E.2)$$

où, μ est la viscosité dynamique du fluide considéré.

La conductance $g_{eq_{milieu\ poreux}}$ du canal représenté par l'ensemble de la série de cylindres est donnée par :

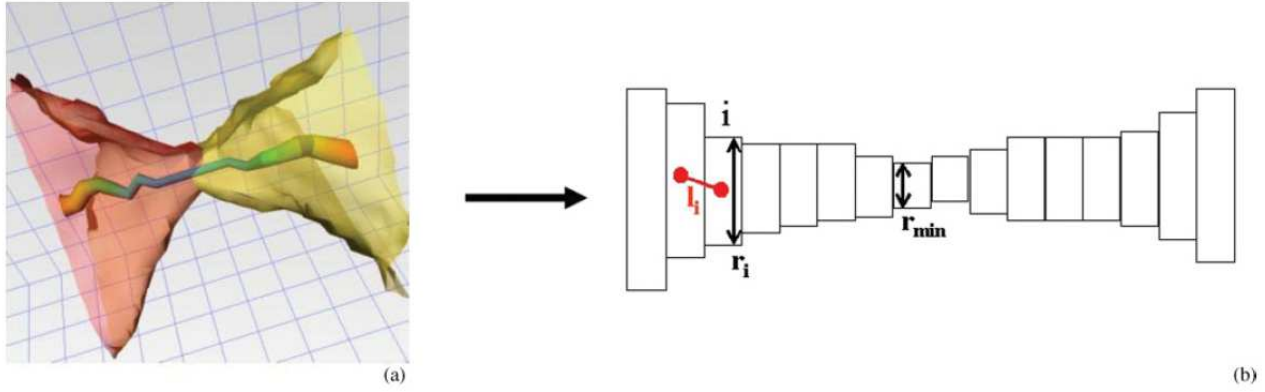


FIGURE E.5 – Représentation schématique du canal connectant deux pores (Bauer *et al.*, 2011). (a) La configuration de l'espace poreux obtenue par micro-scanner. (b) la représentation du canal sous forme de cylindres de rayons r_{min_i} et de conductances g_i différents. Ce modèle permet de calculer la longueur hydraulique équivalente (équation E.9). La largeur de chaque cylindre est constante et a la dimension d'un voxel, la distance entre deux centres de section est notée l_i .

$$\frac{1}{g_{eq_{milieu\ poreux}}} = \sum \frac{1}{g_i} = \frac{8\mu}{\pi} \sum_{i=1}^n \frac{l_i}{r_{min_i}^4} \quad (E.3)$$

où l_i est la distance entre les voxels centraux des sections moyennes (cf. figure E.5).

La conductance équivalente $g_{eq_{canal}}$ du cylindre de rayon r_{min} et de longueur $l_{h_{min}}$ est donnée par :

$$\frac{1}{g_{eq_{canal}}} = \frac{8\mu l_{h_{min}}}{\pi r_{min_{seuil}}^4} \quad (E.4)$$

Pour que le canal de longueur $l_{h_{min}}$ soit équivalent au milieu poreux, il faut que :

$$\frac{1}{g_{eq_{canal}}} = \frac{1}{g_{eq_{milieu\ poreux}}} \quad (E.5)$$

Donc :

$$\frac{8\mu}{\pi} \sum_{i=1}^n \frac{l_i}{r_{min_i}^4} = \frac{8\mu l_{h_{min}}}{\pi r_{min_{seuil}}^4} \quad (E.6)$$

La longueur hydraulique devient :

$$l_{h_{min}} = \sum_{i=1}^n l_i \left(\frac{r_{min_{seuil}}}{r_{min_i}} \right)^4 \quad (E.7)$$

où n est le nombre d'éléments cylindriques décrivant le canal et $r_{min_{seuil}}$ le rayon minimal du canal au niveau du seuil.

La figure E.6 montre que l'augmentation de la longueur hydraulique à chaque ajout de cylindre vers le centre du nœud finit par devenir négligeable devant la longueur géométrique l_g (longueur inter-nodale du canal).

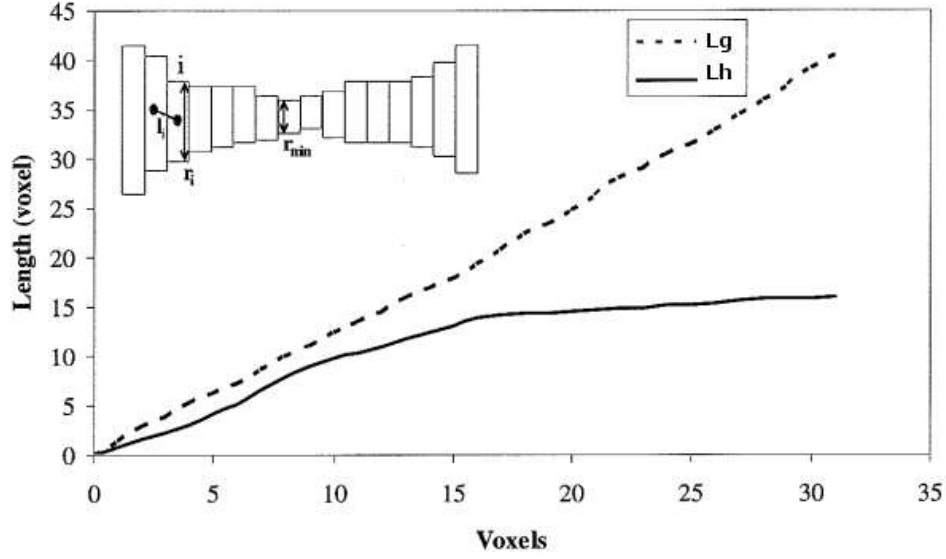


FIGURE E.6 – Variation de la longueur hydraulique et de la longueur géométrique le long de la série de cylindres représentant le canal. Lorsque la pression ne varie presque plus, la longueur hydraulique devient quasiment constante. Le voxel initial est le voxel situant le seuil entre les deux pores.

Le rayon minimale du seuil r_{min_seuil} et la longueur du canal équivalent l_{h_min} permettent de calculer la conductance du canal équivalent g_{min} :

$$g_{min} = \frac{\pi r_{min_seuil}^4}{8\mu l_{h_min}} \quad (E.8)$$

La longueur hydraulique est définie pour un canal, donc le long d'une ligne du squelette. Cette ligne ne va pas forcément du centre d'un pore au centre du pore voisin.

Dans le cas de l'étude d'écoulement dans le réseau de pores les rayons des canaux équivalents aux restrictions du milieu poreux sont les rayons hydrauliques des seuils. La longueur hydraulique devrait-être recalculée à partir du rayon hydraulique r_{h_i} en chaque section le long du canal et non du rayon minimal r_{h_min} , ce qui reviendrait à calculer la longueur hydraulique par l'équation suivante :

$$l_{h_{r_h}}^n = \sum_{i=1}^n l_i \left(\frac{r_{h_seuil}}{r_{h_i}} \right)^4 = \sum_{i=1}^n l_i \left(\frac{r_{h_seuil}}{r_{h_i}} \right)^2 \left(\frac{A_{seuil}}{A_i} \right)^2 \quad (E.9)$$

où A_i est l'aire de la section au voxel i de la ligne du squelette définissant le canal.

On suppose toutefois que le facteur de forme est constant le long du canal. C'est à dire que la forme des sections du canal est identique. Ce qui se traduit par :

$$\frac{r_{min_seuil}}{r_{min_i}} = \frac{r_{h_seuil}}{r_{h_i}} \quad (E.10)$$

Dans ce cas, la longueur hydraulique est identique qu'elle soit calculée à partir du rayon minimal ou hydraulique :

$$l_{h_{min}}^n = l_{h_{r_h}}^n = \sum_{i=1}^n l_i \left(\frac{r_{min_{seuil}}}{r_{min_i}} \right)^4 \quad (E.11)$$

Si la forme du milieu poreux varie le long du canal, cette hypothèse n'est plus vérifiée et il est nécessaire, dans le cadre de l'étude d'écoulement, de calculer la longueur hydraulique à partir du rayon hydraulique.

E.6 Périodicité transverse du réseau de pore

Le réseau de pores est ensuite connecté dans les directions transversales (perpendiculaires à la direction du flux) de manière à assurer la périodicité du réseau. Ces connections des différentes faces transverses se font en deux temps : les canaux des bords opposés sont connectés entre eux par un algorithme de Delaunay en trois dimensions, puis certaines des connections sont supprimées pour que la répartition des connections restantes ait les mêmes caractéristiques que le reste du réseau (notamment le nombre de connections aux nœuds). Les rayons hydrauliques et longueurs hydrauliques des canaux sont choisis de manière aléatoire en utilisant la distribution des rayons et des longueurs de canaux du réseau initial.

L'algorithme de Delaunay en $2D$ génère un maillage triangulaire dans un semi de points, les points étant les sommets des triangles. Lors d'une triangulation de Delaunay, les cercles circonscrits à chaque triangle formés ne doivent contenir d'autres points. Ce qui revient à ce que l'intersection entre deux triangles soit : l'ensemble vide (les deux triangles sont distincts), une arête (un côté est commun), ou un point (les deux triangles partagent un sommet). Cet algorithme est aisément décliné en $3D$ avec l'usage de sphères circonscrites à des tétraèdres. C'est un algorithme classiquement utilisé dans la génération de maillage pour les méthodes aux éléments finis.

Arns *et al.* (2004) ont montrés que les réseaux stochastiques générés à l'aide d'un algorithme de Delaunay ne calculent correctement les perméabilités relatives que dans le cas où les distributions de nombres de connections des nœuds sont représentatifs de ceux du réseau de pores extrait par imagerie. La méthode de connection utilisée associée à la suppression aléatoire de certaines connections jusqu'à l'obtention des caractéristiques du réseau de pores de l'échantillon permet donc de générer un réseau numérique représentatif de l'échantillon.

E.7 Conclusion

La méthode d'extraction du réseau de pores d'un échantillon à partir d'imagerie micro-scanner permet d'obtenir un réseau décrivant correctement la topologie et les propriétés physiques de l'échantillon de milieu poreux. Cette méthode se décompose en six phases : l'acquisition de l'image micro-scanner de l'échantillon de milieu poreux, la segmentation de l'image, l'extraction du squelette de l'espace poreux, le partitionnement de l'espace poreux et enfin la détermination des paramètres géométriques du réseau de pores et l'instauration de la périodicité transverse du réseau.

Annexe F

Simulation des écoulements dans le réseau de pore

Un algorithme permettant de calculer les débits dans les canaux lors d'écoulements monophasiques, ainsi que les débits et la répartition des phases dans le réseau lors d'écoulements diphasiques, a été mis en place à IFPEN. Les simulations des écoulements monophasiques et diphasiques effectuées par ce logiciel sont présentées dans cette annexe.

F.1 Simulation des écoulements monophasiques

Dans le cas d'un écoulement monophasique dans le réseau de pore, les débits dans les canaux sont calculés à l'aide des conductances des canaux et par application d'une différence de pression entre la face d'entrée et la face de sortie du réseau. En considérant un régime de Poiseuille dans les canaux et une pression uniforme dans les pores, le débit q_{mM} dans le canal k reliant les nœuds m et M s'exprime de la façon suivante :

$$q_{mM} = g_{k,mM}(P_m - P_M) \quad (\text{F.1})$$

où $g_{k,mM}$ est la conductance hydraulique du canal k situé entre les nœuds m et M et P_m la pression au nœud m .

$g_{k,mM}$ est donné par :

$$g_{k,mM} = \frac{\pi r_{min_seuil}^4}{8\mu l_h} \quad (\text{F.2})$$

où r_{min_seuil} est le rayon du canal considéré (égal au rayon du cercle inscrit à la section du seuil de pore) et l_h sa longueur hydraulique.

En considérant la conservation de la masse dans chaque nœud :

$$\sum q_{mM} = 0 \quad (\text{F.3})$$

le problème des débits (équation F.1 et F.3) est réduit à un système d'équation linéaire dont la solution donne la pression dans chaque nœud et donc les débits dans chaque canal.

Le débit macroscopique Q_{macro} est calculé pour les faces d'entrée et de sortie. Il est vérifié que ces deux débits sont identiques et donc que la conservation de la masse est assurée. Ce débit Q_{macro} permet de déterminer la perméabilité du réseau de pores K :

$$K = \frac{Q_{macro} \mu L_{reseau}}{A_p \Delta P} \quad (F.4)$$

où μ est la viscosité dynamique du fluide, L_{reseau} la longueur du réseau de pores et A_p la section totale du milieu poreux (vide et solide compris).

La vitesse débitante v_Q ou vitesse de Darcy est ensuite calculée par la formule suivante :

$$v_Q = \frac{Q_{macro}}{A_p} \quad (F.5)$$

La vitesse interstitielle $v_{interstitielle}$ est donnée par :

$$v_{interstitielle} = \frac{v_Q}{\phi} \quad (F.6)$$

où ϕ est la porosité du réseau de pore.

F.2 Simulation des écoulements diphasiques

Les écoulements diphasiques étudiés sont des écoulements quasi-statiques, c'est-à-dire que la répartition des phases est ne change pas au cours du temps. La répartition des phases dans le réseau se fait par drainage : un fluide non-mouillant est injecté dans le réseau initialement saturé d'un fluide mouillant.

La mise en place de la phase non-mouillante dans le réseau se fait a l'aide d'un algorithme de percolation simulant un déplacement quasi-statique. Un fluide mouillant est mis en place dans le réseau en saturation totale, sa pression est constante ; puis la seconde phase (non mouillante) est injectée à la face d'entrée du réseau et sa pression P_{nm} est graduellement augmentée. Cette phase envahit les canaux lorsque la pression P_{nm} est supérieure à la pression capillaire du canal P_c . La pression capillaire du canal est définie par l'équation de Young-Laplace :

$$P_c = \frac{2\sigma}{r} \cos(\theta) \quad (F.7)$$

où σ est la tension interfaciale et r le rayon de courbure, qui dans le cas d'un canal cylindrique à section triangulaire est égal (lors de l'invasion du canal) au rayon du cercle inscrit à la section du canal (défini comme étant le rayon du canal), et θ est l'angle de contact. L'angle de contact θ est l'angle que fait la surface de contact entre les deux phases (le ménisque) avec les bords du canal ou du pore.

Les gradients de pressions visqueuses sont considérés comme négligeables durant le déplacement quasi-statique, et la pression est constante dans chaque phase. De plus comme la pression capillaire est plus élevée dans les canaux que dans les pores ; lorsque la phase injectée envahit un canal, elle envahit automatiquement le pore associé. Les pores cubiques et les canaux triangulaires permettent de mettre en place les phases, notamment la phase mouillante dans les angles (films) ; ce qui est impossible dans le cas de pores sphériques et de canaux cylindriques.

L'aire de la phase mouillante occupant les angles des pores et des canaux est donnée par la relation suivante (Hui et Blunt, 2000) :

$$A_w = n_c r^2 [\cos \theta (\cot \alpha \cos \theta - \sin \theta) + \theta + \alpha - \pi/2] \quad (\text{F.8})$$

où n_c représente le nombre de coins, α est le demi-angle du sommet du polygone considéré, et r est le rayon de courbure.

L'aire totale de la section d'un pore ou d'un canal de rayon inscrit r_{min} est donné par la relation $A_t = n_c r_{min}^2 \cot \alpha$. Ce qui permet de calculer la fraction volumique occupée par les films localement (équation F.9) :

$$S_w = \frac{A_w}{A_t} = \tan \alpha \left(\frac{r}{r_{min}} \right)^2 \left[\frac{\cos \theta}{\tan \alpha} \cos(\alpha + \theta) + \theta + \alpha - \frac{\pi}{2} \right] \quad (\text{F.9})$$

La répartition des phases se faisant pour l'instant en quasi-statique, la marche aléatoire dans un réseau insaturé est équivalente à une marche aléatoire dans le sous-réseau décrit par la phase mouillante. Le calcul des débits dans cette phase se fait de la même façon que pour le réseau saturé, en utilisant r le rayon de courbure et non plus le rayon du cercle inscrit au canal.

F.3 Conclusion

La simulation des écoulements dans le réseau de pores s'effectue en monophasique, en considérant une pression constante dans chaque pores et un écoulement de Poiseuille dans les canaux. La conservation des débits ramène le problème à un système d'équation linéaire aisément solvable.

La répartition des phases en écoulement diphasique se fait par un algorithme de percolation simulant un déplacement quasi-statique d'un fluide mouillant par un fluide non-mouillant. La phase non-mouillante injectée, lorsqu'elle envahit un canal, envahit immédiatement le pore efferent au canal. On considère qu'un film de phase mouillante est toujours présent. Les débits sont ensuite calculé de la même manière que pour un écoulement monophasique.

Annexe G

Générateur de nombres pseudo-aléatoires et tirage de variable aléatoire suivant des lois non uniformes

G.1 Générateur de nombres pseudo-aléatoires selon une loi uniforme

Le générateur de nombres pseudo-aléatoires classiquement utilisé en langage C est le générateur associé à la fonction *rand()*. La fonction *rand()* utilise un générateur à congruence linéaire (Kalos et Whitlock, 2008) qui produit une série de nombres pseudo-aléatoires à partir d'une équation ayant la forme suivante :

$$X_{n+1} = (a X_n + b) \% m \quad (\text{G.1})$$

où a et b sont des paramètres fixes et $A \% m$ correspond au reste de la division de A par m .

Cette fonction est bien connue pour ses insuffisances dans les tirages de grandes quantités de nombres. Sa période est très limitée et de 2^{32} .

Dans le cas d'une marche aléatoire il convient d'utiliser un générateur pseudo-aléatoire de meilleur qualité et de plus grande période. Le générateur de nombres pseudo-aléatoires dit "Mersenne Twister" inventé par Makoto Matsumoto et Takuji Nishimura en 1997 (Matsumoto et Nishimura, 1998), utilise un algorithme TGSFR ("Twisted Generalised Shift Feedback Register") (Kalos et Whitlock, 2008) et est décrit en détail dans l'article de Matsumoto et Nishimura (1998). L'algorithme se base sur une récurrence linéaire matricielle. Il est dérivé des "Tausworthe" ou "Feedback Shift Register Generator". Ces générateurs utilisent une récurrence linéaire pour générer des bits pseudo-aléatoires :

$$b_i = (a_1 b_{i-1} + \dots + a_j b_{i-j}) \% 2 \quad (\text{G.2})$$

où tous les coefficients a_i et les bits resultants b_i , sont des 0 ou des 1.

Ces générateurs nécessitent donc une chaîne de nombres comme initialisation.

La plupart des générateurs Tausworthe sont, en plus, basés sur une opération logique :

$$b_i = b_{i-p} \oplus b_{i-(p-q)} \quad (\text{G.3})$$

où $\oplus$ est l'opérateur logique "Ou exclusif".

La récurrence précédente est associée à un trinôme caractéristique :

$$f(y) = 1 + y^p + y^{p-q}, p > q. \quad (\text{G.4})$$

Les séries de Q -bits générés par l'équation G.3 permettent ensuite de calculer un nombre pseudo-aléatoire à Q -bits. Dans le cas des Generalized Feedback Shift Register Generator (GSFR) (Kalos et Whitlock, 2008), le nombre de bits utilisés est classiquement de 32, la création des entiers à Q -bits (32-bits) est couplée à l'introduction d'un décalage :

$$y_i = b_i b_{i-l_2} \dots b_{i-l_Q} \quad (\text{G.5})$$

où $l_2, \dots, l_Q$ sont les décalages.

La version du GSFR inventée par Makoto Matsumoto et Takuji Nishimura en 1997, le "Twisted Generalised Shift Feedback Register Generator" (TGSFR) (Matsumoto et Nishimura, 1998, Kalos et Whitlock, 2008) retourne les bits utilisés dans la récurrence satisfaite par y_i (valable car chaque bit est toujours généré par l'équation G.3) :

$$y_i = y_{i-p} \oplus A y_{i-(p-Q)} \quad (\text{G.6})$$

où A est une matrice $Q \times Q$ composée de 1 et de 0.

La période du TGSFR de Matsumoto et Nishimura (1998) est un nombre premier de Mersenne¹, et est de $2^{19937} - 1$, il est uniformément distribué sur 623 dimensions pour des nombres de 32 bits et est aléatoire quel que soit le poids du bit considéré. Cet algorithme est utilisé pour la génération des nombres pseudo-aléatoires (uniformément distribués sur $]0, 1[$) dans la marche aléatoire.

G.2 Tirage d'une variable aléatoire suivant une loi Normale centrée caractéristique de la diffusion moléculaire

Les générateurs de nombres pseudo-aléatoires classiques génèrent principalement des séries de nombres suivant des lois uniformes sur $]0, 1[$. Pour pouvoir obtenir une variable aléatoire suivant une loi normale à partir de variables aléatoires suivant une loi uniforme, on utilise la méthode de Box-Muller (Box et Muller, 1950) : deux variables u_1 et u_2 indépendantes et tirées selon une loi uniforme sur l'intervalle $]0, 1[$ permettent de générer deux variables aléatoires n_1 et n_2 :

1. un nombre premier de Mersenne est un nombre premier s'écrivant sous la forme $2^p - 1$, p étant aussi un nombre premier

$$n_1 = \sqrt{-2 \ln u_1} \cos(2\pi u_2) \quad (\text{G.7})$$

$$n_2 = \sqrt{-2 \ln u_1} \sin(2\pi u_2) \quad (\text{G.8})$$

Box et Muller (1950) montrent que n_1 et n_2 suivent une loi normale centrée réduite et sont indépendantes.

En introduisant une espérance μ et une variance σ^2 , on peut définir deux variables aléatoires N_1 et N_2 suivants une loi normale $\mathcal{N}(\mu, \sigma^2)$ et étant indépendantes l'une de l'autre :

$$N_1 = \mu + \sigma n_1 \quad (\text{G.9})$$

$$N_2 = \mu + \sigma n_2 \quad (\text{G.10})$$

Le mouvement diffusif de molécules d'eau suit une loi normale centrée de type $\mathcal{N}(0, 2D_m t)$. Où D_m est le coefficient de diffusion moléculaire de l'eau et t la durée du déplacement observé. Dans le cas où l'on considère un régime de Taylor établi, les mouvements diffusifs suivent une loi normale du type $\mathcal{N}(0, 2D_{eff} t)$. Où D_{eff} est le coefficient de diffusion effectif.

G.3 Tirage d'une variable aléatoire suivant une loi α -stable

Chambers *et al.* (1976) montrent que la génération d'une variable aléatoire X_1 suivant une loi α -stable de paramètres $\alpha, 1, \beta$ et 0 : $X_1 \hookrightarrow S_\alpha(1, \beta, 0)$ (α est l'exposant caractéristique, β est un paramètre d'asymétrie) peut-être effectuée en utilisant une variable V de loi uniforme sur $]-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2}[$ et une variable W de loi exponentielle de paramètre 1. L'algorithme de Chambers-Mallows-Stuck permettant de construire une telle variable aléatoire est le suivant (Borak *et al.*, 2005) :

Dans le cas où $\alpha \neq 1$, on pose,

$$B_{\alpha, \beta} = \frac{\arctan(\beta \tan(\frac{\pi\alpha}{2}))}{\alpha} \quad (\text{G.11})$$

et,

$$S_{\alpha, \beta} = \left(1 + \beta^2 \tan^2\left(\frac{\pi\alpha}{2}\right)\right)^{1/(2\alpha)} \quad (\text{G.12})$$

La variable X suivant la loi stable de paramètres $\alpha, 1, \beta$ et 0 est exprimée par,

$$X_1 = S_{\alpha, \beta} \frac{\sin(\alpha(V + B_{\alpha, \beta}))}{(\cos(V))^{1/\alpha}} \left[\frac{\cos(V - \alpha(V + B_{\alpha, \beta}))}{W} \right]^{(1-\alpha)/\alpha} \quad (\text{G.13})$$

A partir de cette formule il est simple de simuler une variable aléatoire X_2 suivant une loi α -stable $S_\alpha(\sigma, \beta, \mu)$, dans le cas où $\alpha \neq 1$:

$$X_2 = \sigma X_1 + \mu \tag{G.14}$$

où σ est appelé facteur d'échelle et μ le paramètre de position.

Borak *et al.* (2005) fait remarquer que la méthode de Chambers-Mallows-Stuck, dans le cas où $\alpha = 2$ et $\beta = 0$ se réduit à la méthode de Box-Muller permettant de simuler une variable aléatoire suivant une loi normale (paragraphe G.2).

Dispersion en milieux poreux insaturés. Modélisations et mesures RMN de distributions de vitesse.

Résumé

La dispersion dans des milieux poreux homogènes (empilements de grains) a été étudiée par des mesures par résonance magnétique nucléaire (RMN) et des simulations de marches aléatoires dans un réseau de pores. La RMN permet de mesurer l'ensemble des déplacements des molécules d'eau durant un temps t_Δ , et d'obtenir propagateurs et moments caractéristiques. L'évolution temporelle du second moment σ ($\sigma^2 \propto t_\Delta^a$) permet de caractériser de manière précise le régime de dispersion des molécules (Gaussien ou anormal). Des mesures pour des écoulements de $15 < Pe < 45$ dans un empilement de grains de $30\mu m$ ont permis d'observer une dispersion anormale faiblement super-dispersive ($a = 1.17$) en écoulement saturé et une augmentation progressive du caractère super-dispersif avec la diminution de la saturation en eau (jusqu'à $a = 1.5$ pour 42 %) lors d'une co-injection stationnaire eau-huile. En écoulement saturé, les propagateurs et courbes de percée sont quasi-gaussiennes, tandis qu'en écoulement insaturé, les propagateurs sont asymétriques et les courbes de percée présentent des trainées aux grands temps. Dans ces conditions, on montre que la dispersion anormale observée est mieux décrite par des lois stables de Lévy que par des lois gaussiennes. Des simulations de marche aléatoire ont été réalisées dans un réseau de pores extrait d'un milieu poreux réel par imagerie microscanner. Elles permettent d'obtenir les mêmes informations que la RMN, les marcheurs se déplaçant par advection et diffusion. Ces simulations montrent l'existence d'une stagnation non observée dans les expériences, montrant que la simplification du réseau poreux est trop importante et empêche de reproduire certains aspects du champ de vitesses détecté par la RMN. Toutefois, l'évolution temporelle du second moment a également un caractère super-dispersif à temps long à 100 % de saturation.

Mots clés : Dispersion anormale, résonance magnétique nucléaire, milieux poreux insaturés, marche aléatoire, réseau de pores.

Dispersion in unsaturated porous media. Numerical simulations and NMR measurements of velocity distributions.

Abstract

We investigated dispersion in homogeneous porous media (grain packs) by nuclear magnetic resonance (NMR) measurements and Random walk simulations in pore networks. We measured water molecules displacements during a time interval t_Δ by NMR measurements, which allows us to obtain propagators and characteristic cumulants of displacements such as the mean square displacement σ . The evolution of the cumulant σ as a function of time t_Δ ($\sigma^2 \propto t_\Delta^a$) is a very sensitive test of Gaussian behaviour compared to the analysis of the shape of propagators. In a homogeneous $30\mu m$ grain pack and low Peclet numbers ($15 < Pe < 45$), we observed weak super dispersion in saturated conditions ($a = 1.17$) and gradually stronger super-dispersion as the water saturation decreases (up to $a = 1.5$ for 42 %) during steady-state oil-water two phase flow. In saturated conditions, propagators and breakthrough curves are Gaussian or nearly Gaussian, whereas in two phase conditions, propagators are non symmetric and breakthrough curves show thick tails at long time. We show that the anomalous dispersion observed is better explained by Lévy stable laws (asymmetric for longitudinal dispersion, and symmetric for transverse dispersion) than by Gaussian laws. Random walk simulations were performed in a pore network constructed using high resolution images of the grain pack. They allow us to obtain the same informations than the NMR, with walkers submitted to diffusive and advective effects. The simulations show the existence of an anomalous stagnation not observed in experiments, highlighting the oversimplification of the pore network that prevent reproducing some aspects of the velocity field detected by NMR. However, the simulations indicate similarly a super-dispersion at long time in saturated conditions.

Keywords : Anomalous dispersion, nuclear magnetic resonance, unsaturated porous media, random walk, pore network.