Université de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Dynamique des fluides

Présentée et soutenue par :

M. PHILIPPE LEFORT

le mercredi 16 juillet 2014

Titre :

ETUDE DES DEPLACEMENTS EAU-GAZ DANS LES ARGILITES DU CALLOVO-OXFORDIEN A L'AIDE DE LA THEORIE DE LA PERCOLATION EN GRADIENT

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (I.M.F.T.)

Directeur(s) de Thèse :

M. MARC PRAT

Rapporteurs :

M. HENRI BERTIN, UNIVERSITE BORDEAUX 1

M. PATRICE CREUX, UNIVERSITE DE PAU ET DES PAYS DE L ADOUR

Membre(s) du jury :

M. FREDERIC SKOCZYLAS, ECOLE CENTRALE DE LILLE, Président

M. JEAN TALANDIER, ANDRA, Membre

M. JOEL BILLIOTTE, MINESPARISTECH, Membre

M. MARC PRAT, INP TOULOUSE, Membre

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier le directeur de cette thèse, M. Marc Prat, pour m'avoir fait confiance puis pour m'avoir guidé, encouragé et conseillé.

Mes remerciements vont également à M. Jean Talandier, pour m'avoir accueilli à l'ANDRA. Je remercie l'ANDRA pour la bourse sans laquelle ce travail n'aurait pu voir le jour.

Je remercie l'ensemble des personnels des différents laboratoires du GL « transfert de gaz » ANDRA pour leur contribution directe ou indirecte à ce travail de recherche.

Je remercie tous ceux sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est : le service COSINUS de l'IMFT en particulier Annaig Pedronno pour avoir travaillé avec moi sur la résolution en parallèle de système linéaire creux de grande taille; La Team ARPOVS, Laetitia Mottet, Benjamin Straubhaar et Vincent Sarrot pour avoir participer au développement d'ARPOVS le code ayant permis la réalisation de simulations sur réseaux de pores. Merci à Mauricio Duenas Velasco de me rappeler par son existence que je ne ferais jamais de sciences expérimentales.

Henri Bertin et Patrice Creux ont accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, et je les en remercie, de même que pour leur participation au Jury. Ils ont également contribué par leurs nombreuses remarques et suggestions à améliorer la qualité de ce mémoire, et je leur en suis très reconnaissant.

Messieurs Joël Billiotte, Frédéric Skoczylas et Jean-François Daïan m'ont fait l'honneur de participer au Jury de soutenance; je les en remercie profondément.

Je remercie Viviane Lefort, pour toutes les petites choses qui font de toi la meilleure maman du monde.

Je remercie Nadège Bauzou ma chérie pour son soutiens et sa patience au cours de ces trois ans.

Je tenais aussi à remercier Gafary Boussari et Pascal Castet du Royal Naresuan Boxing pour m'avoir fait découvrir l'art merveilleux de la muy thai et pour m'avoir donné goût au combat.

Un gros merci à Zouhir Boumenir et Laurence Cousin pour m'avoir transmis votre passion du Jiu-jitsu brésilien. Un énorme merci à tous mes partenaires de combat : La blonde, Léa , Jeannot, Yannick, Raphaël, Suarez, Tom Tom, Damien, Nico, Piou-Piou, Poivron, Alex, Kévin (the big one), Kévin (force rose), Norbert, Pierre, Betty et les autres.

Je passe ensuite une dédicace spéciale à tous mes amis : Les GROS pour ces années formidables en école d'ingénieurs, P'tit Ju , David Barré, Alexandre Eyssartier (je serais le meilleur témoin du monde!), Sabrina Dubuc, Guillaume Frichet.

Je tiens aussi à mentionner le plaisir que j'ai eu à travailler au sein de l'IMFT et j'en remercie ici tous les membres

RESUME

Le travail présenté dans cette thèse s'inscrit dans la problématique générale du stockage souterrain des déchets radioactifs Nous nous intéressons au problème du drainage hyperlent qui est lié à la production de gaz, de l'hydrogène principalement, au sein du site de stockage. Bien que très faible en flux, d'où le caractère hyperlent du drainage, cette production représente des quantités significatives de gaz étant donné qu'elle s'opère sur des milliers d'année. L'étude est effectuée dans le cadre de la théorie de la percolation d'invasion en gradient. Nous montrons tout d'abord que ce processus de drainage est modélisable avec le modèle diphasique classique basé sur les lois de Darcy généralisées. Une étape essentielle concerne alors la spécification des paramètres de ce modèle. Nous montrons comment ils doivent être spécifiés en s'appuyant sur les comportements asymptotiques prévus par la théorie de la percolation pour un milieu infini. La solution obtenue indique que le drainage hyperlent fonctionne au voisinage de la pression de percée, qui fait l'objet d'une étude particulière, et est caractérisé par une faible désaturation du milieu et une grande sensibilité à la spécification des paramètres du modèle dans la gamme des très fortes saturations en fluide mouillant.
Dans une deuxième partie nous étudions l'impact des couplages fluide structure à l'échelle du réseau de pores en couplant un modèle de réseau de pores à un modèle de réseau de ressorts interconnectés. Les simulations basées sur ce modèle indiquent un changement profond de la figure d'invasion par rapport au cas rigide avec l'auto-génération de chemins préférentiels lorsque les couplages sont suffisamment forts.

ABSTRACT

The work presented in this manuscript is motivated by the study of nuclear waste underground repository. In this context, we study the hyperslow drainage problem, which is related to the gas production, mainly hydrogen, taking place within the repository. Although the gas production rate is quite small, and thus the drainage hyperslow, the amount of produced gas is quite significant because the production takes place over thousands years. The study is performed within the framework of the theory of invasion percolation in a gradient. We first show that the hyperslow drainage process can be modelled using the traditional two-phase flow model based on the generalized Darcy's law. A crucial step is then to specify properly the parameters of the model. We show how they must be specified from the asymptotic behaviours of the parameters for an infinite medium as predicted by percolation theory. The obtained solution indicates that the hyperslow drainage operates in the vicinity of breakthrough pressure, which is the subject of a specific study. Furthermore, the hyperslow drainage is characterized by a weak desaturation of the medium and a great sensitivity to the model parameters in the range of high wetting fluid saturation.
We also study the impact of coupling between the flow and the local deformation of porous matrix at the pore network scale from numerical simulations using a model coupling a pore network model and a deformation model based on a system of interconnected springs. The simulations indicate a major change of the invasion pattern compared to the rigid matrix with the self-generation of invasion preferential paths when the coupling is sufficiently strong.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE……..p.11

CHAPITRE 1 ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES……..p.17

PARTIE I : SUR LA PRESSION DE PERCEE **……..p.37**

CHAPITRE 2 : INTRODUCTION……p.39

CHAPITRE 3: PORE NETWORK MODELS OF DRYING WITH KELVIN'S EFFECT……p.43

CHAPITRE 4: ON THE DETERMINATION OF BREAKTHROUGH PRESSURE.p.65

PARTIE II : DRAINAGE HYPERLENT **……...p.83**

CHAPITRE 5: DRAINAGE HYPERLENT……p.85

CHAPITRE 6: SOLUTION DU DRAINAGE HYPERLENT……..p.109

CHAPITRE 7: DRAINAGE HYPERLENT ET DEFORMATION MECANIQUE A PETITE ECHELLE……..p.131

PARTIE III : DRAINAGE HYPERLENT ET ARGILITE **……p.153**

CHAPITRE 8 DRAINAGE HYPERLENT ET ARGILITE……p.155

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES……p.179

INTRODUCTION GENERALE

Le travail présenté dans cette thèse s'inscrit dans la problématique générale du stockage souterrain des déchets radioactifs (Figure 1).

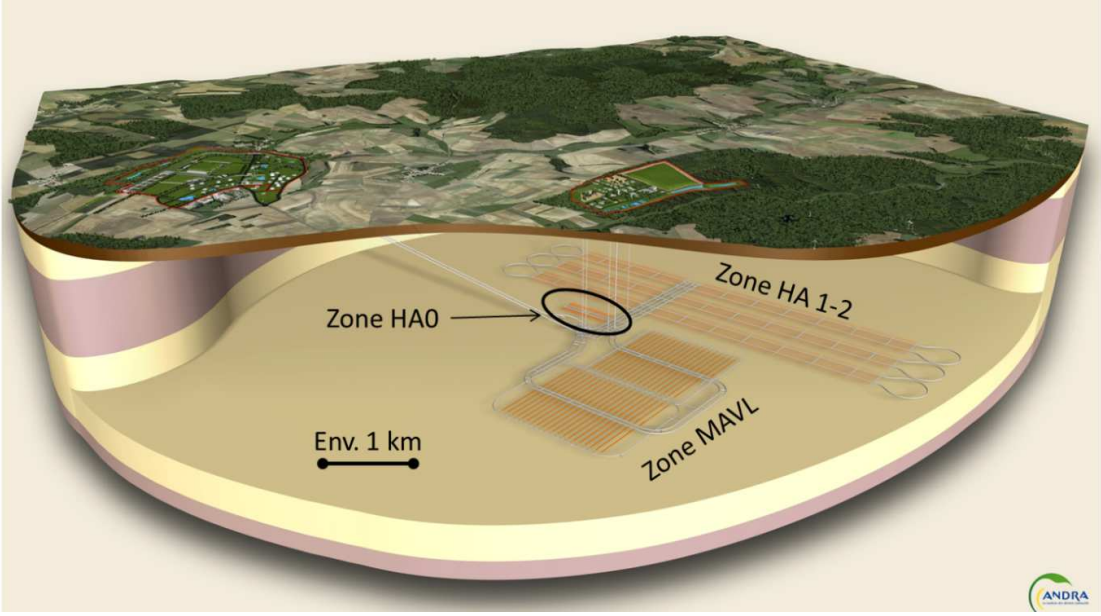


Figure 1. Stockage souterrain des déchets radioactifs

La mise en oeuvre d'un tel stockage implique de s'intéresser à de très nombreux aspects. Dans cette thèse, on s'intéresse à un point particulier qui est liée à la production de gaz, de l'hydrogène principalement, au sein du site de stockage. Cette production est principalement la conséquence de phénomènes de corrosion des métaux introduits dans la formation souterraine (ferraillage, colis de déchets,etc).

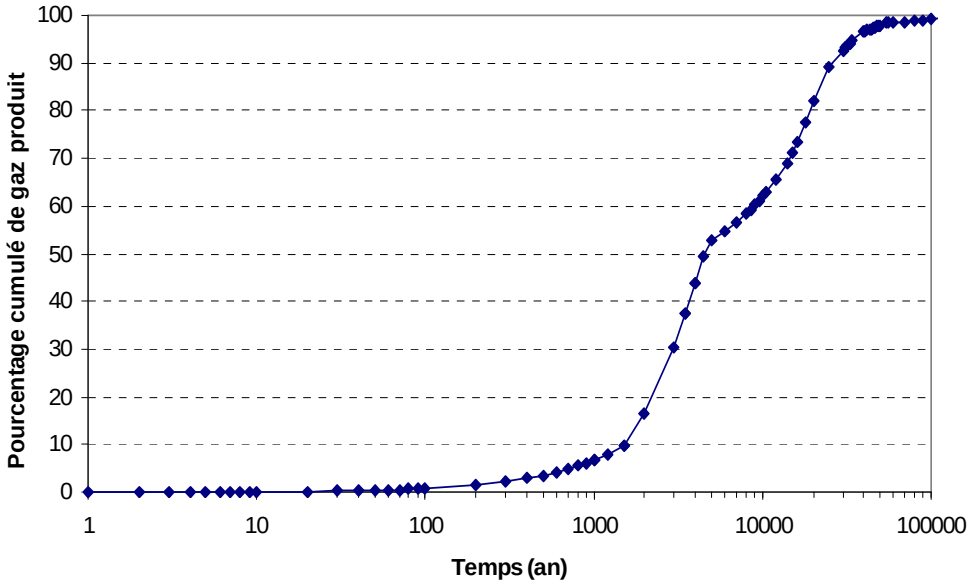


Figure 2. Evolution de la production cumulée de gaz produite au sein du stockage (données ANDRA)

Bien que faible en flux, cette production représente des quantités significatives de gaz étant donné que cette production s'opère sur des milliers d'année (Fig.2). Ainsi sur la durée de production d'hydrogène, la masse totale d'hydrogène produite se chiffre en dizaine de milliards de moles, dont la majeure partie provient de la zone HA. A titre de comparaison, cela représente un volume équivalent à celui d'un « petit » stockage géologique tampon pour GDF. Il faut cependant garder à l'esprit que ce volume est produit sur une période de 100 000 ans et qu'à la fin de cette période seule une faible fraction est encore présente sous forme gazeuse dans le stockage.

La production du gaz pose deux questions principales :

1) Quelle est la valeur de la pression du gaz susceptible d'être atteinte dans le stockage ?
2) la présence du gaz est –elle susceptible de modifier l'état de saturation de la roche hôte par l'eau et plus généralement la circulation de l'eau dans la formation souterraine et donc par exemple le transport éventuel des radioéléments s'échappant du site de stockage.

La première question et la seconde sont en réalité liées. Si la pression du gaz devient trop grande, on peut s'attendre à ce que le gaz envahisse partiellement la formation souterraine, voire que cela conduise si la pression atteint les niveaux nécessaires à la fracturation de la roche-hôte et donc à des modifications sérieuses des chemins de fuite éventuels des radio-éléments.

Ainsi comme cela est schématisé sur la Figure 3, plusieurs scénarios sont possibles suivant la quantité de gaz produite et la pression atteinte. Pour une production suffisamment faible, le gaz peut être évacué sous forme dissoute. Avec une production plus significative, on s'attend à ce que les forces capillaires ne soient plus suffisantes pour empêcher l'hydrogène de pénétrer dans la roche en phase gazeuse, créant ainsi un écoulement diphasique de type drainage. Pour des niveaux de production plus élevés, des effets poro-mécaniques sont à prendre en compte, pouvant aller jusqu'à la fracturation de la roche.

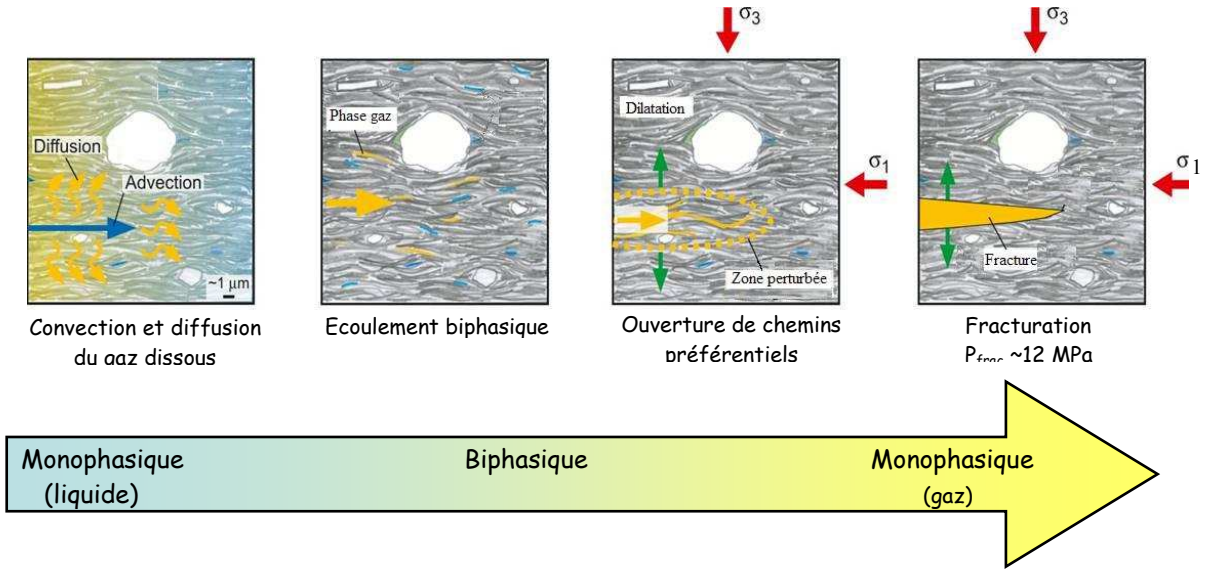


Figure 3. Mécanismes du transfert de gaz dans la roche poreuse (d'après Marschall et al. 2005) (figure ANDRA)

En accord avec les études de l'ANDRA, le scénario qui est privilégié dans cette thèse est le scénario numéro 2 correspondant a priori à un scénario assez classique de drainage. On verra toutefois que la situation est très probablement moins simple. L'interprétation de certaines expériences de laboratoire avec des échantillons de roche poreuse de l'horizon géologique où est envisagé le stockage en France conduit en effet à invoquer des couplages entre l'écoulement de drainage et des effets poro-mécaniques.

Quoiqu'il en soit, il parait naturel de s'appuyer sur le modèle le plus classiquement utilisé pour calculer des écoulements diphasiques en milieu poreux, à savoir le modèle continu basé sur les équations de Darcy généralisées et les concepts associés de perméabilités relatives et d'équilibre capillaire local décrit par la courbe de rétention.

Ce modèle est ainsi utilisé par l'ANDRA pour calculer la désaturation de la roche où l'évolution de la pression de gaz. L'écoulement étudié possède cependant une particularité qui justifie de réexaminer le bien-fondé du modèle diphasique classique. Il est extrêmement lent, ce qui est une conséquence du faible taux de production du gaz, c'est-à-dire du très faible débit d'injection. La figure 4 montre un résultat typique obtenu par l'ANDRA. L'hydrogène est susceptible de pénétrer la roche sous forme gazeuse sur une distance significative mais la désaturation est très faible.

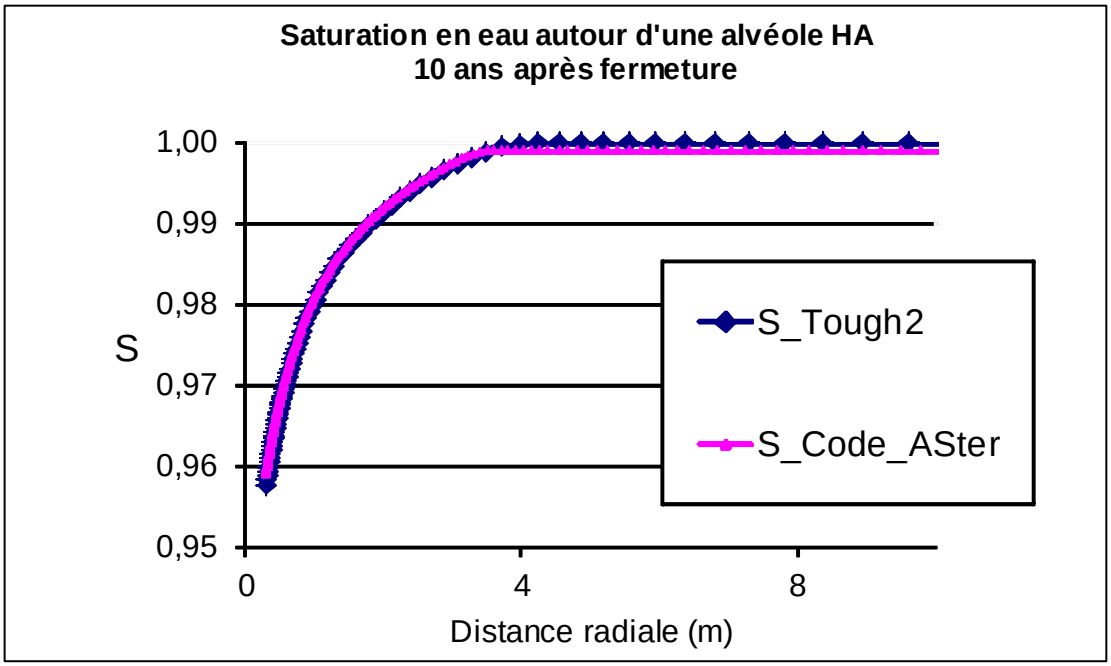


Figure 4. Calcul du champ de saturation en eau au voisinage du site de stockage à l'aide du modèle diphasique classique avec deux codes de calcul (doc. ANDRA).

En d'autres termes, si on se réfère par exemple à la courbe de rétention du matériau (Figure 5), le système fonctionne dans la zone « ambigüe » de cette courbe, qui est très difficile à mesurer et où la variation avec la saturation est très rapide.

Si bien qu'on peut se poser au moins deux questions :

1) peut-on utiliser avec confiance le modèle diphasique classique dans cette gamme très spéciale de saturations voisine de 1 ?

2) si la réponse est positive comment spécifier les paramètres du modèle dans cette gamme de saturation de façon à obtenir les résultats les plus précis possibles ?

La question 1 peut être vue comme une question de nature fondamentale = le modèle diphasique classique est il valable dans cette gamme de saturation ? La question 2 peut être vue comme une question de paramétrisation : comment spécifier optimalement la courbe de rétention et les perméabilités relatives.

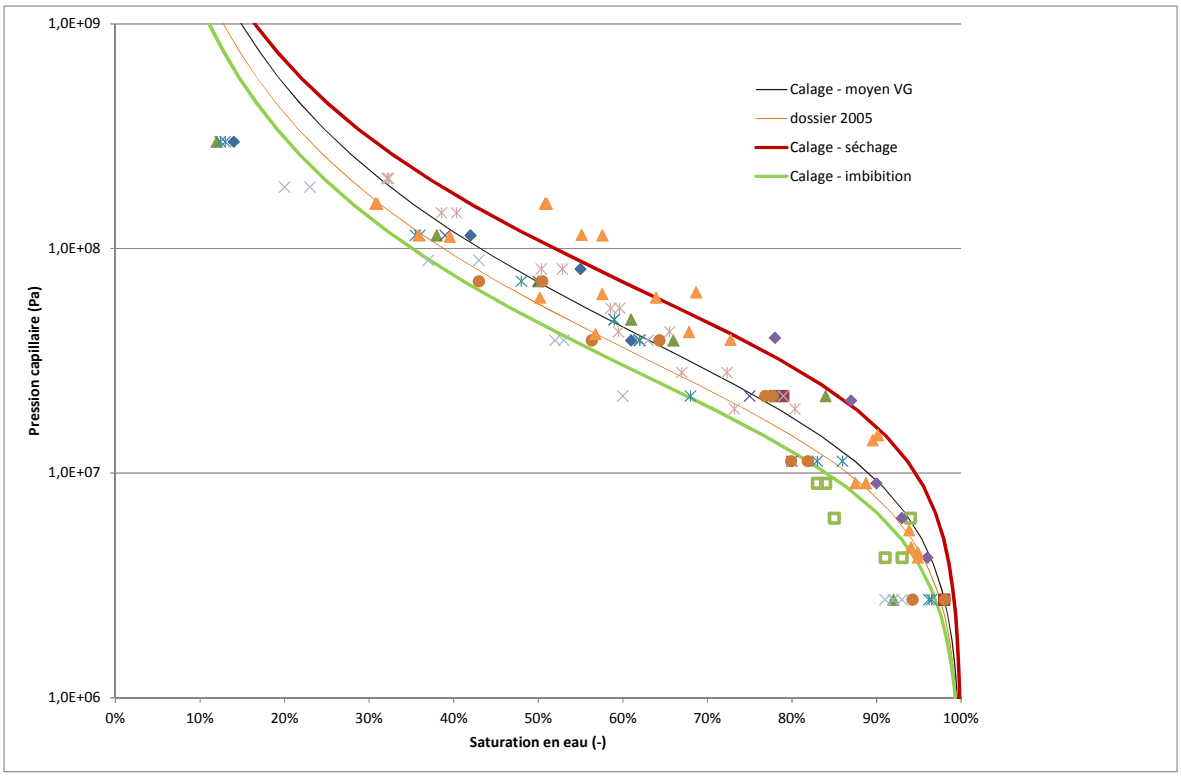


Figure 5. Courbe de rétention de la roche hôte (doc . ANDRA).

Tenter de répondre à ces deux questions constitue l'objectif principal de la thèse. Cette problématique est identifiée comme la question du drainage « hyperlent » étant donné les débits d'injection exceptionnellement faibles caractérisant la situation étudiée.

Il est clair que la problématique du drainage hyperlent est générique, c'est-à-dire n'est pas particulière à un matériau poreux donné. Pour cette raison, elle est étudiée sur un milieu poreux modèle : un simple réseau de pores cubiques.

La roche-hôte est toutefois certainement beaucoup plus compliquée qu'un réseau cubique. La question de sa représentativité par un réseau de pores par exemple se pose nécessairement si l'on veut généraliser les résultats obtenus avec le réseau cubique à ce matériau. Ce point, c'est-à-dire l'étude de la microstructure de la roche-hôte constitue un « chantier » très largement ouvert. Dans le cadre de cette thèse, il ne sera abordé que via une revue bibliographique.

La gamme des fortes saturations proches de 1 qui est d'intérêt premier pour le drainage hyperlent correspond à la gamme des saturations au voisinage de la percée (Fig.6). La percée

est la situation où le fluide injecté forme pour la première fois un chemin percolant à travers l'échantillon étudié.

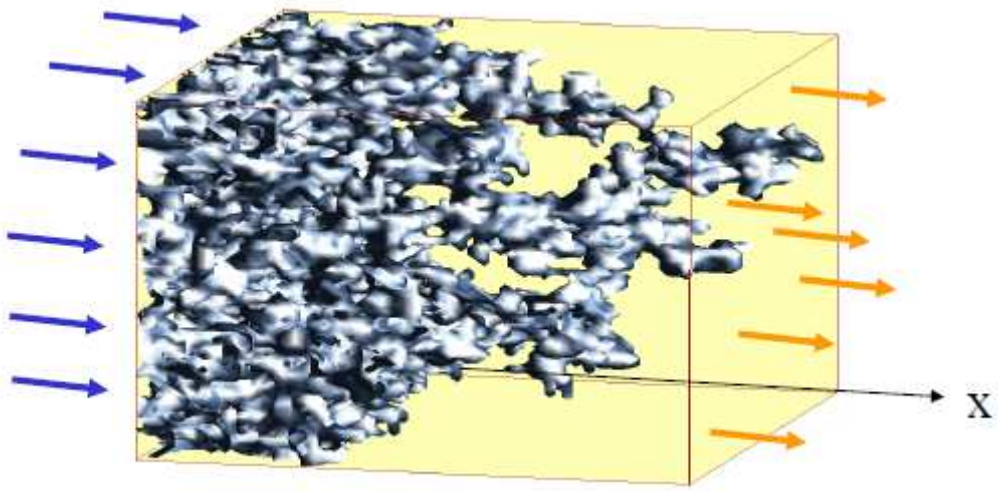


Figure 6. Distribution des phases à la percée calculée par simulations sur réseau de pores.

La caractérisation de la pression de percée est une donnée importante pour estimer le niveau de pression qu'il faut atteindre pour voir le gaz pénétré de façon significative dans la roche-hôte. Plusieurs équipes (en particulier le British Geological Service (BGS) et l'ECL, cf M'Jahad 2012) ont travaillé à la caractérisation expérimentale de cette grandeur. Pour notre part, nous avons étudié deux méthodes de détermination de cette grandeur à partir de simulations numériques sur réseau de pores dans l'idée notamment de caractériser les facteurs susceptibles d'affecter la mesure de la pression de percée par ces deux méthodes.

Le reste du manuscrit est ainsi organisé comme suit :

- Le chapitre 1 est de nature bibliographique. Il présente les grandes lignes du projet français de stockage souterrain des déchets radioactifs ainsi que les éléments bibliographiques de nature scientifique utiles pour la suite du travail.

La suite est découpée en trois parties.

- La partie I est dédiée à la caractérisation de la pression de percée. Cette partie est formée de trois chapitres. Le premier est un court chapitre d'introduction. Le second présente un modèle de réseau de pore de l'évaporation en milieu nanoporeux. Le développement de ce modèle a été nécessaire pour étudier une méthode de caractérisation de la pression de percée à partir du contrôle de l'humidité relative. Cette méthode ainsi qu'une méthode d'injection de gaz (drainage) sont étudiées dans le troisième chapitre de cette partie.

- La partie II est formée de trois chapitres. Elle est consacrée à l'étude du drainage hyperlent. La première analyse le drainage hyperlent sous l'hypothèse d'une microstructure rigide. Le second étudie une solution au problème du drainage hyperlent en continuité du chapitre précédant. Dans le troisième, on s'intéresse aux effets d'un couplage entre déformation mécanique en régime élastique et écoulements à l'échelle du réseau de pores.

- La partie III est à nouveau de nature principalement bibliographique. Elle offre une discussion sur l'état de l'art quant à l'applicabilité de nos résultats à des roches poreuses complexes comme l'argilite, c'est-à-dire la roche – hôte pour le stockage.

Référence

Marschall, P., Horseman, S.,Gimmi, T. (2005). Characterisation of gas transport properties of the Opalinus Clay, a potential host rock formation for radioactive waste disposal. *Oil &Gas Sci. Technol. – Rev. IFP* 60 (1) : 121-139.

M'Jahad S. (2012) Impact de la fissuration sur les propriétés de rétention d'eau et de transport des géomatériaux. Application au stockage profond des déchets radioactifs, Thèse Ecole Centrale de Lilles.

CHAPITRE 1

ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES

Ce chapitre présente quelques éléments de nature bibliographique utiles pour la suite de ce travail. Ces éléments concernent le stockage souterrain des déchets radioactifs, les écoulements diphasiques en milieu poreux et enfin la théorie de la percolation. Quelques éléments liés à nos hypothèses de travail sont également présentés à la fin de ce chapitre.

1. Stockage souterrain des déchets radioactifs

1.1 Introduction

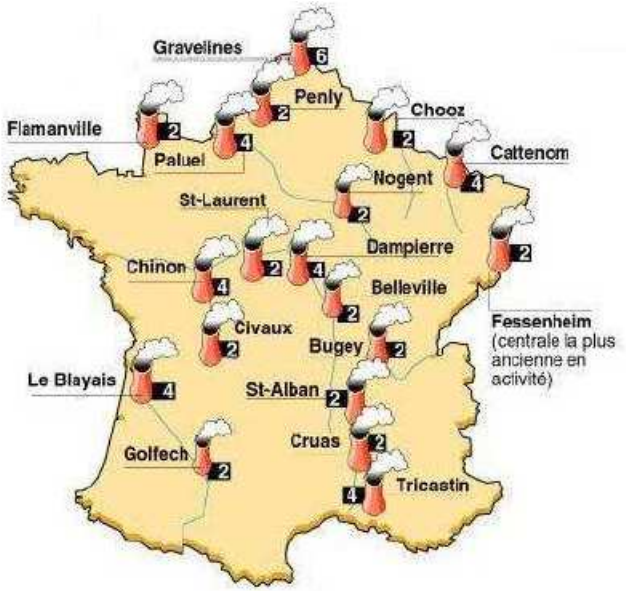


Figure 1.1. Carte des réacteurs**.**

58 réacteurs répartis sur 19 centrales nucléaires françaises produisent la majorité des déchets nucléaires en France (figure 1.1). Les autres activités génératrices de déchets radioactifs sont la recherche, le secteur médical, ainsi que le démantèlement de sites industriels. La gestion des déchets radioactifs en France concerne un volume de déchets qui était en 2010 évalué à environ 1 320 000 m^3 mais devrait passer à 2 700 000 m^3 d'ici 2030 (source andra.fr rubrique volume des déchets). L'ANDRA (Agence Nationale de gestion des Déchets RAdioactifs) est l'organisme responsable de la gestion ces déchets radioactifs en France. Elle s'occupe de la collecte et du stockage de certains de ces déchets.

1.2 Classification des déchets radioactifs

Deux grandeurs sont utilisées pour classer les déchets radioactifs. La première, la période radioactive représente la durée au bout de laquelle un radio- élément perd la moitié de son activité radioactive. Cette période radioactive caractérise la durée de vie d'un radio-élément. Par exemple, les déchets dits à vie courte, pour lesquels la période est inférieure à 30 ans, n'auront plus que 1/16 ème de leur activité au bout de 120 ans. La seconde, l'activité d'un radio-élément, correspond au nombre de désintégrations mesurées par seconde et est quantifiée en becquerel (Bq). Chaque désintégration produit un rayonnement pouvant être très

nocif pour les organismes vivants à proximité. Plus l'activité est importante et plus la dose reçue par l'organisme est importante.

Il existe ainsi 4 classes d'activités pour caractériser un déchet :
– Très faible activité (TFA, de l'ordre de 10 Bq/g)
– Faible activité (FA, de l'ordre de 103-105 Bq/g)
– Moyenne activité (MA, de l'ordre de 105-108 Bq/g)
– Haute activité (HA, de l'ordre de 109 Bq/g)

De même ce déchet pourra être classé suivant sa durée de vie :
– Vie Courte (Période inférieure à 30 ans)
– Vie Longue (Période supérieure à 30 ans)

La stratégie actuelle en matière de gestion des déchets radioactifs revient à concentrer les produits dangereux et à les confiner à l'abri des activités humaines par diverses barrières de protection. La qualité de ce confinement dépend de la capacité de ces barrières à retenir la migration des radionucléides vers l'environnement extérieur. Le concept multi-barrières adopté consiste à interposer entre la biosphère et les déchets radioactifs une succession d'ouvrages de confinement.
Les solutions pour les différentes classes de déchets sont récapitulées dans le tableau suivant :

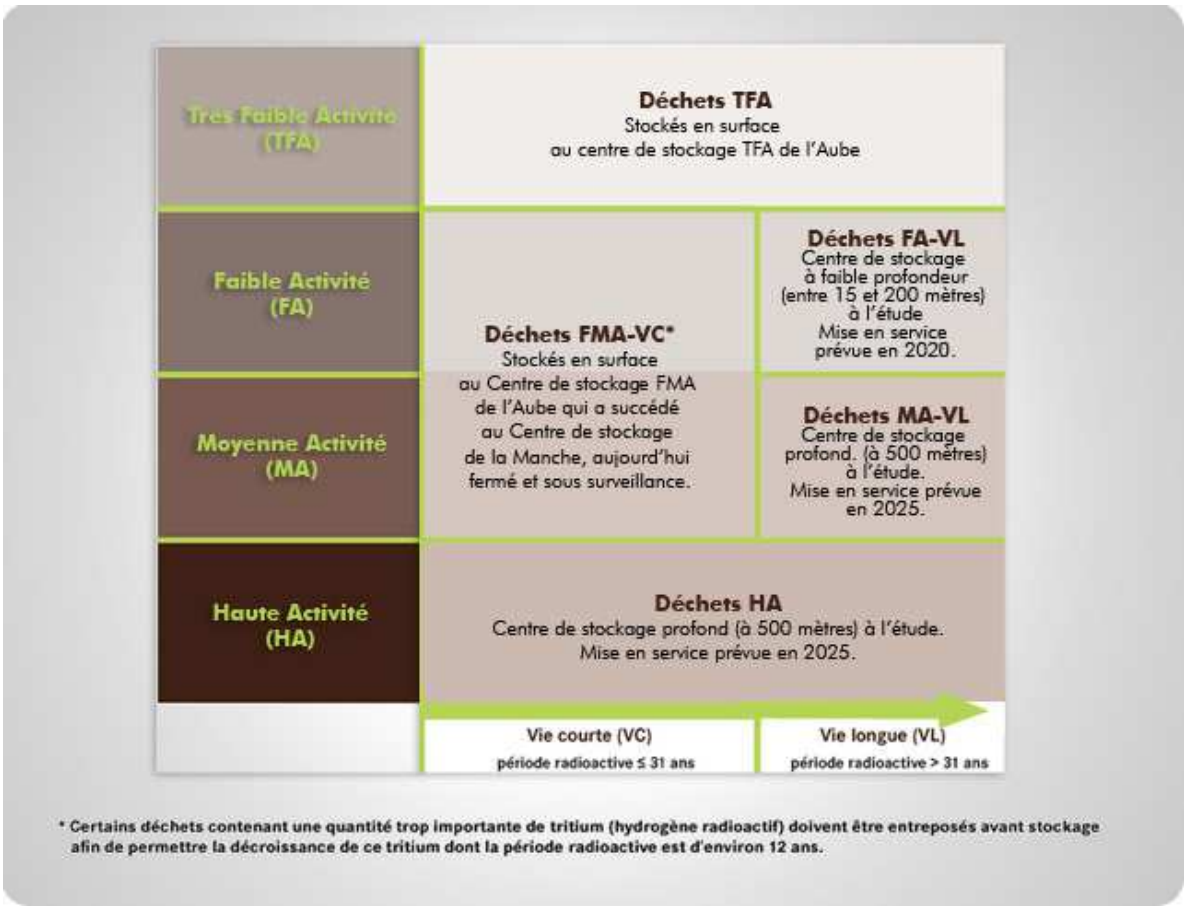


Figure 1.2: Classification des déchets nucléaires et solutions de gestion

1.3 Stockage souterrain

Les déchets à vie longue et à haute activité sont les moins volumineux, mais ils représentent l'essentiel de la radioactivité engendrée par la production de l'électricité nucléaire. Ils contiennent une proportion importante de radio-éléments de courtes et de longues périodes se chiffrant parfois en millions d'années pour certains colis de déchets. Le stockage doit être pensé de façon à éviter une quelconque contamination radioactive émanant des déchets durant une période très longue, cette période pouvant donc atteindre des millions d'années. L'option étudiée par l'ANDRA est le stockage dans des couches géologiques profondes, une formation argileuse du Callovo-Oxfordien située dans le département de la Meuse. Avant la mise en place d'un possible projet industriel, l'ANDRA doit montrer que les risques associés sont connus, estimés et maîtrisés. L'ANDRA a développé dans ce but un laboratoire souterrain à Bure (Meuse), situé à 500 mètres de profondeur, permettant d'effectuer des expériences in-situ. Creusé à partir de 2000, ce laboratoire souterrain de Meuse/Haute-Marne (figure 1.3) permet ainsi l'observation et la mesure in situ des propriétés des argiles du Callovo-Oxfordien. Il permet aussi la mise au point de techniques d'ingénierie de soutènement et de creusement.

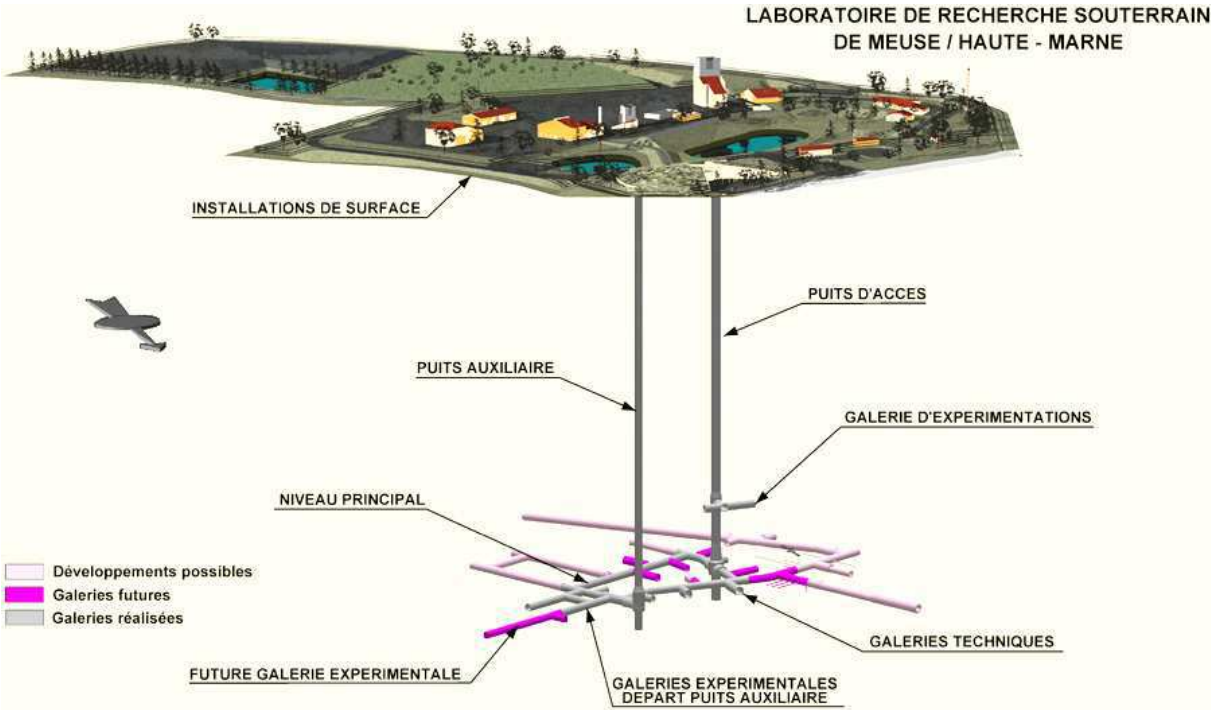


Figure 1.3: Schéma du laboratoire souterrain de Bure.

La Figure 1.3 montre un schéma de ce laboratoire. On peut noter les grands puits d'accès de grand diamètre (5 et 6 mètres) qui forment le lien entre la surface et la partie souterraine ainsi que le système de galeries souterraines implantées directement dans la couche argileuse du Callovo-oxfordien.

La Figure 1.4 montre un exemple de galerie où des expériences sont effectuées.



Figure 1.4 Exemple de galerie au sein du laboratoire souterrain.

L'objectif de ces expérimentations est de compléter les données déjà acquises sur les caractéristiques de la roche argileuse et ses capacités à confiner des déchets radioactifs et d'étudier la réponse de la roche aux perturbations induites par le stockage. Elles permettent de recueillir des données de nature géomécanique, géochimique et thermique portant notamment sur

– la caractérisation de l'eau contenue dans la roche
– le comportement mécanique de la roche après creusement
– le comportement thermique de la roche suite à un réchauffement (induis par les colis HA au sein de l'argilite)
– les propriétés de diffusion et de rétention des éléments radioactifs.

1.4 L'argilite



Figure 1.5: Bloc d'argilite

La couche géologique, la roche hôte, est la barrière ultime qui intervient en dernier lieu, après les lignes de défenses constituées par le conditionnement des colis, les conteneurs et la barrière ouvragée. Il s'agit d'une couche argileuse de plus de 150 millions d'années, datant

du Jurassique. Les qualités mécaniques de cette formation qui s'ajoutent aux remarquables qualités de rétention, de compacité et de faible perméabilité font de cette formation un milieu particulièrement propice pour accueillir des déchets de haute activité à vie longue.

Les propriétés de ce matériau en lien direct avec ce travail seront présentées au chapitre 8.

2. Ecoulements diphasiques en milieux poreux

2.1 Introduction

Les écoulements diphasiques en milieu poreux peuvent être étudiés à différentes échelles et suivant différentes techniques (cf. Fig. 2.1). Les techniques de simulation directe à partir de la discrétisation des équations de Navier-Stokes ou suivant des approches de type Lattice Boltzmann peuvent être utilisées pour étudier les écoulements directement à l'échelle des pores. Le coût de calcul de ces méthodes (cf. Joekar-Niasar et al. 2010) en limite cependant sérieusement l'intérêt étant donné le nombre très réduit de pores que l'on peut considérer en pratique, spécialement en 3D.

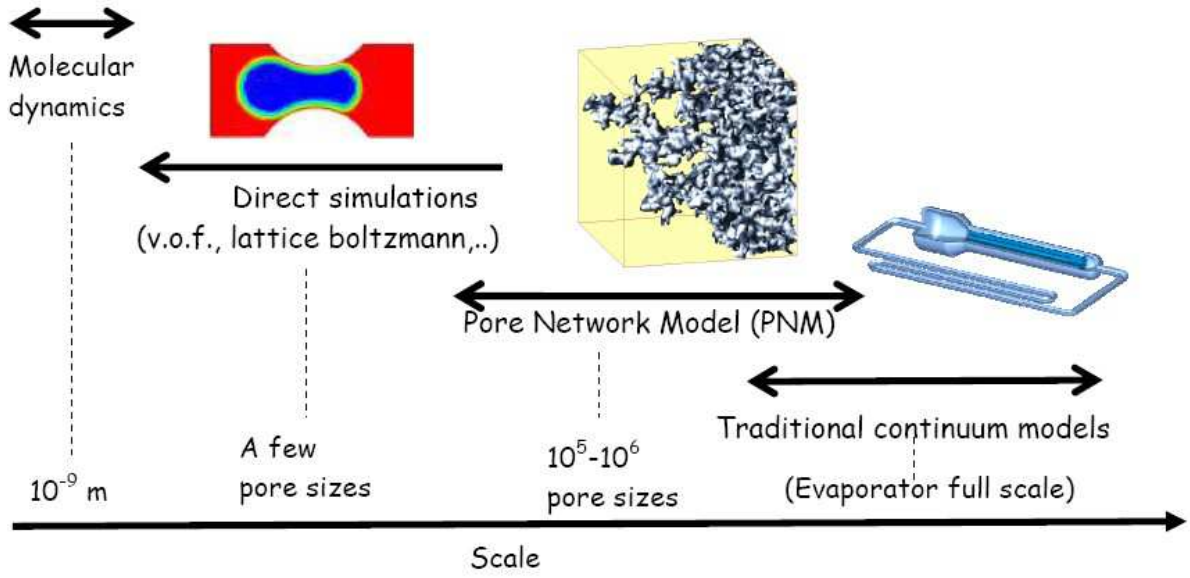


Fig.2.1. Quelques approches des écoulements diphasiques en milieu poreux (tiré de Ben Nasrallah et Prat 2013).

L'approche la plus classique et de loin est celle développée dans le cadre de l'approche continue des milieux poreux. Cette approche, dont quelques caractéristiques clés sont rappelées ci –dessous, est l'approche classique en ingénierie. C'est celle utilisée par l'ANDRA pour l'étude des transferts de gaz au sein du stockage.
Dans le cadre de ce travail, nous utilisons principalement une approche qui peut être qualifiée de mésoscopique, au sens elle permet d'étudier les écoulements à une échelle intermédiaire entre l'échelle des pores ou des simulations directes et les échelles macroscopiques. Il s'agit l'approche réseau de pores, voir par exemple Joekar-Niasar et al. 2010 et les références citées dans cet article. Pour un coût de calcul donné, cette approche permet en particulier de considérer des systèmes contenant un bien plus grand nombre de pores que les simulations

directes. Des détails sur cette approche et plus généralement sur l'étude des écoulements diphasiques à l'échelle du réseau de pores sont donnés dans la suite de ce chapitre.

2.2 Le modèle diphasique classique dans le cadre de l'approche continue

Le modèle permettant de calculer les écoulements de deux fluides non-miscibles dans le cadre de l'approche continue classique des milieux poreux peut être considéré comme une extension essentiellement empirique du modèle de Darcy décrivant les écoulements monophasiques. La démonstration mathématique du bien-fondé des équations de ce modèle à partir de techniques de changement d'échelle (homogénéisation, prise de moyenne volumique) a bien été réalisée (voir par exemple Whitaker (1986) et les références cités dans cet article) mais seulement sous la très forte hypothèse que l'interface liquide-gaz est immobile.

L'hypothèse de l'équilibre capillaire local

Physiquement cette hypothèse rejoint en partie une hypothèse fondamentale du modèle jouant un rôle clé dans l'analyse présentée dans la partie II de cette thèse sur le drainage hyperlent. Cette hypothèse fondamentale est l'hypothèse de l'équilibre capillaire local. Cette hypothèse consiste à considérer que la distribution des phases à l'échelle du volume élémentaire représentatif (VER) est gouverné uniquement par la capillarité. C'est une conséquence de la séparation d'échelle entre la taille du VER (échelle à laquelle les effets visqueux sont négligeables comparés aux effets capillaires) et l'échelle macroscopique (échelle à laquelle les chutes de pression dues aux effets visqueux sont notables, voire prépondérantes suivant les applications).

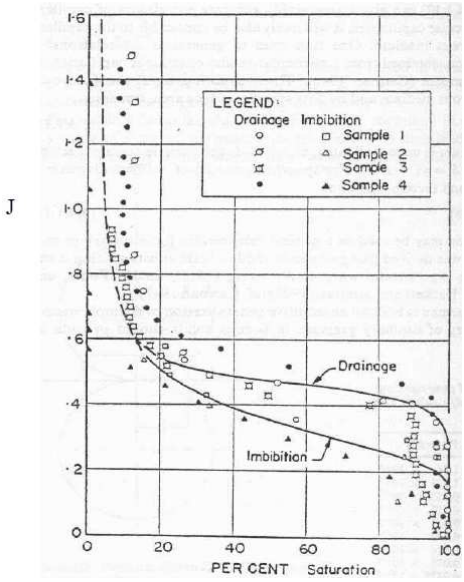


Figure 2.2. Exemple de courbe de rétention. : Courbes de pression capillaire en drainage et en imbibition (tirée de l'ouvrage de Scheidegger(1974). J est la fonction de Leverett (Leverett 1941). $J = \frac{P_C}{\sigma}\left(\frac{K}{\varepsilon}\right)^{1/2}$

La succession des équilibres capillaires est décrite dans le cadre de ce modèle par la courbe de rétention,

$$P_c(S) = P_g - P_\ell \qquad (1)$$

où la différence de pression entre le gaz (supposé non-mouillant) et le liquide (considéré comme le fluide mouillant) n'est supposée dépendre que de la saturation *S*. Etant intéressé dans la suite par des situations de drainage (déplacement d'un fluide mouillant (l'eau) par un fluide non-mouillant (l'hydrogène)), l'effet des hystérésis ne sont pas pris en compte. La courbe de rétention considérée sera celle correspondant à un drainage primaire. Un exemple de courbe de rétention est montré sur la Figure 2.2.

Loi d'écoulements
Les lois d'écoulements sont basées sur les lois de Darcy généralisées. L'idée conceptuelle est que chaque fluide établit son propre chemin à travers l'espace des pores. Ainsi, on peut imaginer que chaque fluide s'écoule à travers son propre sous-réseau stable de pores et de canaux. Dans ces conditions, il apparaît assez naturel d'étendre le concept de perméabilité établi dans le cas monophasique. L'idée est de modifier la perméabilité en fonction de la saturation (seulement une fraction de l'espace des pores est accessible à un fluide du fait de la présence de l'autre fluide).

Si l'on accepte ce schéma, il est alors naturel d'écrire :

$$\mathbf{U}_\ell = -\frac{K_\ell(S_\ell)}{\mu_\ell}(\nabla P_\ell - \rho_\ell \mathbf{g}) \tag{2}$$

$$\mathbf{U}_g = -\frac{K_g(S_g)}{\mu_g}(\nabla P_g - \rho_g \mathbf{g}) \tag{3}$$

où $\mathbf{U}_\ell$ et $\mathbf{U}_g$ sont les vitesses de filtration dans chacune des phases, μ_g et μ_ℓ sont les viscosités dynamiques, ρ_g et ρ_ℓ les masses volumiques de chaque phase, K_g et K_ℓ les perméabilités effectives. Suivant l'hypothèse de l'équilibre capillaire local, les perméabilités effectives ne sont supposées ne dépendre que de la saturation pour un milieu donné.

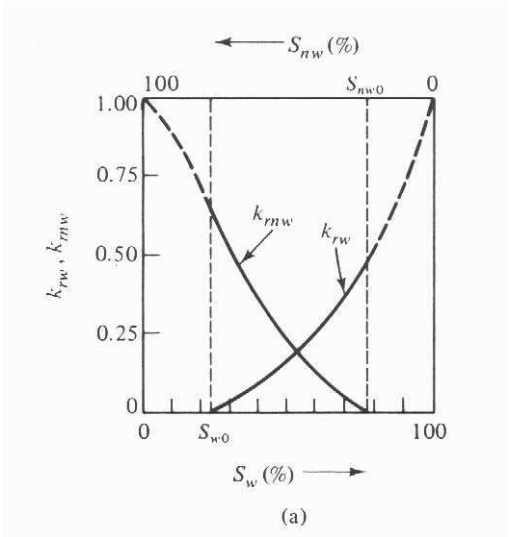


Fig.2.3. Evolution typique des perméabilités relatives avec la saturation. (l'indice w correspond au fluide mouillant, l'indice nw au fluide non-mouillant).

L'étape suivante est de séparer conceptuellement l'effet de la microstructure de l'effet relatif d'occupation de l'espace des pores par chaque phase. Ceci conduit à la notion de perméabilités relatives,

$$K_g(S) = k\, k_{rg}(S) \tag{4}$$

$$K_\ell(S) = k\, k_{r\ell}(S) \tag{5}$$

où k est la perméabilité intrinsèque du milieu poreux et k_{rg} et $k_{r\ell}$ sont les perméabilités relatives. Toujours sous l'hypothèse de l'équilibre capillaire local, les perméabilités relatives ne sont supposées dépendre que de la saturation. Un exemple typique d'évolution des perméabilités relatives est montré sur la Figure 2.3.

Il n'existe pas de théorie générale permettant de prédire les paramètres de ce modèle. Tout comme la courbe de rétention, les perméabilités relatives sont donc généralement obtenues expérimentalement. Pour des milieux suffisamment simples, il est cependant possible de les calculer par simulations numériques à partir d'images numériques de la microstructure obtenues par tomographie X par exemple. L'argilite n'appartient pas à cette catégorie et la caractérisation expérimentale est pour l'instant la seule voie possible (voir le dernier chapitre de cette thèse pour une discussion sur ce point).

Pour obtenir un système fermé d'équations, il faut rajouter les équations de continuité qui s'expriment par,

$$\varepsilon \frac{\partial \rho_g S_g}{\partial t} + \nabla.(\rho_g \mathbf{U}_g) = 0. \tag{6}$$

$$\varepsilon \frac{\partial \rho_\ell S_\ell}{\partial t} + \nabla.(\rho_\ell \mathbf{U}_\ell) = 0. \tag{7}$$

où ε est la porosité ainsi que l'équation que les deux phases occupent entièrement l'espace des pores.

$$S_g + S_\ell = 1 \tag{8}$$

Des alternatives à ce modèle très classique sont proposées dans la littérature. Nous citerons notamment les travaux de Hassanizadeh et collègues, e.g. (Niessner and Hassanizadeh, 2008) faisant intervenir explicitement comme variable l'aire interfaciale entre les deux fluides. Ce type de modèle est particulièrement intéressant pour les situations où imbibition et drainage interviennent simultanément au sein du domaine poreux. Dans notre cas, nous nous intéressons à une situation de drainage primaire et le recours à un modèle faisant intervenir l'aire interfaciale ne présente pas d'intérêt particulier.

2.3 Les écoulements diphasiques à l'échelle du réseau de pores. Les modèles de réseau de pores

Le diagramme de Lenormand

Les écoulements diphasiques ont été également très étudiés à l'échelle du réseau de pores, en particulier à partir d'expériences sur micromodèles, c'est-à-dire des systèmes poreux modèles

bidimensionnels formés par des canaux interconnectés (Figure 2.4). L'avantage de ces dispositifs de permettre la visualisation directe des phases lors du déplacement non-miscible.

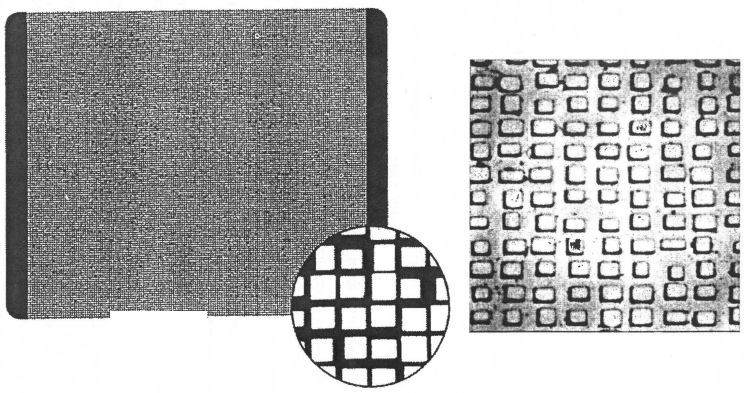


Figure 2.4. Le micromodèle utilisé par Lenormand et coll. (1988).

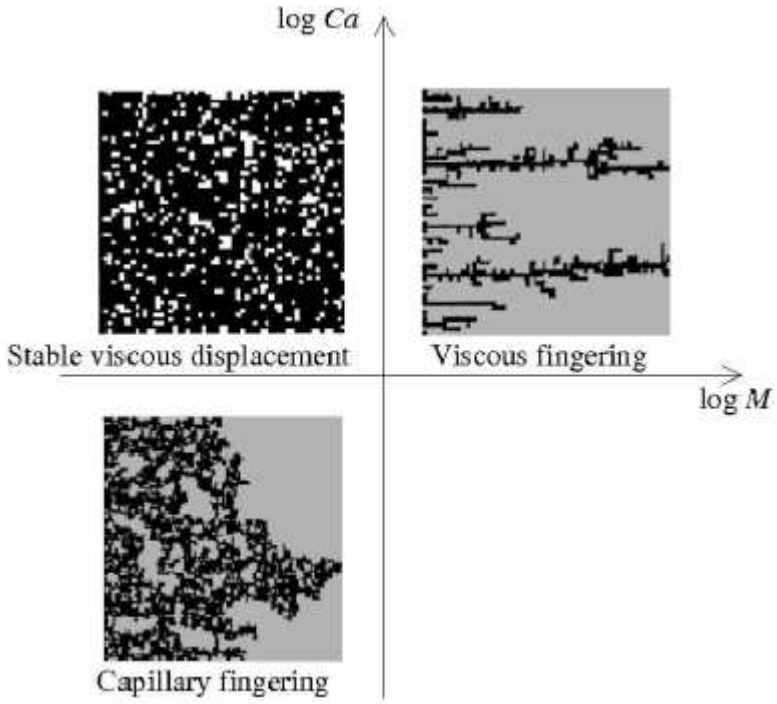


Figure 2.5 Le diagramme de Lenormand pour le drainage (Lenormand et al. 1988)

Dans ce qui suit, nous nous limitons au cas du drainage tel qu'il a été étudié par Lenormand et coll. (1988). Les expériences de Lenormand et al. (1988) concernent la situation de drainage primaire dans laquelle le milieu est initialement complètement saturé en fluide mouillant. Seul du fluide non-mouillant est injecté par un coté du micromodèle, le fluide déplacé pouvant quitter le système par la face opposée. Le principe des expériences est de faire varier le rapport de viscosité $M = \frac{\mu_{déplacé}}{\mu_{injecté}}$ entre les deux fluides ainsi que le nombre capillaire $Ca =$

$\frac{\mu_{injecté} U}{\gamma}$, où U est la vitesse de filtration (débit d'injection / section d'entrée du micromodèle) et γ est la tension de surface. Ces expériences permettent alors de mettre en évidence trois régimes d'écoulement asymptotiques que l'on peut présenter dans un diagramme (diagramme de Lenormand), Figure 2.5. Lorsque les effets capillaires sont négligeables devant les effets visqueux (grandes valeurs du nombre capillaire), on obtient le régime de digitations visqueuses si le fluide injecté est moins visqueux que le fluide déplacé et un déplacement stable (un front plat) si le fluide injecté est plus visqueux que le fluide déplacé. Lorsque les effets visqueux sont négligeables devant les effets capillaires (faibles valeurs du nombre capillaire), on obtient le régime de digitations capillaires, que l'on peut simuler simplement sur un réseau grâce à l'algorithme de percolation d'invasion (Wilkinson et Willensem 1983).
Il est important de réaliser que les valeurs du nombre capillaire marquant les domaines de validité des différents régimes asymptotiques sur le diagramme de Lenormand dépendent du milieu poreux considéré. Ainsi, l'erreur souvent commise qui consiste à prendre les valeurs du nombre capillaire indiquées dans l'article de Lenormand et coll. (1988) peut conduire à des prédictions totalement fausses. Ces valeurs ne sont valables que pour le milieu modèle considéré par Lenormand et al. (1988) ou des milieux de structure et de taille proches de celles de ce milieu modèle.
Les frontières des régimes asymptotiques dans le diagramme de Lenormand peuvent s'estimer théoriquement, e.g. (Yortsos et al. 1997), (Xu et al. 1998). Ceci sera précisé dans la partie du présent document consacrée au drainage hyperlent.

Modèle de réseau de pores
Notre thèse s'appuie très largement sur la technique des réseaux de pores. Cette technique, voir par exemple (Blunt et al. 2002), est basée sur une représentation simplifiée de l'espace des pores en termes de constrictions et de pores, cf. Figure 2.6).

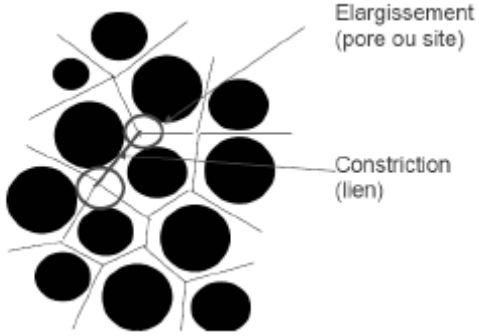


Figure 2.6. Représentation de l'espace des pores par un réseau de liens (correspondant aux constrictions de l'espace des pores) et de pores (correspondant aux cavités de l'espace des pores).

L'idée de base est donc de supposer qu'il est possible de partitionner l'espace poral en un système de cavités séparées les unes des autres par des passages plus étroits correspondant aux constrictions de l'espace des pores. On distingue réseaux de pores structurés et réseaux de pores non-structurés. Dans le cas des réseaux structurés, les pores sont situés aux noeuds d'une grille régulière, grille carrée par exemple en 2D ou grille cubique en 3D, et les constrictions correspondent aux arrêtes de ce maillage régulier. Un exemple de réseau cubique

est montré sur la Figure 2.7. Le réseau est construit de façon à prendre en compte certaines propriétés clés comme la porosité et la distribution en taille des pores ou celle des constrictions. Concernant plus particulièrement les écoulements diphasiques, il est évidemment essentiel de conserver l'aspect désordonné des milieux poreux. Ainsi les tailles des pores (représentés par des sphères sur la Figure 2.7) comme la taille des liens (c'est-à-dire les constrictions représentées par des canaux cylindriques sur le Figure 2.7) sont distribuées aléatoirement sur le réseau suivant des densités de probabilités (p.d.f.) choisies par l'utilisateur. La distance entre deux noeuds du réseau est appelée le pas du réseau.

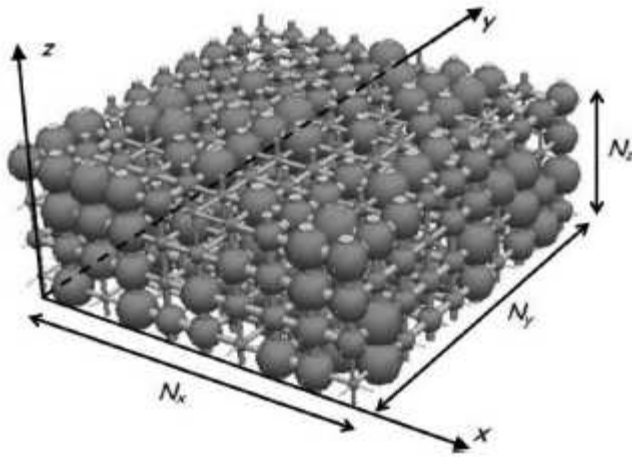


Figure 2.7. Un exemple de réseau cubique.

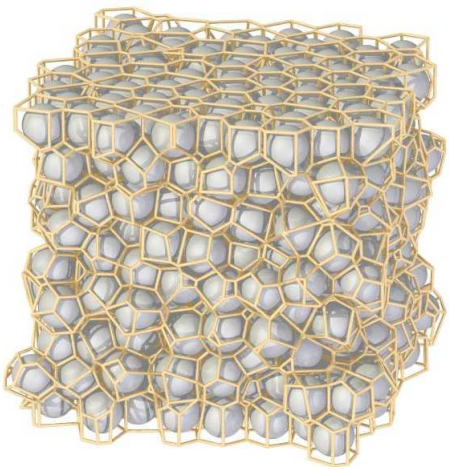


Figure 2.8. Un exemple de réseau non-structuré. web.mit.edu/... /www/images/physics/voronoi3.jpg.

Avec le développement des techniques d'imagerie des microstructures poreuses, il devient de plus en plus fréquent de disposer d'images numériques de la microstructure. Il est alors possible de construire le réseau directement en s'appuyant sur une image numérique (qui peut être aussi obtenue en générant numériquement des microstructures comme dans l'exemple de la Figure 2.8), voir par exemple Dong et Blunt (2009). Ce type de réseau a l'avantage de respecter la morphologie de l'espace des pores. Ainsi le nombre de coordination de chaque pore (nombre de voisins auxquels est relié un pore) peut varier et le pas du réseau n'est évidemment plus uniforme.

Dans cette thèse, nous ne considérons que des réseaux réguliers, des réseaux carrés en 2D et des réseaux cubiques similaires à celui montré sur la Figure 2.7. Le réseau cubique sera vu dans le contexte de la thèse comme un milieu poreux modèle.
Comme montré par Lenormand et coll. (1988), la représentation d'un milieu poreux comme un réseau permet un calcul relativement simple des écoulements diphasiques. Il est possible de développer des algorithmes (ils seront présentés dans les chapitres suivants) permettant de retrouver les régimes asymptotiques du diagramme de Lenormand (Figure 2.5) ainsi bien entendu que les régimes intermédiaires. On peut se référer à l'article plus récent de (Joekar – Niasar et al. 2010) pour un état de l'art sur ce type de modèle.
Il est possible de simuler également des situations d'évaporation avec ce type de technique, e.g. Prat (2002). Ceci sera présenté plus en détails dans la partie de la thèse consacrée à l'étude la pression de percée.

Modèle de réseaux de pores et effets micromécaniques
Comme on le verra dans la suite du document, il est possible que l'hypothèse de milieu rigide indéformable soit à remettre en question dans le cas de milieu comme l'argilite. Des modélisations simples des effets micro-mécaniques ont été proposées dans le cadre des approches réseaux. Par exemple, (Holtzman et. Juanes 2010) utilise un réseau dual de ressorts pour représenter la phase solide (cf Figure 2.9). Des irréversibilités sont prises en compte via la rupture possible des ressorts.

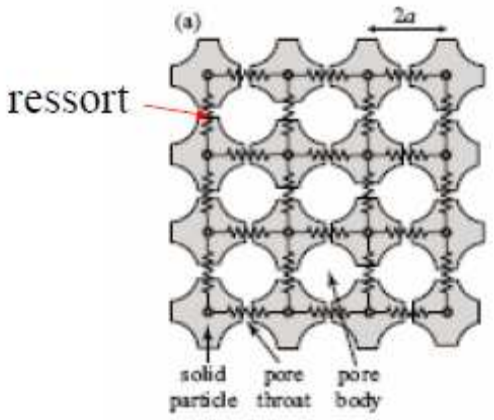


Figure 2.9 Représentation de la phase solide par un système de ressorts à seuil (une déformation irréversible se produit lorsque l'élongation du ressort dépasse un seuil). D'après (Holtzman et. Juanes 2010)

Ceci permet d'étudier de façon simplifiée les couplages hydro-mécaniques à l'échelle du réseau de pores en couplant un modèle de réseau de pores classique pour le calcul de l'écoulement à ce modèle de ressorts pour simuler la déformation de la phase solide. A partir de ce modèle, Holtzman et Juanes (2010) ont étudié le diagramme de phase du drainage pour un milieu deformable. L'étude montre un changement profond de la figure d'invasion lorsque le milieu devient suffisamment déformable. On trouve une invasion de type « fracturing » avec mise en place d'un nombre limité de chemins d'écoulements. Ces éléments seront précisés au Chapitre 7.
Nous utiliserons ce type de modèle dans notre étude sur la pression de percée (Chapitre 4 du manuscrit) et sur l'impact de déformations élastiques sur les figures d'invasion et (Chapitre 7).

3. Théorie de la percolation

Comme expliqué dans l'introduction à cette thèse, l'étude du déplacement de l'eau par l'hydrogène dans l'argilite dans les conditions du drainage hyperlent qui caractérise le stockage conduit à s'intéresser en priorité à la gamme des très fortes saturations au voisinage du point de percée. Comme on le verra plus en détails dans la suite, le point de percée, c'est à la dire la situation où pour la première fois la phase injectée forme un chemin percolant à travers le domaine poreux considéré correspond à une situation de percolation, du moins lorsque le déplacement est effectué dans une limite quasi-statique. On s'attend donc à ce que le comportement du système au voisinage de ce point de fonctionnement particulier soit typique des comportements proches d'un seuil de percolation.

L'étude des comportements au point de percolation et à son voisinage fait l'objet de la théorie de la percolation, e.g. Stauffer et Aharony (1992). La percolation peut être vue comme une transition de phase géométrique dont l'intérêt dépasse très largement l'étude des milieux poreux, e.g. Sahimi (1994). Nous nous contentons ici de quelques rappels utiles pour la suite de notre travail.

Seuil de percolation

Nous nous contenterons de parler de percolation sur des systèmes discrets, et plus particulièrement sur des réseaux composés de noeuds, ou sites, reliés entre eux par des liaisons. La percolation classique s'intéresse à deux problèmes similaires. Dans la percolation de liaisons, les liaisons du réseau peuvent être occupées (i.e., conductrices, ouvertes au passage d'un fluide, etc.), aléatoirement et sans corrélation avec l'occupation d'autres liaisons, avec une probabilité p. Ou bien, elles sont vacantes (i.e., non-conductrices, etc.), avec une probabilité $(1-p)$. Deux noeuds sont dits connectés s'il existe au moins un chemin ininterrompu de liaisons occupées entre eux. Dans une application aux milieux poreux, les noeuds représentent les pores, et les liaisons, les liaisons capillaires. Un groupe de noeuds connectés entouré de liaisons vacantes est appelé un amas. Si le réseau est de très grande extension, et la probabilité d'occupation p suffisamment petite, tout amas de noeuds connecté est de faible extension. Si par contre la probabilité d'occupation p est proche de 1, le réseau est entièrement occupé, sauf quelques petits trous. Pour une valeur de p bien définie, il y a une transition dans la structure topologique du réseau; cette valeur s'appelle le seuil de percolation de liens p_{cb}. C'est la valeur en dessous de laquelle il n'existe pas d'amas infini, et au-dessus de laquelle cet amas existe (l'amas infini est l'amas assurant la connexion entre les bords du réseau).

De manière similaire, il est possible de s'intéresser à la percolation de sites. Dans ce cas, les noeuds du réseau sont occupés avec une probabilité p, et les noeuds vacants avec une probabilité $(1-p)$. Deux noeuds plus proches voisins sont dits connectés s'ils sont occupés tous les deux, et deux noeuds sont connectés s'il existe un chemin de noeuds plus proches voisins connectés entre eux. On définit un amas comme étant un groupe de noeuds connectés, entouré par des noeuds vacants. Comme précédemment, il existe un seuil de percolation de sites p_{cs}, au-delà duquel il existe un amas infini, c'est-à-dire dont l'extension est celle du domaine. La figure 2.11 représente un réseau de percolation carré.

La valeur du seuil de percolation, aussi bien en percolation de sites qu'en percolation de liaisons, dépend de la structure du réseau. Le tableau I-1 indique les valeurs des seuils de percolation pour les réseaux les plus courants. Elle indique également la dimension de ces réseaux, et leur connectivité (nombre de noeuds plus proches voisins, ou encore nombre de liaisons rattachées à un noeud).

Réseau	Dimension	Connectivité	p_{cs}	p_{cb}
Nid d'abeille	2	3	0,6962	0,6527
Carré	2	4	0,5927	1 / 2
Triangulaire	2	6	1 / 2	0,3473
Diamant	3	4	0,4299	0,3886
Cubique simple	3	6	0,3116	0,2488
Cubique base centrée (BCC)	3	8	0,2464	0,1803
Cubique face centrée (FCC)	3	12	0,198	0,119

Tableau 1 Valeur des seuils de percolation pour les réseaux les plus courants, d'après Stauffer et Aharony (1992).

Taille et degré de connectivités des amas

En plus des seuils de percolation, plusieurs autres quantités caractérisent la connectivité des amas de percolation, et donc les processus de transport au sein du milieu. Nous n'en mentionnons ici que deux.

- La probabilité de percolation $P(p)$, qui, lorsque la fraction de sites occupés est p, est la probabilité pour qu'un site donné appartienne à l'amas infini de sites occupés lorsqu'il existe. Lorsque $p < p_c$, $P(p) = 0$.
- La longueur de corrélation $\xi(p)$, représente la taille caractéristique des amas pour $p < p_c$. Plus précisément, c'est la distance moyenne entre deux sites occupés appartenant à un même amas de taille finie. Pour $p > p_c$, c'est la longueur caractéristique à partir de laquelle le milieu peut être considéré comme macroscopiquement homogène. Pour $p > p_c$, $\xi(p)$ est donc la longueur qui caractérise le Volume Elémentaire Représentatif (V.E.R.) des modèles macroscopiques, si $\xi << L$ (où L représente la taille du réseau).

Lois d'échelle universelles pour les quantités de la percolation au voisinage du seuil

Tout comme le comportement de certaines propriétés thermodynamiques au voisinage d'une température critique, le comportement des quantités de la percolation au voisinage du seuil de percolation ne dépendent pas de la structure du réseau, ni du fait qu'il s'agisse de percolation de sites ou de liaisons. La valeur des exposants critiques qui caractérisent cette universalité ne dépend que de la dimension euclidienne D du réseau. Près du seuil de percolation p_c, nous avons les lois d'échelle suivantes :

$$P(p) \sim (p - p_c)^{\beta} \quad (1)$$

$$\xi_p(p) \sim | p - pc |^{-\nu} \quad (2)$$

$$S_{max} \sim L^{Df} \quad (3)$$

où S_{max} est la taille du plus gros amas (de l'amas infini si $p > p_c$), et L la taille du réseau. Les quantités β, ν, τ, et γ sont les exposants critiques des lois d'échelle. La quantité D_f est la dimension fractale de l'amas principal (D_f = 1,89 en 2D et D_f = 2,49 en 3D). Ils traduisent le

comportement du réseau au voisinage du seuil de percolation. Une conséquence de l'universalité de ces grandeurs est la possibilité de travailler avec des réseaux réguliers, plus faciles à générer et à traiter que des réseaux reproduisant la complexité géométrique d'un milieu poreux réel.
Il est à noter que ces lois sont valables pour des réseaux d'extension infinie. Lorsque l'extension du réseau est plus petite, des corrections doivent y être apportées (effets de taille finie).

Nous reproduisons dans le tableau 2 les valeurs des exposants critiques que nous avons présentés.

	Dimension du réseau	
Exposant	d = 2	d = 3
β	5 / 36	0,42
ν	4 / 3	0,88
D_f	~ 1,89	~ 2,50

Tableau 2 Valeurs des exposants critiques et de la dimension fractale en deux et trois dimensions, d'après Stauffer et Aharony (1992). La valeur des exposants critiques en deux dimensions est analytique; les autres valeurs sont numériques.

Application de la percolation au drainage en milieu poreux
Intéressons-nous au drainage lent d'un matériau poreux. Par " lent ", nous entendons que la vitesse de déplacement du fluide est faible, ce qui donne un nombre capillaire petit. Dans ce cas, nous nous trouvons dans la zone du régime à digitations capillaires du diagramme des phases, et le processus peut être modélisé comme un processus de percolation d'invasion, (Lenormand et al., 1988).

A chaque liaison du réseau de percolation est initialement affectée une valeur aléatoire, tirée par exemple dans une distribution uniforme sur l'intervalle [0,1]. Physiquement ces valeurs correspondent aux seuils d'invasion capillaire de chaque lien. Les frontières du réseau comprennent une zone d'invasion par laquelle pénètre la phase 1, et une zone de sortie, sur le côté opposé, par laquelle s'échappe la phase 2, refoulée par la phase 1. Initialement, tous les noeuds et les sites du réseau de percolation sont occupés par la phase 2. Puis, une liaison voisine de la zone d'invasion, ainsi que le site attenant, vont être déclarés envahis par la phase 1. Une étape quelconque du processus de percolation d'invasion est déduite de l'étape précédente par l'invasion d'une liaison, et du site attenant, par la phase 1. La liaison envahie doit pour cela être connectée à la zone de sortie, et voisine soit de la zone d'invasion, soit de la région du réseau précédemment envahie par la phase 1. Le critère d'invasion est, par exemple, de choisir parmi toutes les liaisons envahissables celle dont la valeur initialement affectée est la plus forte (ce qui correspond physiquement au lien de plus grand diamètre sur l'interface gaz-liquide).
On remarque que tout amas de phase 2 déconnecté de la zone de sortie ne peut plus être envahi par la phase 1; on l'appelle amas piégé. On constate également que les sites et les liaisons occupés par la phase 1 sont tous connectés, et constituent un seul amas, en tenant compte de la connexion par la zone d'invasion. Il convient de distinguer deux étapes importantes :

- **La percée (breakthrough)**. C'est le moment où la phase 1 (non-mouillante) atteint pour la première fois la face de sortie. Ceci est équivalent à la transition de

percolation puisque c'est le moment où se forme pour la première fois un amas infini en fluide non-mouillant (Figure 2.10);

- **Le point terminal**. C'est le second seuil de percolation, relatif cette fois à la phase non-mouillante (phase 2). Il correspond au moment où cette phase cesse d'être connectée de la face de sortie pour la première fois.

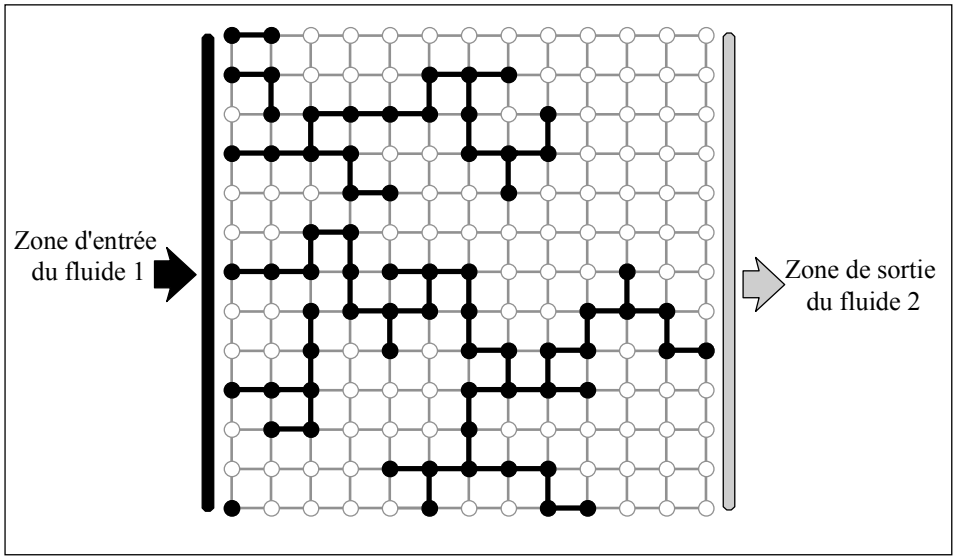


Figure 2.10. Représentation d'un réseau bidimensionnel carré de dimension 13x13 au seuil de percolation, au cours d'un processus de percolation d'invasion.

Le cas que nous venons de décrire correspond au cas d'une phase mouillante incompressible (les amas isolés ne peuvent être envahis du fait de l'incompressibilité).
La notion d'amas piégé, ou encore déconnectés des amas connectés à la face de sortie, peut être discutée. Dans le cas où la mouillabilité est forte, on constate la présence des films de liquide mouillant peuvent tapisser les parois solides. Un amas déconnecté au sens de la percolation peut alors être relié à d'autres amas par ces films, au sein desquels peut avoir lieu un écoulement.

Algorithme de percolation d'invasion
Dans sa version originale, Wilkinson et Willemsen (1983), l'algorithme a été décrit pour un réseau de sites. Nous donnons ici la version correspondant à un contrôle du processus d'invasion par les liens, comme cela est le cas en drainage.

- On considère un réseau de sites et de liens;
- Le réseau est initialement complètement saturé en fluide mouillant. Le fluide non mouillant peut rentrer par l'une des faces et le fluide mouillant peut s'échapper par la face opposée (Figure 2.11);
- Un nombre aléatoire p, choisi généralement entre 0 et 1 est assigné à chaque lien du réseau. Ce nombre correspond à la taille r_l de chaque lien (par exemple pour une distribution de probabilité uniforme : $p = \left(r_{l(\max)} - r_l\right) \Big/ \left(r_{l(\max)} - r_{l(\min)}\right)$, où $r_{l(max)}$ représente le rayon du plus grand canal dans le réseau et $r_{l(min)}$ le rayon du plus petit canal dans le réseau).

L'invasion est ensuite simulée de la façon suivante :

1/ les liens appartenant à l'interface (fluide mouillant-fluide non mouillant) sont identifiés;

2/ Piégeage : les liens sélectionnés en 1/ mais appartenant à un amas de fluide mouillant complètement entouré par le fluide non mouillant ne peuvent être envahis et sont éliminés de la liste des liens envahissables (en d'autres termes, un lien de fluide mouillant à l'interface fluide mouillant-fluide non mouillant ne peut être envahi que s'il est connecté à la face de sortie par un chemin de liens occupés par du fluide mouillant);

3/ le lien, parmi ceux identifiés à l'issue de 2/, ayant le plus petit nombre p (soit encore la plus faible pression capillaire seuil) est envahi ainsi que le pore auquel il donne accès;

4/ la procédure est répétée jusqu'à ce que le fluide non mouillant atteigne la face de sortie.

Percolation d'invasion - percolation classique

Une différence évidente entre la percolation d'invasion et la percolation classique réside dans le fait qu'il existe un amas unique de croissance de fluide envahissant, alors que dans le cas de la percolation ordinaire, l'apparition des sites actifs se fait aléatoirement dans le réseau, formant des amas isolés.

Toutefois, la structure de l'amas infini de fluide envahissant au seuil de percolation d'invasion est analogue à celle de l'amas infini de percolation ordinaire au seuil de percolation (Wilkinson et Willemsen 1983). En particulier, si l'on ne tient pas compte du piégeage des amas isolés, sa dimension fractale reste la même et égale à 1,89 pour un réseau bidimensionnel. Si l'on tient compte du piégeage, la dimension fractale devient égale à 1,82. Enfin, dans le cas tridimensionnel, les effets de piégeage sont beaucoup moins importants que dans le problème à deux dimensions, pour des raisons de structure du réseau; la dimension fractale de l'amas de percolation est égale à 2,5 avec ou sans piégeage.

Un résultat intéressant concerne la saturation en fluide non mouillant à la percée, i.e. lorsque le seuil de percolation est atteint. Lorsque la taille du réseau est L, le nombre de sites M appartenant à l'amas de percolation évolue comme :

$$M(L) \sim L^{Df} \tag{4}$$

où D_f est la dimension fractale de l'amas.

La saturation en fluide non mouillant évolue donc comme :

$$S_{nm} \sim \frac{L^{Df}}{L^{D}} = L^{Df-D} \tag{5}$$

où D est la dimension de l'espace euclidien.

On peut alors écrire :

- dans le cas 2D sans piégeage

$$S_{nm} \sim L^{-0,11} \tag{6}$$

- dans le cas 2D avec piégeage

$$S_{nm} \sim L^{-0,18} \tag{7}$$

- dans le cas 3D

$$S_{nm} \sim L^{-0,5} \tag{8}$$

La saturation en fluide non mouillant à la percée est donc dépendante d'échelle et devient très faible lorsque s'accroît la taille du réseau.

Percolation d'invasion en gradient

La percolation d'invasion permet de décrire correctement le drainage dans la limite où les effets capillaires dominent complètement le processus. Il est clair cependant que dans de nombreuses situations, d'autres forces comme les forces de viscosité ou de gravité, sont présentes. La considération de ces forces dans le cadre de la théorie de la percolation conduit à la théorie de la percolation en gradient, c'est-à-dire à l'étude de situations où la probabilité d'occupation p n'est pas uniforme spatialement comme dans la théorie classique mais au contraire varie spatialement. Cette théorie, voir Xu et al. (1998) et les références citées dans cet article, permet notamment d'étudier l'impact des effets visqueux en présence de forts effets capillaires, c'est-à-dire la transition entre le régime à digitation capillaire et les régimes visqueux du diagramme de Lenormand. Nous utiliserons certains résultats de cette théorie dans notre étude du drainage hyperlent (Partie II du présent document).

4. Nos hypothèses de travail.

En dehors du dernier chapitre de cette thèse, plus spécialement dédié à l'argilite, nous considérons dans tout le reste du document un milieu poreux modèle, qui n'est autre qu'un classique réseau cubique comme on peut le voir sur la Figure 2.7 ou pour quelques simulations bidimensionnelles un réseau carré. Un argument en faveur de ce choix et sa simplicité et le caractère générique des problèmes étudiés. Ce dernier point signifie que nous pensons en réalité que les principales conclusions que nous tirons des simulations sur ce milieu modèle s'appliquent aussi à des réseaux plus complexes, comme les réseaux non-structurés que l'on peut obtenir à partir d'images numériques de microstructures comme cela a été évoqué plus haut dans ce chapitre.

Comme indiqué dans le chapitre d'introduction, le scénario qui est privilégié est le scénario de drainage, c'est-à-dire celui d'un écoulement diphasique capillaro-visqueux selon la classification proposée par Marschall et al. (2005) (cf Figure 3 du chapitre introductif). Cependant il est à noter que la dissolution du gaz dans l'eau sera totalement négligée dans nos simulations.

References

ANDRA 2005: Dossier 2005 Argile. Collection Les Rapports, 2005.

S.Ben Nasrallah, M.Prat, A review of modelling approaches to heat and mass transfers in porous wicks, Chapter 1, p.1-27, in "Heat Pipes and Solid Sorption Transformers Fundamentals and Practical Applications", Edited by L.Vasiliev , CRC Press, 2013.

Blunt, M.J., Jackson, M.D.,Piri, M. and Valvatne, P.H. Detailed physics, predictive capabilities and macroscopic consequences for pore-network models of multiphase flow, *Adv. Water Resour.* **25**, 1069-1089, (2002)

Dong, H., Blunt, M.J. (2009) Pore-network extraction from micro-computerized-tomography images, *Phys. Rev. E,* Vol.80, 036307.

Holtzman R. and R. Juanes (2010) Crossover from fingering to fracturing in deformable disordered media Phys. Rev. E 82, 046305.

Joekar-Niasar, V.; Hassanizadeh, S. M.; Dahle, H., 2010, Dynamic Pore-Network Modeling of Drainage in Two-Phase Flow, *Journal of Fluid* Mechanics, vol. 655 , pp. 38 – 71.

Lenormand R., Touboul E., Zarcone C. (1988) Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J.Fluid Mech.* 189: 165-187.

M.C.Leverett, 1941, Capillary behavior in porous solids, Trans. AIME, 142, 152-169.

Marschall, P., Horseman, S.,Gimmi, T. (2005). Characterisation of gas transport properties of the Opalinus Clay, a potential host rock formation for radioactive waste disposal. *Oil &Gas Sci. Technol. – Rev. IFP* 60 (1) : 121-139.

Niessner, J. and S.M. Hassanizadeh, "A Model for Two-Phase Flow in Porous Media Including Fluid–Fluid Interfacial Area," *Water Resour. Res.*, **44**, W08439, 2008

M.Prat, Recent advances in pore-scale models for drying of porous media, *Chem. Eng. J.*, Volume 86, Issues 1-2, Pages 153-164 (2002).

M.Sahimi, 1994, Applications of percolation theory, Taylor and Francis.

Scheidegger, A.E. The physics of flow through porous media, University of Toronto press, (1974).

Stauffer D., Aharony A.. Introduction to percolation theory. Taylor & Francis, London, 1992.

Whitaker, S., Flow in porous media II: the governing equations for immiscible two-phase flow; Transport in Porous Media 1, 305-125 1886.

Wilkinson D.,Willemsen, J.F.(1983) Invasion percolation: a new form of percolation theory, *J.Phys. A: Math. Gen*. 16: 3365-3376.

Xu B., Yortsos Y., Salin D.(1998). Invasion percolation with viscous forces. *Phys. Rev. E* 57(1):739-751.

Yortsos Y., Xu B., Salin D. (1997) Phase diagram of fully developed drainage in porous media. *Phys. Rev. Lett.* 79(23): 4581-4584.

PARTIE I : SUR LA PRESSION DE PERCEE

CHAPITRE 2

Introduction

L'objectif principal de cette partie est l'étude de la pression de percée à partir de simulations numérique sur réseau de pores pour le cas du réseau de pores cubique considéré comme milieu poreux modèle.

Partant du constat que la pression de percée et plus généralement la caractérisation des transferts de gaz sont étudiées le plus souvent à partir d'expériences de drainage (cf le dernier chapitre de ce manuscrit) ou de séchage (voir par exemple (M'Jahad 2012)), notre étude est basée sur la simulation de ces deux situations : drainage et séchage. Ceci a notamment exigé la prise en compte de l'effet Kelvin dans les modèles de réseau du séchage. Il est alors intéressant de noter que l'examen de la littérature a montré que cet effet n'avait jamais été pris en compte dans les travaux précédents sur la modélisation du séchage dans le cadre des approches réseaux.

Compte tenu de cet état de fait, cette partie est organisée en deux chapitres. Le premier présente le modèle de réseau du séchage avec prise en compte de l'effet Kelvin que nous avons développé. Le second est dédié à l'étude de la pression de percée.

Ces deux chapitres se présentent sous la forme de deux projets d'article rédigés en anglais.

Comme indiqué dans l'introduction générale à ce manuscrit, la détermination de la pression de percée est un sujet important dans le problème du stockage, étant donnée qu'une élévation trop importante de la pression du gaz au sein du stockage est susceptible d'entraîner des dommages mécaniques (fissuration) et plus généralement de modifier les conditions de fonctionnement du stockage.

Fixation d'eau par adsorption et condensation capillaire

Il est habituel de distinguer deux modes principaux de fixation de l'eau par un milieu poreux. Le premier mode est la capillarité qui permet de fixer l'eau directement en phase liquide lorsque le milieu poreux est mis en contact directement avec de l'eau liquide. Le second mode est l'adsorption. Ce mode est typiquement observé quand un milieu poreux initialement sec par exemple est en contact avec de l'air humide. Macroscopiquement, ce phénomène se traduit par une augmentation du poids de l'échantillon poreux, augmentation d'autant plus grande que l'humidité de l'air est élevée. L'interprétation microscopique est que les molécules d'eau contenues dans le mélange air – vapeur viennent se fixer chimiquement, on parle alors de chimisorption, ou physiquement par les forces intermoléculaires, on parle alors de physisorption, sur les parois des pores.

Si on se limite à la physisorption, il est également habituel de considérer que l'eau adsorbée forme des films liquides, d'épaisseur mono puis plurimoléculaire, tapissant les parois des pores pour les humidités relatives suffisamment faibles, c'est-à-dire inférieures à environ 40-50% pour un matériau comme l'argilite par exemple (M'Jahad 2012). Pour des humidités relatives supérieures, on parle de condensation capillaire, phénomène qui se traduit par la formation de ponts liquides et de ménisques à l'intérieur de l'espace des pores avec l'eau condensée pouvant occupée entièrement certaines classes de pores. Il est admis que le domaine des plus fortes humidités pour lequel le phénomène de condensation capillaire est prédominant peut être décrit en combinant l'équation de Kelvin, qui décrit la modification de l'équilibre thermodynamique lorsqu'il existe une différence de pression entre le liquide et le gaz adjacents à une interface liquide – gaz et la loi de Laplace qui permet d'exprimer ce saut de pression en fonction de la courbure de l'interface et finalement en fonction de la taille des pores via des hypothèses sur la géométrie de ces derniers.

Dans cette partie, nous admettrons à la suite de beaucoup d'autres auteurs, voir par exemple (Daïan 2012), la validité de l'équation de Kelvin – Laplace. Il est à noter que seul le phénomène de fixation/adsorption « capillaire » est pris en compte dans les modèles de réseau de pores du séchage présentés dans ce qui suit, étant donné que l'objectif est de modéliser le séchage au voisinage de la percolation (percée), ce qui correspond a priori à des humidités relatives élevées, du moins dans le cas du matériau, l'argilite, motivant nos développements.
Il n'en reste pas moins qu'il serait souhaitable pour plus de généralité d'étendre dans le futur les modèles présentés en prenant en compte également l'adsorption sous forme de films liquides. Une possibilité pour l'instant est d'interpréter les tailles de pores ou de canaux mentionnées dans les deux articles qui suivent comme des tailles effectives tenant compte de la présence d'un film liquide adsorbé (taille réelle = taille effective + 2 fois l'épaisseur du film adsorbé). Ce manque n'est toutefois pas de nature a priori à changer les principales conclusions que nous tirons des simulations sur réseau de pores.

Hypothèse sur la pression totale dans la phase gazeuse
Ce point est discuté dans (Mainguy 1999) et dans (Thierry et al. 2007). L'hypothèse la plus classique, du moins pour le séchage lent à des températures voisines de la température ambiante, est de supposer uniforme et constante, égale à la pression atmosphérique, la pression totale dans la phase gazeuse au sein du milieu poreux. A partir d'une modélisation dans le cadre de l'approche continue classique ne faisant pas cette hypothèse mais au contraire prenant en compte les possibles gradients de pression totale dans la phase gazeuse, (Mainguy 1999) conteste cette hypothèse et conclut que la pénétration du gaz au sein du milieu s'accompagne de gradients de pression non-négligeables pour un milieu suffisamment peu perméable (cas de certains bétons et a priori aussi de l'argilite). Il est à noter que dans son modèle les transferts externes ne jouent aucun rôle direct (l'humidité relative externe est directement imposée à la surface du milieu poreux). La cinétique de séchage est ainsi entièrement contrôlée par les transferts internes. Il est à noter qu'une telle approche peut conduire à des résultats non-physiques où le milieu poreux « produit » plus d'eau que le milieu externe peut en évaporer. En revanche, elle favorise évidemment un séchage rapide (on ne peut pas faire plus rapide vu que la résistance au transfert externe est complètement négligée) et donc la possible mise en pression du gaz.
La question du rôle de la pression de gaz est étudiée avec plus de détails dans (Thierry et al. 2007). Ainsi pour un béton haute performance (matériau peu perméable), l'hypothèse de pression constante serait acceptable, ce qui est en contradiction avec les résultats de Mainguy. En fait cette conclusion est atteinte en considérant notamment que la perméabilité intrinsèque pour un gaz est différente que celle pour l'eau et en considérant aussi l'effet Klinkenberg. Si une perméabilité intrinsèque au gaz dans le matériau sec plus grande que la perméabilité à l'eau du milieu saturé est effectivement observé pour l'argilite, il n'en reste pas moins douteux de conserver cette différence pour les états de saturation intermédiaire. Il semble donc que la question de la pression du gaz reste à creuser.
Quant à nous, nous avons travaillé dans le cadre de l'hypothèse classique de pression totale uniforme. L'idée est de procéder par étapes de complexité croissante. Le travaux précités, (Mainguy 1999), (Thierry et al. 2007), sont clairement une incitation à considérer une possible variation de la pression de gaz dans des travaux futurs. On peut noter que notre objectif est surtout d'analyser la détermination de la pression de percée via des expériences de séchage. Il se trouve que le milieu est alors toujours à saturation élevée et le séchage généralement très lent, ce qui ne favorise pas la mise en pression du gaz. On peut penser sur la base des travaux existants que l'aspect pression de gaz est donc du second ordre vis-à-vis de

cet objectif même si il est clair que seule une modélisation plus complète permettrait de le vérifier vraiment.

Références

Daïan J.F. 2012, Transferts en Milieux Poreux 1 et 2. Ouvrage téléchargeable sur Internet.

Mainguy M., 1999. Modèles de diffusion non-linéaires en milieu poreux. Application à la dissolution et au séchage des matériaux cimentaires. Thèse de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées.

M'Jahad S. (2012) Impact de la fissuration sur les propriétés de rétention d'eau et de transport des géomatériaux. Application au stockage profond des déchets radioactifs, Thèse Ecole Centrale de Lille.

Thiery M., Baroghel-Bouny V., Bourneton N., Villain G., Stéfani C., (2007) Modélisation du séchage des bétons, analyse des différents modes de transfert hydrique, Revue européenne de Génie Civil, vol ;11, n°5, pp. 541-577.

CHAPITRE 3 (PROJET D'ARTICLE)

PORE NETWORK MODELS OF DRYING WITH KELVIN'S EFFECT

P.Lefort[1,2], M. Prat[1,2,*]

[1]Université de Toulouse; INPT, UPS; IMFT, Avenue Camille Soula, 31400 Toulouse, France
[2]CNRS; IMFT 31400, Toulouse,France

Abstract
A pore network model of isothermal drying is presented. The model takes into account the capillary and viscous effects, the transport of vapour by diffusion in the gas phase and the Kelvin's effect. The model thus allows the simulation of drying in hygroscopic porous materials involving submicronic pores. The impact of Kelvin's effect on the drying process is investigated from pore network simulations varying the relative humidity in the external air for square and cubic networks with throats size in the range 5 - 15 nm.

1. Introduction

Pore network (PN) modelling is now a classical technique to study transport phenomena in porous media. The technique has been applied to drying problems since the early nineties, e.g. (Prat 1993) and references therein. The first model of this type, (Prat 1993), took into account only the vapour diffusion transport in the gas phase and the capillary effects. Since then many effects have been included in the drying PN models and this is reviewed in a recent paper, (Prat 2011). However, to the best of our knowledge, all the PN models published so far are for capillary porous media characterized by pore sizes greater than 100 nm -1 μm, i.e. where the Kelvin's effect can be neglected. The objective of the present article is to contribute to filling this gap. We thus propose a pore network model taking into account the Kelvin's effect. The Kelvin's effect refers to the modification of equilibrium vapour pressure $P_{vequ.}$ due to the curvature of liquid-gas interface and can be computed from the relationship,

$$\frac{P_{vequ.}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{4\gamma\cos\theta}{\rho_\ell\, d_t}\right) \tag{1.1}$$

where P_{vsat} is the saturation vapour pressure corresponding to a flat liquid – vapour interface, M_v is the vapour molecular weight, R the universal gas constant, T the temperature (assumed equal to $20°C$ throughout the paper), γ is the surface tension, θ the contact angle, ρ_ℓ the liquid density; d_t is the diameter of a pore assumed locally cylindrical.
As illustrated in Fig.1 for water and $\theta = 0.$, the Kelvin's effect is typically important for pore sizes lower than 100 nm. With such small pores, it is likely that viscous effects in the liquid phase are non negligible during the drying process owing to the high viscous resistance to the flow in nanopores (defined here as pores in the range [1nm – 100 nm]). As a result, we first present a PN model of drying with Kelvin's effect in the quasi-static limit, i.e. neglecting the

* Corresponding author : mprat@imft.fr

viscous effects, and then a PN model taking into account both the Kelvin's effect and the viscous effects.

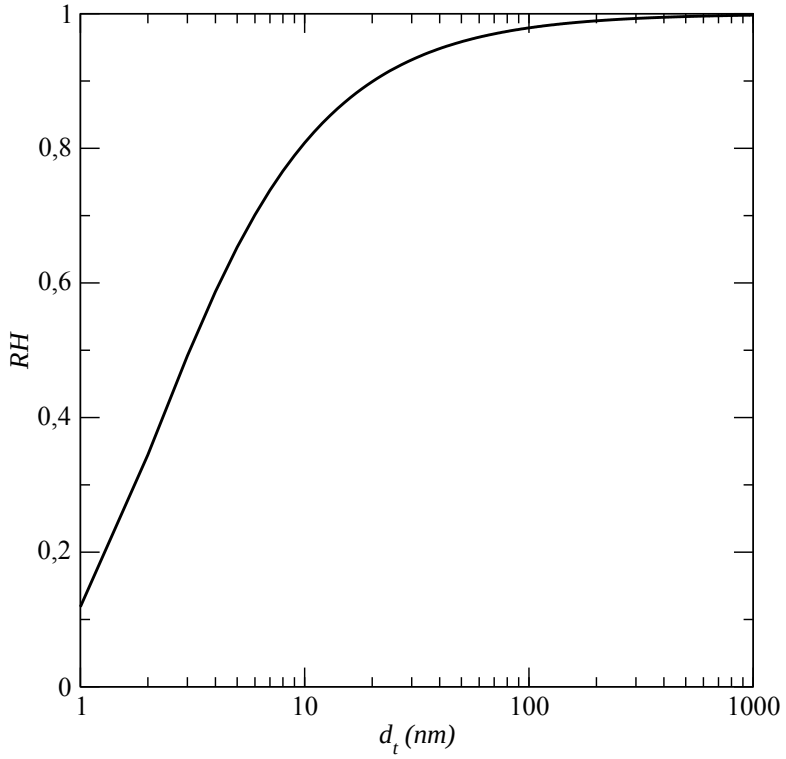


Fig. 1. Variation of relative humidity as a function of pore equivalent diameter according to Kelvin's relationship assuming a meniscus at maximum curvature at pore entrance.

Before going into the details of the pore network (PN) model, we first analyse the impact of combined action of Kelvin and viscous effect from classical continuum modelling. This will give insights into the physics of the drying process and thus provide guidelines for performing the PN simulations.
The paper is organized as follows. The main assumptions are presented in Section 2. Section 3 briefly discussed the structure or our pore networks. The modelling of vapour diffusion is presented in Section 4. Section 5 presents the pore network models of drying with Kelvin's effect when viscous effects are neglected. The modelling of viscous effects is presented in Section 6. Section 7 presents a simplified invasion percolation model of drying whereas results of simulations are presented and discussed in Section 8. A summary of the work and some possible future works are presented in the conclusion.

2. Main assumptions
The following assumptions are made :
- the network is non-deformable
- thermal effects are neglected on the ground that only slow drying is considered
- the pressure in the gas phase is uniform and constant, equal to the atmospheric pressure. This is also because only slow drying processes are considered.
- gravity effects are neglected. Because of the small pores considered, gravity effects can be expected to be negligible compared to viscous and/or capillary effects, e.g. (Lehmann et al . 2008)
- rarefaction effects on vapour diffusive transport due to confinement are neglected

- the liquid is the wetting fluid ($\theta < \pi/2$ where θ *is* the contact angle measured in the liquid)
- Liquid films are neglected. These include the thick capillary films, e.g. (Yiotis et al. 2012), (Chauvet et al. 2009), (Prat 2007), as well as the thin films associated with the concept of disjoining pressure (Carey 1992) The reason is that liquid films cannot develop over long distances in porous systems with small pores owing to the viscous effects in the films.
- water is considered as the liquid saturating the porous medium initially. Adapting the modelling to another volatile liquid is straightforward.

The phenomena taken into account are the diffusion of water vapour in gas phase, the capillary effects, the viscous effects in the liquid and the Kelvin's effect.

3. Pore network models

One usually distinguishes two types of pore networks: structured and unstructured, e.g. (Joeakhar et al. 2010). As in most of previous works on pore network modelling of drying, we consider a structured model, a square network in 2D and a cubic network in 3D. In this type of model; the pore space is conceptualized as a network of pores located at the nodes (sites) of network connected by smaller channels corresponding to the constrictions or throats between pores. These channels correspond to the bonds of network. Different options have been taken to distribute the pore space between the pores (sites) and the channels (bonds). Metzger et al. (2007) consider volumeless pores with the pore space volume only in the bond channels. (Prat 1993) distributed the pore space volume between pores and channels whereas (Yiotis et al. 2001) consider volumeless constrictions and all the pore space volumes in the pores. In what follows we adopt the same distribution as in (Yiotis et al. 2001), simpler than the one considered in (Prat 1993). The throats / bonds control the transport (viscous resistance, diffusive resistance) and the capillary effects whereas the porosity is controlled by the volumes associated with the pores.

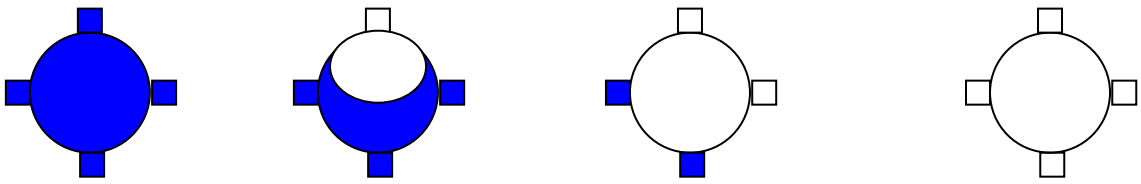


Figure 2. Sketh of various pore types considered in the PN model.

Cubic pores of size d_p are placed on the sites of network. The lattice spacing, i.e. the distance between two neighbour pores, is denoted by a. The size of pores is randomly distributed according to a given probability density function (p.d.f.) in the range $[d_{pmin}, d_{pmax}]$. The bonds are volumeless and characterized by their diameter d_t , also randomly distributed according to a given p.d.f. in the range $[d_{tmin}, d_{tmax}]$ with the constraint that the size of bond is smaller than the smallest size of adjacent pores. In this work, uniform p.d.f. are considered for both the pore and throat sizes. Thus all the sizes have the same probability.

At a given time during drying, a bond is either occupied by the liquid phase or the gas phase. Since a bond is volumeless, it cannot be partially occupied by one phase. The state of pores is more complicated. As sketched in Fig.2, one distinguishes

- the pores of type L fully filled by liquid
- the pores of type PE, i.e. partially invaded. Pores PE contains a liquid/gas interface.
- the pores of type CE, i.e. completely invaded, correspond to a pore containing gas only but adjacent to at least one liquid bond.
- the pores of type G :containing only gas and with all adjacent bonds filled with gas.

4. Vapour diffusive transport

The classical assumption to model the diffusive transport of vapour in the gas phase is to consider the diffusive transport as quasi-steady. This is based on the observation that the characteristic time of drying, i.e. the time needed to reach the final liquid distribution in network, is large compared to the characteristic time of diffusion process at pore scale, which is on the order of a^2/D, where D is the binary diffusion coefficient of vapour. The mass rate between the pore i and the pore j fully occupied by the gas phase (pores G or CE) through the bond connecting then is expressed using Fick's law as

$$\phi_{ij} = \frac{D M_v}{RT} d_{tij}^2 \left(\frac{P_{vj} - P_{vi}}{\ell}\right) \tag{1}$$

where P_v is the vapour partial pressure. The length ℓ is specified below.

A linear system of equations is obtained by expressing the mass conservation in each pore i filled with gas (pores G or CE),

$$\sum_j \phi_{ij} = 0. \tag{2}$$

where index j refers to the neighbour pores connected to pore i by a gaseous bond.

When pore i is of G type, all adjacent bonds are gaseous (i.e. occupied by gas phase). Then ℓ = a and P_{vj} is one of the unknows to be computed if neighbour pore j is G or CE type. When neighbour pore j is of PE type, then the partial pressure is known in pore j and equal to the equilibrium vapour partial $P_{vj} = P_{vequ}$.

When pore i is of CE type, then $\ell = a$ when bond ij is gaseous with $P_{vj} = P_{vequ}$ when pore j is of PE type and P_{vj} unknown to be computed when pore j is CE or G. When the adjacent bond ij is liquid then $\ell = a/2$ and $P_{vj} = P_{vequ}$.

It can be noticed that a bond connecting two pores both CE or G is necessarily gaseous.

The partial pressure is not computed in PE pores. It is known and equal to P_{vequ}.

The last step in forming the linear system allowing to compute numerically the vapour partial pressure in each gaseous node of network is to specify the boundary conditions on the surfaces limiting the porous domain. Zero flux condition are imposed on the impervious surfaces, if any. Two options have been considered so far in the literature on drying pore network modelling as regards the open surfaces, i.e. the surfaces through which the vapour can leave the porous medium. The simpler one (referred to as option #1) consists in expressing the boundary condition using an expression of the form,

$$\phi_{ij} = \frac{D M_v}{RT} d_{tij}^2 \left(\frac{P_{v\infty} - P_{vi}}{\delta}\right) \tag{3}$$

where $P_{v\infty}$ is the vapour partial pressure in the surrounding air far from the porous medium ($P_{v\infty}= RH_\infty P_{vsat}(T)$, where RH_∞ and $P_{vsat}(T)$ are the relative humidity and equilibrium vapour partial pressure on a flat liquid - gas interface respectively) and δ is a length scale characterizing the external mass transfer (thickness of external mass boundary layer (BL) typically in convective drying for example). Although rarely considered, the length δ can be made possibly dependent on the position at the surface (so as to simulate possible variations of BL thickness over the surface).
The second option, e.g. (Laurindo et Prat 1998) consists in placing computational nodes in external gas layers adjacent to porous surfaces so as to compute the vapour partial pressure field also in the external boundary layers. For simplicity option #1, i.e. Eq.(3), has been selected in the present effort.

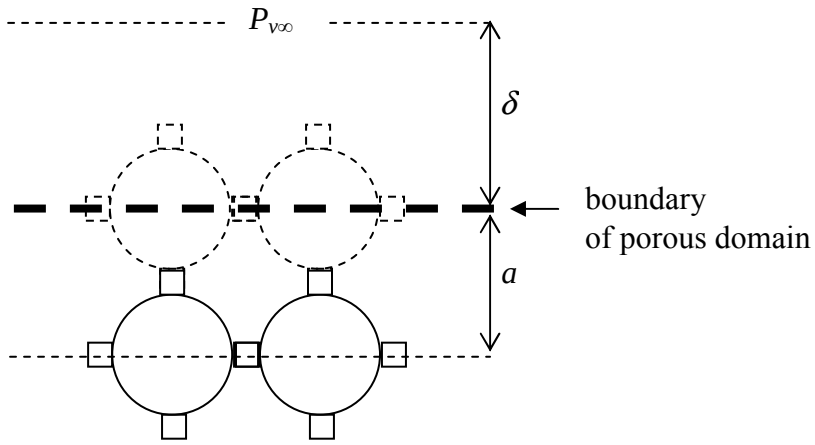


Figure 3. Sketch of network pores at the evaporative boundary of porous domain

For a pore i of type CE or G localized at the interface between the network and the external air the mass flux between the pore and the external air is thus expressed as (see Figure 3),
.

$$\phi_{ij} = \frac{D M_v}{RT} d_{tij}^2 \left(\frac{P_{v\infty} - P_{vi}}{\delta + a}\right) \tag{4}$$

5. PN model of drying with Kelvin's effect in the quasi-static limit. Capillary drying model.
As mentioned in the introduction, the consideration of Kelvin's effect is first performed in the quasi-static limit, i.e. when the viscous effects in liquid phase can be neglected (sufficiently thin porous media and / or very slow drying, see section 8 for more details). This type of drying model, where viscous effects are neglected, is referred to as a "capillary" drying model.
To take into account the Kelvin's effect it is useful to recall first the classical PN model of drying for capillary porous media under the quasi-static assumption, e.g. (Prat 1993). A crucial aspect is that many liquid clusters can form during the drying process and evaporate simultaneously. This classical algorithm can be described as folllows:

- (1) each liquid cluster in the network is identified. A label is given to each cluster. This label is also given to each pore and throat belonging to the considered cluster. This task is performed using the deep-search algorithm, e.g. (Babalievski 1998).

• (2) the interfacial bond (an interfacial bond is a liquid bond located on the interface between the liquid and the gas in the network) of smallest capillary pressure threshold is identified for each cluster as well as the pore adjacent to this bond. According to Laplace's law the capillary pressure threshold of a bond of diameter d_t can be expressed as,

$$p_{cap} \approx \frac{4\gamma\cos\theta}{d_t} \tag{5}$$

Thus p_{cap} is the minimum pressure difference between the two fluids allowing the bond to be invaded by the gas phase. From Eq.(5), it is obvious that the selected interfacial bond in a given cluster is the one of largest diameter located at the cluster boundary..
The diameter of the selected bond in cluster #*n* is denoted by d_{sn}. The volume of liquid in the adjacent pore at the considered time is V_{sn}

• (3) The vapour partial pressure field is computed in the gas phase solving numerically the linear system corresponding to Eq. (2).

• (4) the evaporation rate F_n at the boundary of each cluster is computed from the vapour partial pressure field computed in step (3)

$F_n = \sum_k \phi_k$ where index k runs over all the interfacial bonds of the considered cluster with $\phi_k = \frac{DM_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{vi}}{a/2})$ where P_{vi} is the vapour partial pressure in the CE pore adjacent to interfacial bond *k*. When the interfacial bond is a bond at the surface of the porous domain, then $\phi_k = \frac{DM_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\ell_{ext} + a/2})$. The contribution of PE pore (there is only one PE pore at the boundary of a given cluster in the quasi-static limit) is taken into account by adding the contributions $\phi_k = \frac{DM_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{vi}}{a})$ of gas bonds connected to the PE pore. If the PE pore is located at the surface of porous domain, the contribution of the bond connected to external air is then $\phi_k = \frac{DM_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\ell_{ext} + a})$.

• (5) the time t_n^* needed to fully evaporate the liquid volume V_{sn} is compute for each cluster: $t_n^* = \rho_\ell V_{sn} / F_n$ where ρ_ℓ is the liquid density.

• (6) the pore identified in step (2) corresponding to $t_{c\min}^* = \min(t_n^*)$ is fully invaded

• (7) the phase distribution in network is updated, which includes the partial drainage / evaporation of the liquid contained in the other pores identified in step 2 : $\rho_\ell V_{sn}(t + t_{c\min}) = \rho_\ell V_{sn}(t) - F_n t_{c\min}$. The pore identified in step 6 is fully invaded.

The next step is to adapt the above algorithm to situations where the Kelvin's effect is significant. The Kelvin's relationship can be expressed here as

$$RH = \frac{P_{vequ}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{P_c}{\rho_\ell}\right) = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{2\gamma}{\rho_\ell r}\right) \tag{6}$$

where r is the curvature radius of a meniscus (considered as a spherical cap). As can be seen from Eq.(6), the consideration of Kelvin's effect implies that the vapour equilibrium partial pressure is not a constant anymore (we recall that temperature variations are neglected) but depends on the curvature of meniscii along the boundary of each cluster.
The crucial point is to estimate r properly. In the quasi-static limit considered in this section, the curvature of menisci along the boundary of a given cluster is constant spatially but varies (fluctuates) in time. This is a consequence of the quasi-static assumption that implies that the pressure is spatially uniform at any times in a given cluster. Under these circumstances, it is natural to impose the curvature corresponding to the capillary pressure threshold corresponding to the bond identified in step 2. Thus, for cluster #n

$$r = \frac{d_{sn}}{4\cos\theta} \tag{7}$$

A more refined option could be to vary r as a function of saturation in the PE pore (pore selected in step 2). In the present effort, the simpler option corresponding to Eq.(7) was chosen.
The vapour partial pressure at the boundary of a cluster is thus given by,

$$\frac{P_{vequn}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{4\gamma\cos\theta}{\rho_\ell d_{sn}}\right) \tag{8}$$

It is then worth noticing that this implies that the vapour equilibrium partial pressure differs between clusters. As a result, mass transfer in gas phase between clusters, i.e. evaporation-condensation mechanisms, are possible.
Furthermore, the consideration of Kelvin's effect imposes that the size of bonds that can be invaded are in the range $]\, d_{tc}, d_{tmax}]$ where d_{tc} is given by Kelvin's relationship,

$$HR_\infty = \frac{P_{v\infty}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{4\gamma\cos\theta}{\rho_\ell d_{tc}}\right) \tag{9}$$

If all the interfacial bonds are the boundary of a cluster are in the range $[d_{tmin}, d_{tc}]$, the cluster is "dead". No further invasion is possible. One can wonder whether such a cluster could grow after a while owing to condensation due to mass transfer in vapour phase from clusters having a higher vapour partial pressure at their boundary. It was assumed that this phenomenon, if any, was negligible.

6. PN model of drying with Kelvin's effect and viscous effects. Viscous-capillary drying models

This type of drying model, where viscous effects are taken into account is referred to as a "viscous-capillary" drying model.
As mentioned in section 5, the assumption of quasi-staticity implies a spatially uniform pressure in each cluster and only one pore is emptying in each cluster. Thus there is in this case only one pore of type PE at the boundary of each cluster. The consideration of viscous effects makes the situation more complex. The liquid pressure in a cluster is not spatially uniform anymore and as a result several pores of a given cluster can empty at the same time. This also implies that the vapour equilibrium partial pressure computed thanks to Kelvin's relationship (Eq.(6)) varies along the boundary of a given cluster since the curvature of menisci is not spatially uniform anymore.

The consideration of viscous effects in PN models of drying is discussed in (Metzger et al. 2007) and (Debaste 2008). The modelling of viscous effects presented in what follows is essentially similar to the one described in those references with of course the new feature represented by the consideration of Kelvin's effect. The modelling of viscous effects implies the computation of the pressure field inside each cluster.

6.1 Liquid pressure computation

The procedure to compute the pressure field in clusters is similar to the one used to compute the vapour partial pressure field in the gas phase (see section 4). The mass flow rate between two pores of L type, pore *P* and adjacent pore *i* both full of liquid, is computed as

$$Q_i = \frac{\rho_\ell K_\ell d_{ti}^4}{\mu_\ell a}(P_P - P_i) \tag{9}$$

where μ_ℓ is the dynamic viscosity of liquid and K_ℓ is a numerical factor ($K_\ell = \frac{\pi}{128}$ for a bond considered as a cylindrical channel for example).

If the adjacent pore is of PE type, it is usually assumed that the liquid pressure is equal to the atmospheric pressure (the capillary pressure jump is neglected in this pore). This gives

$$Q_i = \frac{\rho_\ell K_\ell d_{ti}^4}{\mu_\ell a}(P_P - P_{atm}) \tag{10}$$

However, it is of course possible to consider a pressure jump in a PE pore. One option is to consider a local (= within the pore) capillary pressure – pore saturation relationship (the saturation is then the liquid fraction in the pore). The simpler option adopted in the present work is to express the pressure jump in a PE pore as $P_{cpore} = \frac{4\gamma\cos\theta}{d_p}$, where d_p is the pore size. This sounds preferable to the classical option (Eq.10) in the case of nanoporous systems. Then,

$$Q_i = \frac{\rho_\ell K_\ell d_{ti}^4}{\mu_\ell \ell}(P_P - (P_{atm} - \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{pi}})) \tag{11}$$

If the adjacent pore is of type CE, there exists a meniscus stuck somewhere between pore *P* and the considered adjacent pore. Then, expressing the continuity of mass rates at the meniscus leads to

$$Q_i = \frac{D M_v}{RT} d_{ti}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{vi}}{\ell}) \tag{12}$$

with $\ell = a/2$.

If the considered *L* pore is in contact with the external air, then the flow rate between the pore and the external air is expressed as

$$Q_i = \frac{D M_v}{RT} d_{ti}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{vi}}{\ell}) \tag{13}$$

with $\ell = \delta + a/2$.
Forming the mass balance for each liquid pore, i.e.

$$\sum_{i=1,m} Q_i = 0. \tag{14}$$

with m = 4 in 2D and 6 in 3D, leads to a linear system which is solved numerically to obtain the liquid pressure in each pore of L type. The pressure in each *PE* pores is known and given by $P_{\ell PE} = P_{atm} - \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{pPE}}$.
The problem is actually non-linear because one does not in advance which pores must be considered as PE. In others terms, the pores in which a meniscus is receding must be determined. The procedure is described in the next sub-section.

6.2 Drying algorithm
The drying algorithm with viscous effects and Kelvin's effect can be described as follows (see also the chart of algorithm in Fig. 4) :

- (1) Cluster identification : each liquid cluster in the network is identified. A label is given to each cluster. This label is also given to each pore and throat belonging to the considered cluster. This is performed using the deep search algorithm. This part can be optimized. For example, it is only useful to scan the cluster in which a pore is fully invaded. Tests can also be implemented to limit the number of calls to the cluster identification algorithm.

- (2) Identification of PE pores : Let P_{atm} be the la pressure in the gas phase (we recall that this pressure is assumed uniform and constant) and P_ℓ the liquid pressure in a pore adjacent to an interfacial bond (bond located on the liquid- gas interface). An interfacial bond can be invaded if $P_{atm} - P_\ell \geq p_{cap} = \frac{4\gamma\cos\theta}{d_t}$. Since the liquid pressure is not spatially uniform in the presence of viscous effects, several bonds and thus several pores can be invaded simultaneously An iterative procedure is necessary to determine the pores that must be invaded. Two main options have been considered in the literature, see (Metzger et al. 2007) and references therein to start the iteration procedure. Option #1 is to consider that only the meniscus in the interfacial bond of largest diameter is mobile. Option #2 is to consider that all the menisci at the boundary of a cluster are mobile. It seems that both options are about equally efficient. In this work, option #1 was adopted. The iteration loop is therefore started assuming that the bond of largest size along the boundary of cluster is invaded. The adjacent pore is therefore considered as PE. If PE pores already exist from previous steps at the boundary of cluster, then one starts the iterations assuming mobile menisci in all the already existing PE pores.

As a result, the computation of liquid pressure field P_ℓ can lead to identify several interfacial bond such that $P_{atm} - P_\ell \geq P_c = \frac{4\gamma\cos\theta}{d_t}$. The iterative procedure consists in considering only one new invaded bond, the one for which the difference $\varphi = (P_{atm} - P_\ell) - \frac{4\gamma\cos\theta}{d_t}$ is maximum. Then by repeating the procedure, several interfacial bonds are

eventually invaded until no new bond exists at the interface such that φ > 0. More details on the iteration procedure can be found in (Metzger et al. 2007) and (Debaste 2008).

• (3) .Computation of vapour partial pressure field in gas phase. This field is computed solving numerically the linear system corresponding to Eq.(2). The Kelvin's effect is taken into account using the equation $\frac{P_{vequ}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{(P_{atm}-P_\ell)}{\rho_\ell}\right)$ where P_ℓ is the pressure in the liquid (L) pore adjacent to the considered meniscus. If the cluster is dead, the condition $P_{vequ} = P_{v\infty}$ is imposed at the boundary of the cluster.

• (4) Computation of liquid pressure field P_ℓ in each cluster as indicated in section 6.1

• (5) Updating of interfacial bonds to be invaded. With the newly computed pressure field P_ℓ, new interfacial bonds may not satisfy the meniscus stability condition $P_{atm} - P_P < \frac{4\gamma\cos\theta}{d_t}$. Then, one goes back to step # 2, where as indicated only one new interfacial bond is invaded. Steps #1 to #5 are repeated until convergence, i.e. until there is no interfacial bonds anymore containing an unstable meniscus.

• (6) Computation of time step. The emptying time of each pore of type PE is determined from the computation drainage flow rate $Q_{PE} = \sum_{i=1,6} Q_i$ where Q_i is the flow rate between the considered PE pore and neighbour pore i. If neighbour pore i is of L type $Q_i = \frac{\rho_\ell K_\ell d_{ti}^4}{\mu_\ell \ell}((P_{atm} - \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{PE}}) - P_i)$. If neighbour pore i is also PE, $Q_i = \frac{\rho_\ell K_\ell d_{ti}^4}{\mu_\ell \ell}((P_{atm} - \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{PE}}) - (P_{atm} - \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{PEi}}))$. If neighbour pore i is of CE type and the bond between the pore PE and the pore CE is liquid $Q_i = \frac{D M_v}{RT} d_{ti}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{vi}}{\ell})$ with $\ell = a/2$; if the bond is gaseous or the neighbour pore i is of G type then $Q_i = \frac{D M_v}{RT} d_{ti}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{vi}}{\ell})$ with $\ell = a$.

When the PE pore is at the surface in contact with external air, then the mass flow rate through the porous domain / external air interface is computed as $Q_i = \frac{D M_v}{RT} d_{ti}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\delta + a/2.})$ if the surface bond is liquid and as $Q_i = \frac{D M_v}{RT} d_{ti}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\delta + a})$ if the bond is occupied by gas phase.

The emptying time t_{PE} is then given by $t_{PE} = \frac{\rho_\ell V_{\ell PE}}{Q_{PE}}$ where $V_{\ell PE}$ is the volume of liquid in the PE pore considered.

• (7) Emptying of PE pores The PE pore corresponding to $t^*_{c\min}$ = min (t_{PE}) is fully invaded and becomes of CE type. The volume of liquid in other pores of PE type is updated $\rho_\ell V_\ell(t + t_{c\min}) = \rho_\ell V_\ell(t) - Q_{PE} t_{c\min}$. One can then go back to step #1 and proceed with a new drying step as long as the overall evaporation rate is not too small (the overall evaporation

rate can become zero for a non-zero value of overall liquid saturation owing to Kelvin's effect. The overall evaporation rate is computed as

$$J = \sum_k J_k \tag{15}$$

By adding all the contributions from the bonds located at the surface of the porous domain ain contact with the external air. There are three cases. When pore *i* adjacent to the bond is of G or CE type the bond is gaseous and $J_k = \frac{D M_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vi} - P_{v\infty}}{\delta + a})$. When the adjacent pore is *L* the boundary bond is liquid and $J_k = \frac{D M_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\delta + a/2})$. When the adjacent pore is PE, $J_k = \frac{D M_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\delta + a/2.})$ if the bond is liquid and $J_k = \frac{D M_v}{RT} d_{tk}^2 (\frac{P_{vequ} - P_{v\infty}}{\delta + a})$ if the bond is gaseous.

It can be noticed that the evaporation rate *J* should be equal to the sum of PE pores emptying rates.

The drying algorithm with Kelvin's effect and viscous effects is summarized in Figure 4.

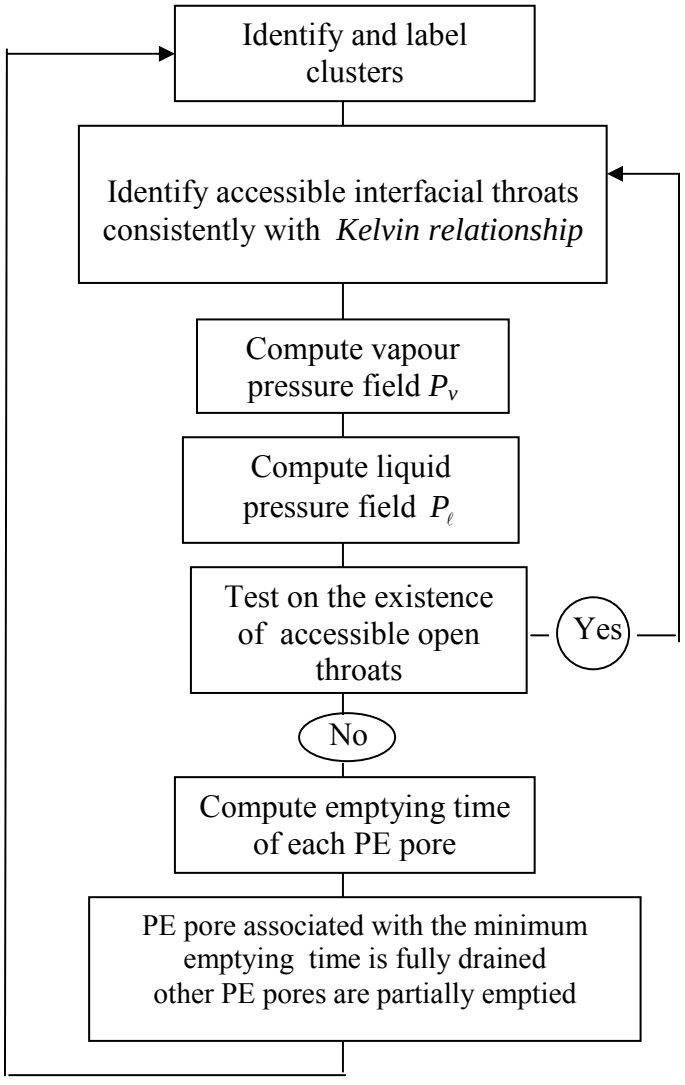


Figure 4. Chart of drying algorithm with viscous effects and Kelvin's effect.

7. IP drying model

The drying models presented in § 5 and 6 are dynamic drying models since they predict the evolution in time of the drying process. However, if one is only interested in the final state of drying, it is appealing to consider a simpler model, referred to as the invasion percolation (IP) drying model. The starting point is again the Kelvin's relationship allowing to link throat size and relative humidity at the surface of menisci in the network,

$$RH = \frac{P_{vequ}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{P_c}{\rho_\ell}\right) = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{4\gamma\cos\theta}{\rho_\ell d_t}\right) \tag{16}$$

Eq. (16) gives the relative humidity at the surface of a meniscus in a bond when the meniscus curvature is the greatest possible (curvature radius $\approx d_t / 2 / \cos\theta$). Any further increase in meniscus curvature would lead to the invasion of the bond.

Suppose that RH_∞ is the relative humidity in the air surrounding the porous sample. One can then as before define a critical throat size from the Kelvin's relationship as

$$d_{tcrit} = \left(\frac{M}{RT}\frac{4\gamma\cos\theta}{\rho_\ell \left|\ln(RH_\infty)\right|}\right) \tag{17}$$

For the medium to dry, the equilibrium relative humidity RH_e at the menisci at the surface or inside the porous medium must be greater than RH_∞ since the evaporation process is driven by the difference in vapour pressure between the porous medium and the external air. As a result, evaporation can take place as long as $RH_e \geq RH_\infty$. A simple drying algorithm is then to invade the network bond by bond using the IP algorithm allowing only the bond on the liquid-gas interface in the range $[d_{tcrit}, d_{tmax}]$ to be invaded.

8. Results and discussion

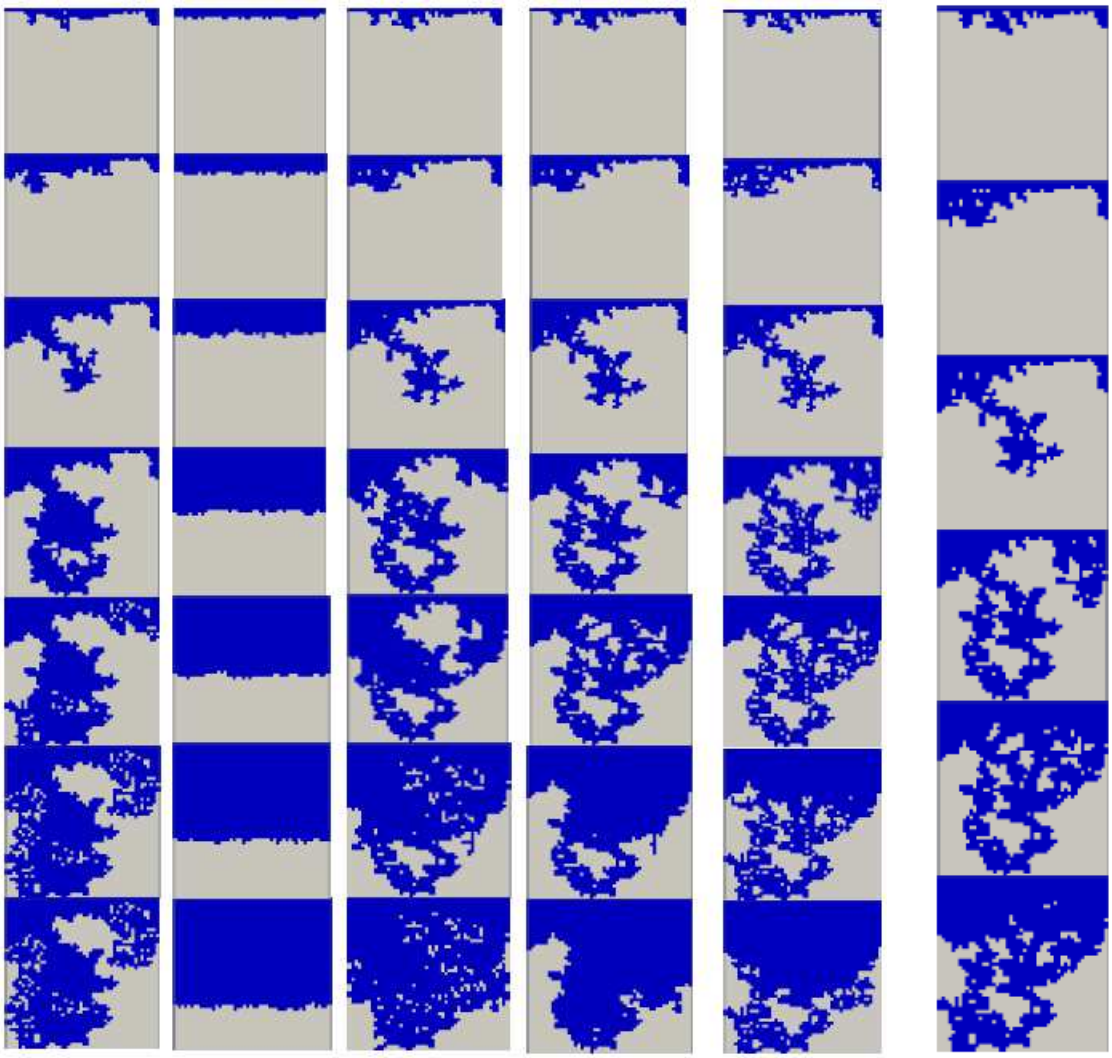
Except for the results presented in section 8.5, the pore-network simulations were performed considering a 50 x 50 2D square network with throat sizes randomly distributed between 5nm and 15 nm, which correspond to equilibrium relative humidity RH_{min} = 0.6492 and RH_{max}= 0.8658 respectively according to Kelvin's relationship. The lattice spacing is a = 100 nm. The external mass transfer length scale is δ = 5 cm. The overall size of network is therefore $L \approx 50$ a = 5 μm. The temperature is 20°C. This condition corresponds to a potential evaporation e_0 of 0.7 mm /day for a fully dry external air (RH_∞ =0.). The network is open on one side. Other sides are sealed.

In what follows the various PN drying models are referenced as :

- the IP drying model (described in §7)
- Capillary drying models (described in §5)
- Viscous capillary drying models (described in §6)

8.1 Patterns

Viscous effect + Kelvin $\mu_\ell = 10\,Pl$	Viscous effect no Kelvin $\mu_\ell = 10\,Pl$	Viscous effect + Kelvin $\mu_\ell = 10^{-5}\,Pl$	Viscous effect no Kelvin $\mu_\ell = 10^{-5}\,Pl$	Capillary drying No Kelvin	Capillary drying Kelvin



a) b) c) d) e) f)

Figure 8.1. Influence of viscous effects and Kelvin's effect on drying pattern. The liquid phase is in grey, the gas phase in blue. Vapour escapes from top edge of network. The patterns on a horizontal row correspond to the same number of invaded bonds.

Influence of viscous effects and Kelvin's effect on patterns is illustrated in Figure 8.1. These simulations were performed for $RH_\infty = 0.7345$ (which corresponds to the equilibrium vapour pressure for throat size of 7 nm).

As illustrated from the comparison between Figure 8.1b and Figure 8.1c, viscous effects tend, as expected, to stabilize the pattern. The extent of capillary fingers considerably reduces as a consequence of greater viscous effects. A similar effect is not obtained in the presence of Kelvin's effet (compare Figures 8.1a and 8.1c) for the conditions of these simulations. This is further discussed below. The Kelvin's effect essentially results here in more trapping as illustrated from the comparison between Figure 8.1c and Figure 8.1d and discussed in more

details below. As expected the simulations with a low viscosity (Figure 8.1c and 8.1d) leads to patterns quite similar to the purely capillary simulations (Figure 8.1f and 8.1e) which do not take into account the viscous effects. However, there are some differences in the pattern evolution that need to be explored in more details.

The impact of external relative humidity RH_∞ on drying patterns in the presence of Kelvin's effect when viscous effects are potentially high ($\mu_\ell = 10\,Pl$) is shown in Figure 8.2. We recall that the evaporation rate is proportional to (RH_{eq}- RH_∞) and that δ (5 cm) >> L (the size of network ≈ 5 μm). Thus the mean evaporation rate during the drying process increases with a decreasing RH_∞. As can be seen from Figure 8.2, the drying patterns change from quasi-static patterns (dominant capillary effects, negligible viscous effects) to strongly stabilized patterns when the mean evaporation rate is sufficient to induce strong stabilizing viscous effects. Note that the external relative humidities in Fig.8.2 are greater than the equilibrium relative humidity correspond to the smallest bond in network (RH_{min} = 0.649)

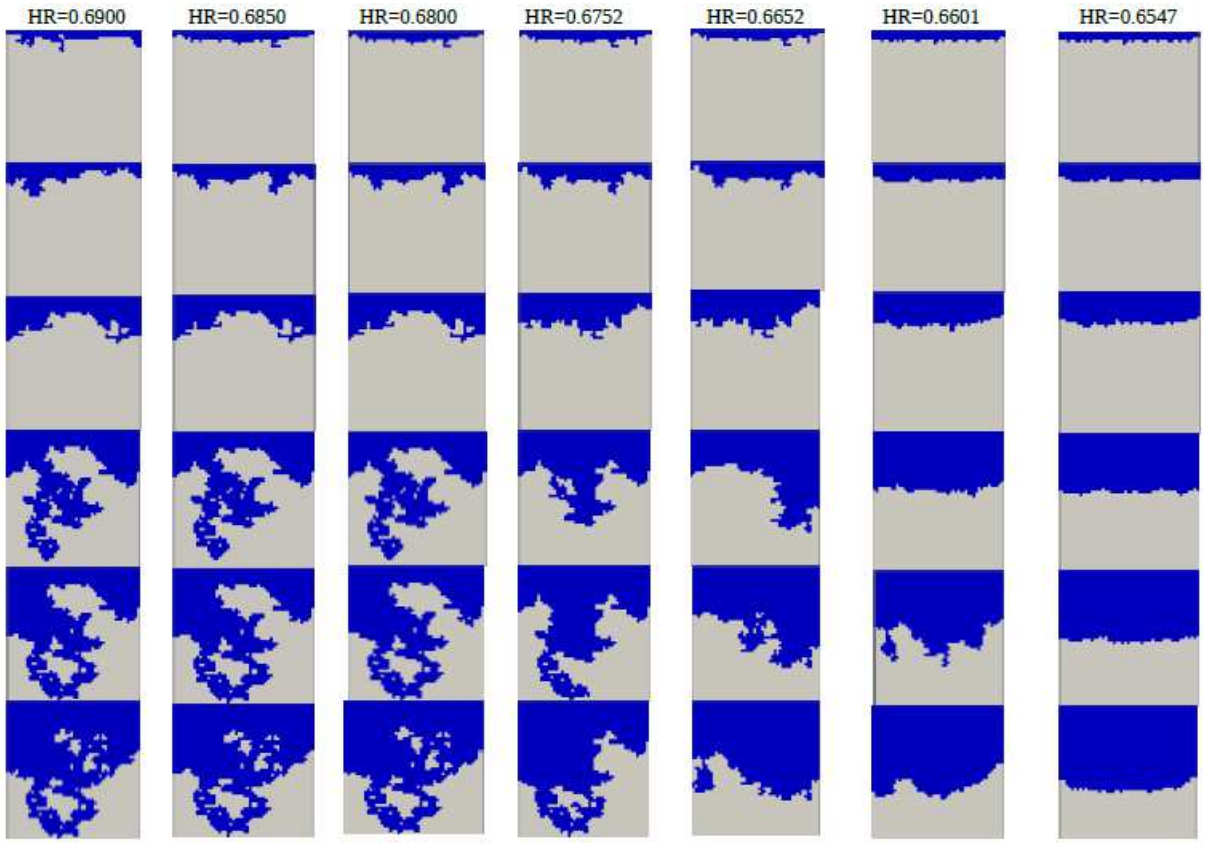


Figure 8.2. Influence of viscous effects and Kelvin's effect on drying pattern for various external relative humidity RH_∞. The liquid phase is in grey, the gas phase in blue. Vapour escapes from top edge of network. The patterns on a horizontal row correspond to the same number of invaded bonds.

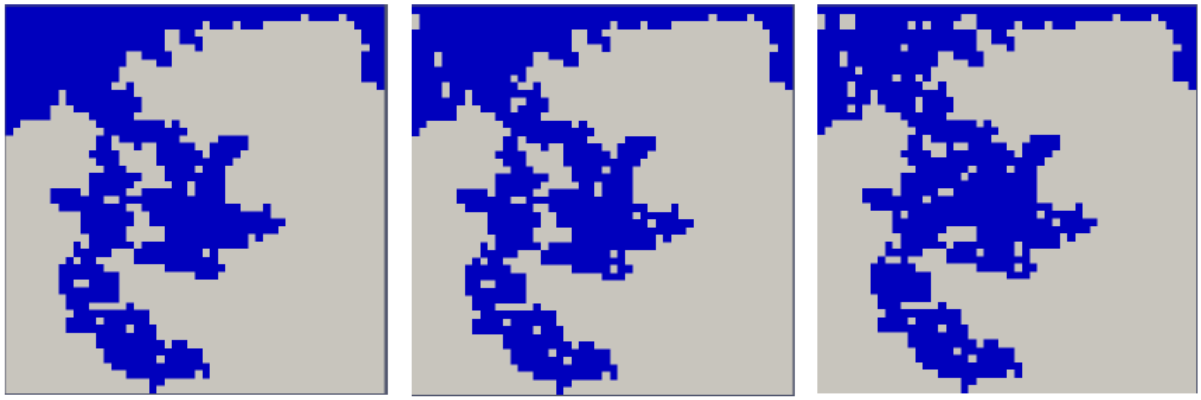
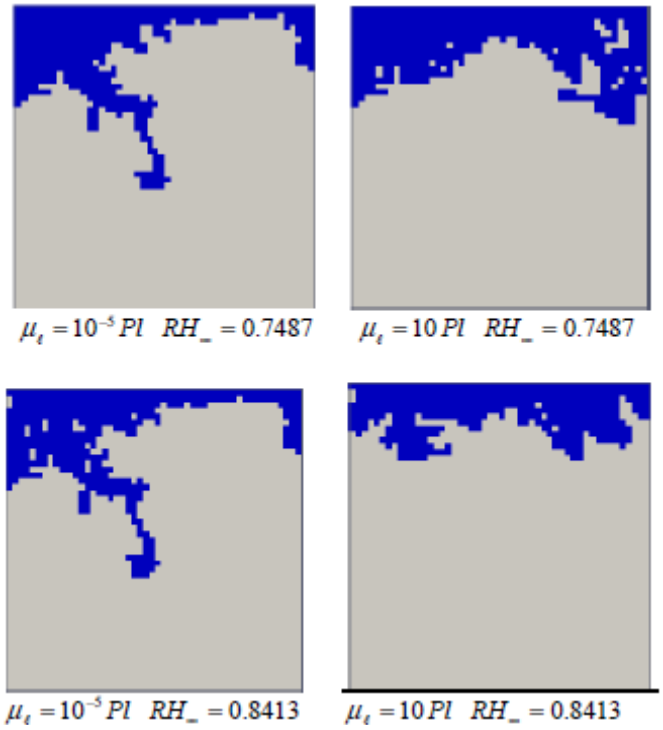


Fig. 8.3. Invasion pattern at breakthrough, i.e. when the gas phase percolates from top edge to bottom edge for the first time, using different algorithms for the same network in the absence of viscous effects. The liquid phase is in grey, the gas phase in blue. Vapour escapes from top edge of network. $RH_{\infty} = 73.45$.

A comparison of invasion pattern at breakthrough using various algorithms neglecting the viscous effects is presented in Fig.8.3. The relative humidity in the external air was $RH_{\infty} = 73.45$, sufficiently low for drying to take place up to breakthrough when the Kelvin's point is considered (this point is discussed in more detail below). As expected, the main (bigger) cluster is the same in these simulations. This is because the same invasion rule, selection of bond of largest size along the interface is applied in these three simulations. The difference lies in the isolated clusters. As can be seen there are less isolated clusters in top region of network at breakthrough in drying compared to the IP simulation. This is so because evaporation can take place at the boundary of the isolated clusters. Thus these clusters can shrink and eventually disappear in drying as a result of evaporation whereas the probability to be invaded in the IP simulation is very low since it is much more likely to find the largest interfacial throat along the main cluster boundary.
There is also a difference regarding these clusters when the Kelvin's effect is taken into account. Note the isolated clusters that are still present in drying in the top region of network with the Kelvin's effect whereas this region is fully dry when the Kelvin's effect is neglected. Because of Kelvin's effect, the relative humidity at the boundary of these clusters can become close to the external relative humidity RH_{∞} since the size of interfacial throats along the boundary of these clusters is expected to be relatively small, i.e. in the range $[d_{tmin} - d_{tc}]$, where d_{tc} is the size corresponding to network percolation threshold, (Stauffer et Aharony 1992). As a result the evaporation rate at the boundary of these clusters can be in fact very low in the presence of Kelvin's effect. This of course depends on the position of RH_{∞} in the range $[RH_{min}, RH_{max}]$.

8.2 Equilibrium saturation

As illustrated in Fig.8.4, drying in the presence of Kelvin's effect does not lead necessarily to a full drying of medium. This depends on the relative humidity in the external air RH_∞ and the pore size distribution (of more precisely the throat size distribution in pore network models). Using Kelvin's relationship the throat size range [d_{tmin}, d_{tmax}] corresponds to a relative humidity range [$RH_{\min}$, $RH_{\max}$]. If $RH_\infty < RH_{\min}$ full drying of network occurs since adsorption phenomena are neglected in our pore network model. If $RH_\infty > RH_{\max}$ no drying is possible and the network remains saturated in equilibrium with the external air (there is just a little evaporation at the beginning so that the menisci at the entrance of network adjust their curvature to reach equilibrium, the menisci curvature can be computed from Kelvin's relationship). The most interesting situation is therefore obtained when $RH_{\min} < RH_\infty < RH_{\max}$. In this case, as illustrated in Fig.8.4, an equilibrium is reached with partial drying of medium.



a) b)

Fig.8.4. Equilibrium patterns for two relative humidities in external air RH_∞ in the range [$RH_{\min}$, $RH_{\max}$] a) in the absence of significant viscous effects, b) in the presence of strong viscous effects.

The overall gas saturation at the end of drying is plotted in Fig.8.5 as a function of RH_∞. For $RH_\infty > RH_{\max}$ (= 0.866), there is no invasion and therefore S_{gequ} =0. For $RH_\infty < RH_{\min}$ full drying occurs and S_{gequ} = 1., As can be seen, there is well marked transition when RH_∞ varies around RH_c (≈ 0.81) when viscous effects are negligible. S_{gequ} jumps from a relatively low saturation to a high saturation. The abruptness in the transition suggests that very slow drying (no viscous effects) could be used to measure the network percolation threshold with a relatively good accuracy.

As illustrated in Fig.8.5 the transition is delayed, i.e. occurs for a lower value of RH_∞, when viscous effects are significant. This is consistent with the stabilizing impact of viscous effects on drying pattern.

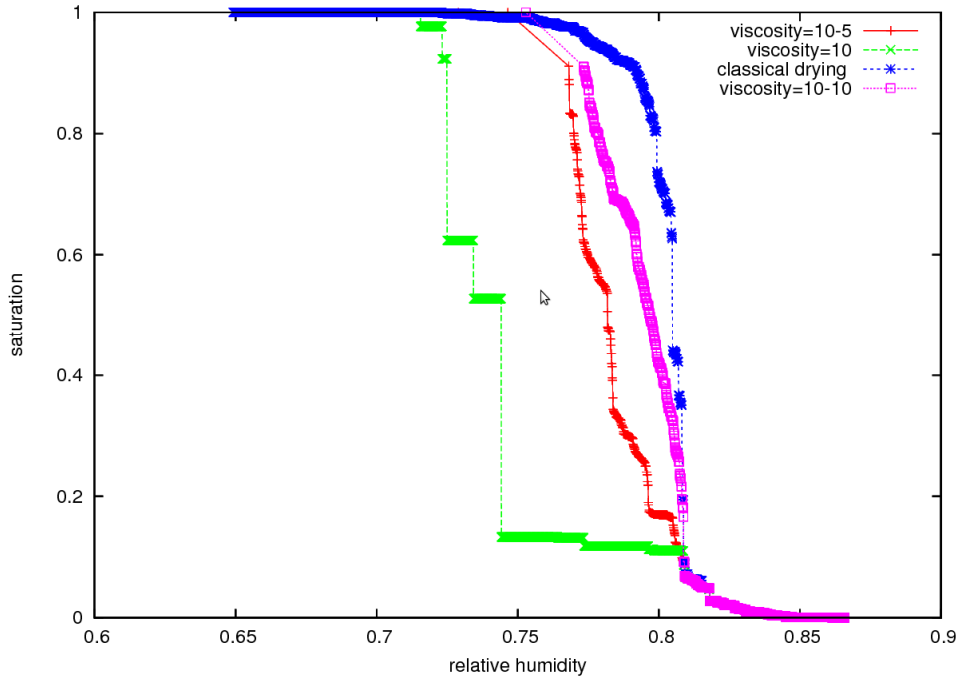


Fig. 8.5. Variation of equilibrium saturation with relative humidity in external air RH_∞ for various values of liquid viscosity. The capillary drying (no viscous effect) is referred to as the "classical" drying in the figure.

As expected, the results plotted in Fig.8.5 also indicate that the PN model with viscous effects should lead to the same results as the capillary model (no viscous effect) when the viscosity is sufficiently low. Simulations with still lower viscosities than the smallest considered in Fig.8.5 ($\mu_\ell = 10^{-10}\,Pl$) are, however, needed, to confirm the trend.

An intriguing result in Fig.8.5 is that the equilibrium gas saturation reaches 1 (full drying of network) for external relative humidities significantly greater than $RH_{\min}$ (≈ 0.65). This is not completely surprising since the probability for a pore to be connected to neighbour pores through very narrow throats only is expected to be quite weak. Further investigation is however desirable to fully understand this result.

8.3 Drying kinetics and Kelvin's effect

The variation of gas phase saturation as a function of time corresponding to the various patterns shown in Fig.8.1 is shown in Fig. 8.6 whereas the corresponding drying kinetics are shown in Figure 8.7. As expected the fastest drying is obtained when the viscous effects and the Kelvin's effect are neglected. This corresponds to the simulation labelled "classical drying without Kelvin " in Figs. 8.6 and 8.7. The

As can be seen from Fig.8.7, the evaporation rate does not vary very much during the drying process. This is in fact so because the thickness of boundary layer ($\delta = 5cm$) is much larger (10000 times larger) than the size of network ($L \approx 50$ x 100 nm = 5 μm). As discussed before, drying is partial in the presence of Kelvin's effect for the considered external air humidity

condition ($RH_\infty = 0.7345$). Drying is about as fast as in the absence of Kelvin's effect in a first phase when invasion essentially takes place in the larger throats. Then smaller throats are invaded and this has eventually an impact on evaporation rate owing to the water activity reduction due to Kelvin's effect. The evaporation rate becomes very small and also of course the change in saturation. Note that the simulation was stopped when the evaporation rate was zero at precision machine. This explains why the simulation is stopped for a finite non-zero value of evaporation rate in Figure 8.7 when Kelvin's effect is taken into account.

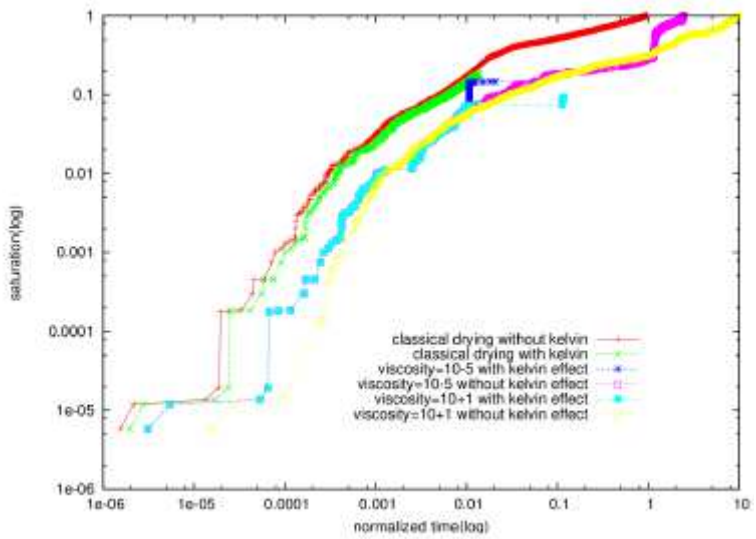


Fig.8.6. Variation of gas phase saturation as a function of time corresponding to the various patterns shown in Fig.8.1. The reference time is the time required to fully dry the network according to the capillary drying without Kelvin's effect.

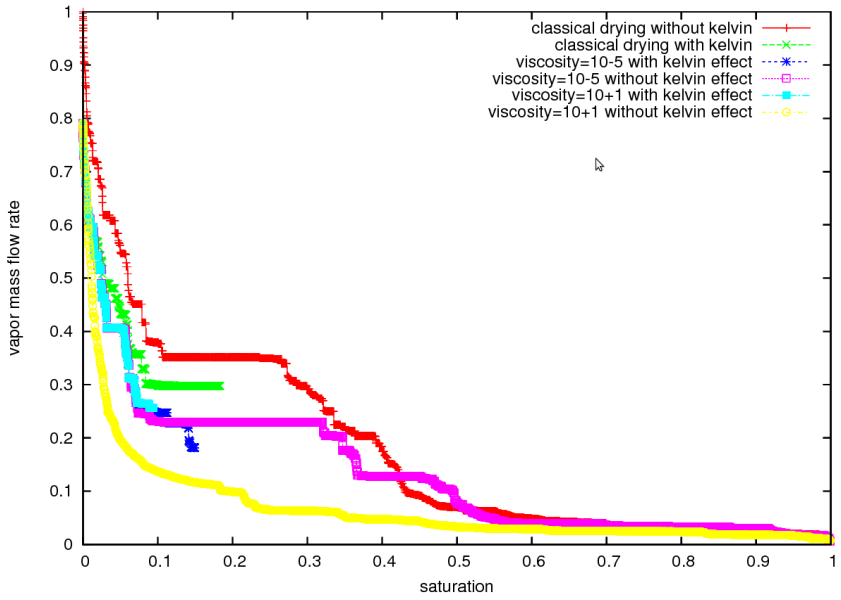


Fig. 8.7. Drying kinetics (evaporation rate as function of overall gas saturation) corresponding to the various patterns depicted in Figure 8.1. The evaporation rate is made dimensionless using the evaporation rate at $t = 0$ as reference rate.

Figure 8.8 shows the variation of gas phase saturation as a function of time corresponding to the various patterns shown in Fig.8.2. The corresponding drying kinetics are shown in Figure 8.9.

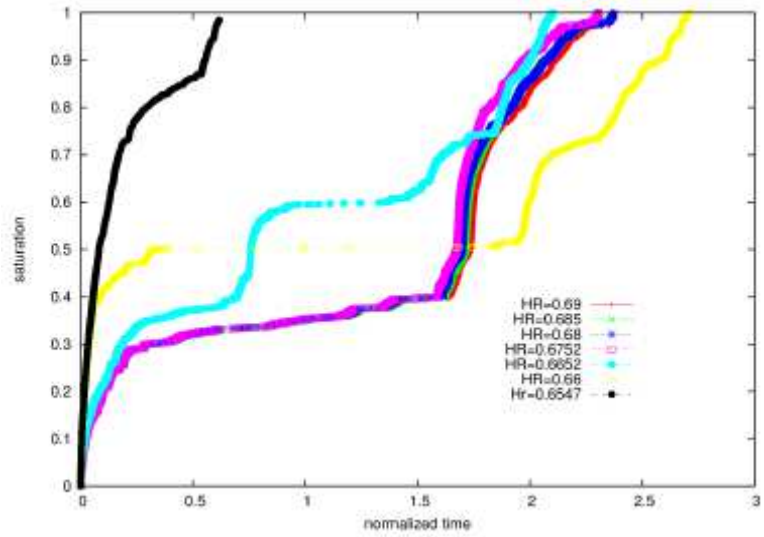


Fig.8.8. Variation of gas phase saturation as a function of time corresponding to the various patterns depicted in Fig.8.2. The reference time is the same as for Fig.8.6, i.e. the time required to fully dry the network according to the capillary drying without Kelvin's effect with $RH_{\infty} = 0.7345$.

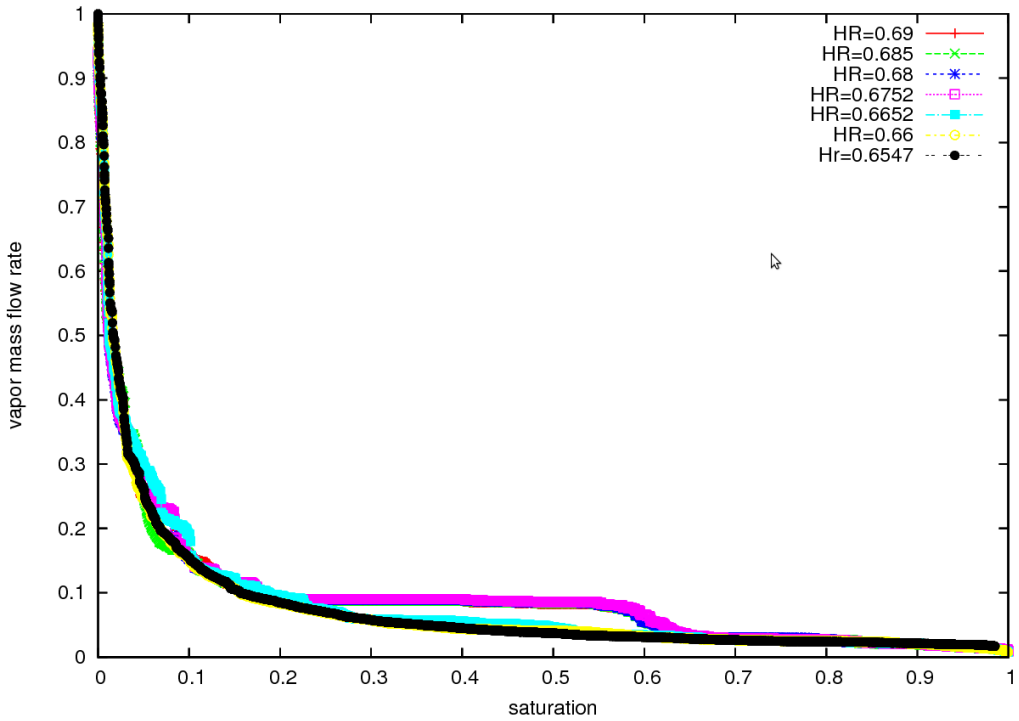
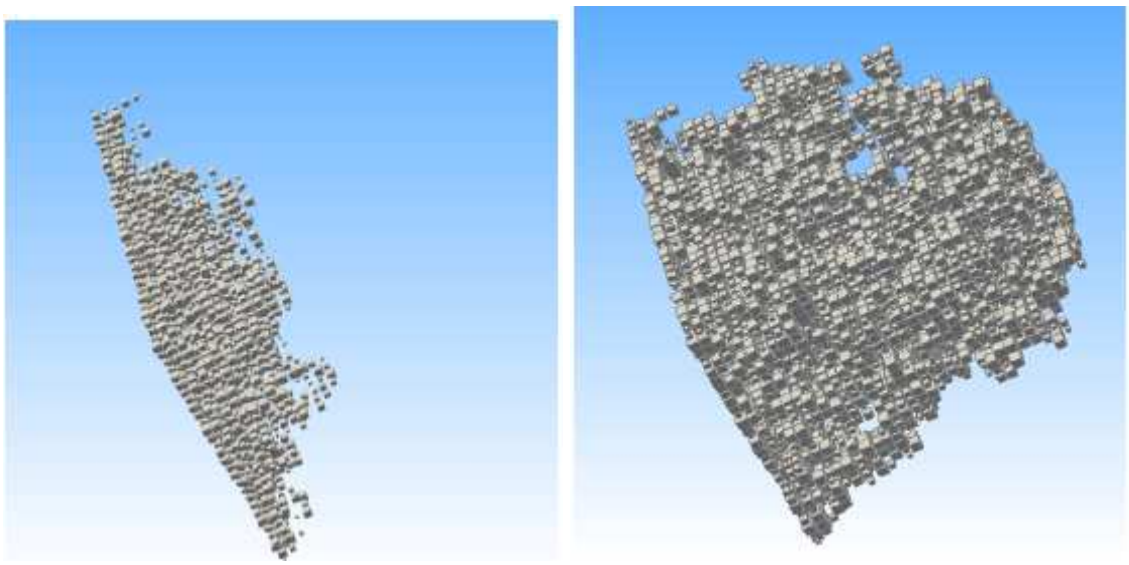


Fig. 8.9. Drying kinetics (evaporation rate as function of overall gas saturation) corresponding to the various patterns depicted in Figure 8.2. The evaporation rate is made dimensionless using the evaporation rate at $t = 0$ for RH_{∞}=0.6547 as reference rate.

As can be seen from Fig.8.8, drying is full for the range of external humidities considered despite the fact that they are greater than $RH_{\min}$ (≈ 0.65). This was already noted when considering the results reported in Fig.8.5. Interestingly, the hierarchy of full drying time does not follow the hierarchy of RH_{∞}, i.e. the lower RH_{∞} the lower the drying time. This is so because of impact of viscous effects on pattern as reported in Fig.8.2.
As noted before the external mass transfer length scale δ is very large compared to the size of network As a result, the various drying kinetics in Fig.8.9 are here not very different. The reduction in the evaporation flux is essentially due to the relatively small effective diffusion coefficient of our network ($D_{eff} \approx O(0.1\ D)$).

8.4 Three dimensional networks

The pore-network model of drying with Kelvin's effect and viscous effects is of course not restricted to 2D networks. Three-dimensional networks can be considered as well despite longer computational times.
Although the structure of main two-phase zone is fundamentally different in 2D and in 3D networks, e.g. (Prat et al. 2012) and references therein, many aspects of drying are similar in 2D and 3D: viscous effects are stabilizing, drying can be partial in the presence of Kelvin's effect, etc. Thus here we only present in Fig.8.10 two equilibrium three dimensional phase distributions (distribution at the end of drying) obtained in the presence of Kelvin's effect when viscous effects are negligible.



a) $\mu_\ell = 10^{-5}\ Pl \quad RH_{\infty} = 0.8413$ b) $\mu_\ell = 10^{-5}\ Pl \quad RH_{\infty} = 0.7487$

Fig.8.10. Phase distributions within a three-dimensional network at the end of drying for two external air relative humidities in the range [RH_{min}, $RH_{\max}$]. Only the gas phase is shown.

9. Conclusion

A pore network model of isothermal drying taking into account the viscous effects and the Kelvin' effect was presented. Simulations where performed so as to illustrate the impact of viscous and Kelvin's effects. Assuming a relatively narrow pore size distribution in the range of pores for which the Kelvin's effect is noticeable (pores sizes typically lower than 100 nm),

we distinguished three main situations depending on the relative humidity in the external air: no drying, partial drying and full drying. Partial drying is obtained when the relative humidity in external air is lower than the equilibrium vapour pressure corresponding to the biggest throats in the network but greater than the equilibrium vapour pressure corresponding to the smallest throats in the network. Full drying is obtained when the relative humidity in external air is lower than the equilibrium vapour pressure corresponding to the smallest throats in the network whereas no drying occurs when the relative humidity in external air is greater than the equilibrium vapour pressure corresponding to the biggest throats in the network.
This leads to the notion of equilibrium saturation, which is the saturation in the sample at the end of drying process. The simulations indicate that viscous effects have a significant impact on equilibrium saturation. The greater the viscous effects, the lower the equilibrium saturation.
The model was based on several simplifying assumptions, which probably will deserve to be revisited in future works. These include the possible effects of adsorbed and capillary liquid films, e.g. (Eijkel et al. 2005), or possible rarefaction effects on the vapour diffusion process, e.g. (Kerkhof, and Geboers 2005).

References

Babalievski, F.,Cluster counting: the Hoshen-Kopelman algorithm versus spanning tree approaches, International Journal of Modern Physics C, Vol 9, No 1, (1998), p. 43-60

Carey V.P, (1992) Liquid-Vapor phase change phenomena, Taylor & Francis.

Chauvet F., P. Duru, S. Geoffroy, M. Prat, Three periods of drying of a single square capillary tube, *Phys. Rev. Lett.* 103, 124502 (2009)

Debaste F. 2008, Modélisation de l'évaporation en milieu poreux: développement de modèles fondamentaux et appliqués, Ph.D thesis Université Libre de Bruxelles.

Eijkel, J.C.T., Dan, B., Reemeijer, H.W., Hermes, D.C., Bomer, J.G., van den Berg, A. 2005 Strongly accelerated and humidity independent drying of nanochannels induced by sharp corners. *Physical Review Letters* **95**, 256107**–**1/4.

Joekar-Niasar, V.; Hassanizadeh, S. M.; Dahle, H., 2010, Dynamic Pore-Network Modeling of Drainage in Two-Phase Flow, *Journal of Fluid* Mechanics, vol. 655 , pp. 38 – 71.

J.B.Laurindo et M.Prat. Numerical and experimental network study of evaporation in capillary porous media. Drying rates .*Chem.Eng.Sci*., Vol.53,No.12, pp.2257-2269 (1998)

Lehmann, P., S. Assouline, and D. Or, 2008. Characteristic lengths affecting evaporative drying of porous media, Phys. Rev. E, 77, 056309.

Kerkhof, P.J.A.M. & Geboers, M.A.M. 2005 Toward a unified theory of isotropic molecular transport phenomena. *AIChE Journal* **51**, 79**–**21.

Metzger, T., Tsotsas, E., Prat, M., Pore network models : a powerful tool to study drying at the pore level and understand the influence of structure on drying kinetics, Chapter 2, pp.57-102, in "Modern Drying Technology", Volume 1 "Computational tools at different scales", A.Mujumdar and E.T.Tsotsas Ed., Wiley, 2007

M.Prat. Percolation model of drying under isothermal conditions in porous media. *Int. J. of Multiphase Flow*. Vol.19,No.4, pp.691-704 (1993)

M.Prat, On the influence of pore shape, contact angle and film flows on drying of capillary porous media*, Int. J. of Heat and Mass Tr.,* 50,1455-1468 (2007)

M.Prat, Pore network models of drying, contact angle and films flows, *Chem. Eng. Technol.*, *34*, No. 7, 1029–1038 (2011)

M.Prat, S. Veran-Tissoires, N. Vorhauer, T. Metzger, E. Tsotsas. Fractal phase distribution and drying: impact on two-phase scaling and drying time scale dependence 30th anniversary Special Issue. *Drying Techn. J.* ,30 (11-12), pp. 1129-1135 (2012)

Stauffer D., Aharony A.. Introduction to percolation theory. Taylor & Francis, London, 1992

Yiotis, A.G., A.K. Stubos, A.G. Boudouvis, Y.C.Yortsos (2001) A 2-D pore-network model of the drying of single-component liquids in porous media., Adv. in Wat. Res., 24, pp.439 – 460.

Yiotis, A.G., D. Salin, E.S. Tajerand and Y.C. Yortsos, 2012. Drying in porous media with gravity-stabilized fronts: Experimental results. *Physical Review E* 86, 026310.

CHAPITRE 4 (PROJET D'ARTICLE)

ON THE DETERMINATION OF BREAKTHROUGH PRESSURE

P.Lefort[1,2], M. Prat[1,2,*]

[1]Université de Toulouse; INPT, UPS; IMFT, Avenue Camille Soula, 31400 Toulouse, France
[2]CNRS; IMFT 31400, Toulouse,France

Abstract
We discuss the concept of breakthrough pressure from pore network simulations. Two methods of determination, namely from drainage experiments and drying experiments, are simulated. The impact of viscous effects on the determination of breakthrough pressure is studied as well as the impact of network dilatancy due to gas injection.

Keywords: Breakthrough pressure; Pore network simulations; Drainage; Drying, dilatancy

1. Introduction

The breakthrough pressure P_{BT} can be defined as the minimum pressure difference that must exist between a wetting fluid occupying initially a porous sample and a non-wetting displacing fluid for the non-wetting fluid to percolate through the porous sample under the condition that the displacement is very slow. Hence this definition of the breakthrough pressure is associated with the assumption of a quasi-static displacement. The breakthrough pressure must be distinguished from the entry pressure, e.g. (Dullien 1992). The entry pressure is the minimum pressure difference between the two fluids allowing the non-wetting fluid to begin entering into the medium. Thus the entry pressure P_E is on the order of the capillary pressure threshold of the bigger pores (bigger constrictions of pore space in fact) present at the inlet of porous sample. Thus in general $P_E < P_{BT}$.

The concept of breakthrough pressure is of practical importance. Consider for example the study of the repository of radioactive waste materials in deep geological formations. In a radioactive waste repository, several processes lead to the formation of gas. One of the most important is corrosion of ferrous materials under anoxic conditions, a process leading to the production of a large amount of hydrogen. The perturbation induced by gas in such repository has to be studied and especially its consequences on the host rock, which is a low permeability rock (k~10^{-20} m^2). It is anticipated that the gas production will exceed the host rock capacity to eliminate the gas in pore water by dissolution process only. Gas will continue to accumulate until its pressure becomes sufficiently large to enter the host rock, causing therefore the displacement of the water saturating the pore space at the beginning of the displacement. In this context, it is crucial to estimate the pressure difference at which the displacement becomes effective. This piece of information can help predicting whether or not mechanical damages (fracturing etc) due to gas pressurization must be expected. It is widely admitted that the evaluation of breakthrough pressure is a relevant piece of information in this

* Corresponding author : prat@imft.fr

context. However, the experimental measurement of breakthrough pressure on a nanoporous and possibly deformable materials like the host-rock is not easy and it is therefore desirable to discuss the concept of breakthrough pressure, the methods of measurement and the possible associated errors.

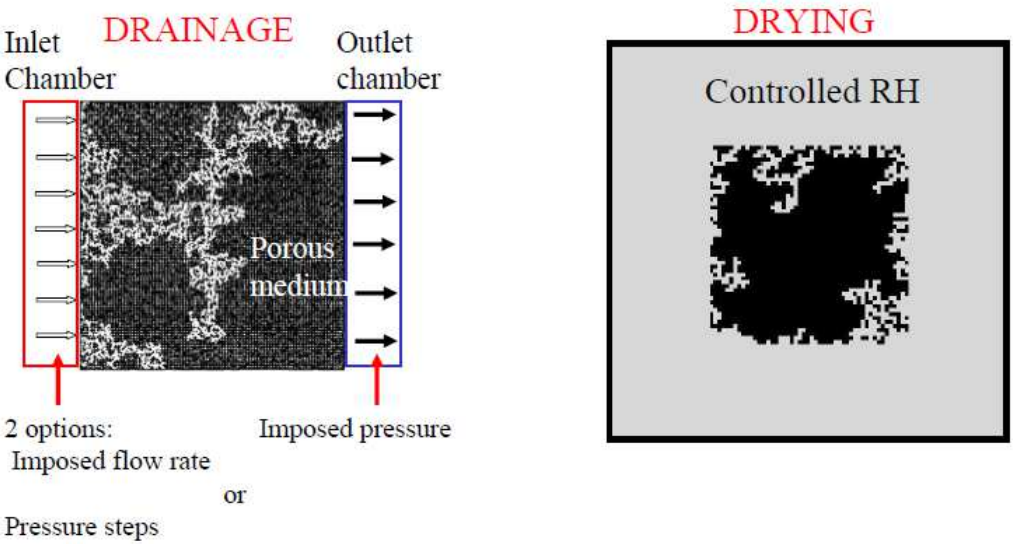


Figure 1. Sketch of drainage and drying situations. Gas phase in grey. Liquid phase in black.

We will consider the case of water displaced by air and the two measurement methods sketched in Fig.1. The first one is a classical slow drainage experiment in which the pressure is increased step by step in the invading phase (air in this article) at the inlet until the non-wetting fluid is detected at the outlet. The second one is a drying experiment where the control parameter is the relative humidity in the external air. The procedure is to decrease the relative humidity step by step until percolation of the gas phase. Then the relationship between capillary pressure and water activity, i.e. the Kelvin - Laplace relationship, makes it possible to determine the breakthrough pressure. One first obvious question is then whether or not the two methods lead to the same value of breakthrough pressure for a given materials. Another question is the impact of possible deviations from quasi-staticity in both the drainage and drying methods. Also, it is widely admitted that the assumption of rigid, non-deformable porous matrix is questionable as regards nanoporous materials like the argilite, which is the porous rock considered for the deep geological repository of nuclear wastes in France. Thus the impact of possible deformation of microstructures due to capillary effects for example has to be investigated. These questions are addressed in this article from pore network simulations.

The paper is organized as follows. The pore network model are presented in Section 2. Definition of breakthrough pressure is discussed in Section 3. The quasi-static algorithms for both drainage and drying and associated results are presented in Section 4. Impact of the loss of quasi-staticity is studied in Section 5. An overview of the impact of network dilatancy is given in Section 6. Conclusions are offered in Secrtion 7.

2. Pore network model

We consider square (2D simulations) or cubic (3D simulations) networks similar to the one considered in (Sarrot and Prat 2010). Pores of cubic shape are regularly placed on a 2D or 3D cartesian grid (with a denoting the lattice spacing, i.e. the distance between two adjacent pores). Two first neighbour pores are linked by a channel of square cross-section. Such a

channel is referred to as a bond or throat. The pore size d_p (respectively the throat cross section side length d_t), which corresponds to the diameter of the largest sphere inscribed within the pore, is randomly distributed according to a uniform probability law in the range [d_{pmin} , d_{pmax}] (respectively in the range [d_{tmin} , d_{tmax}] with the constraint $d_{tmax} \leq d_{pmin}$). The network size is characterized by the number N of pores placed in each direction. Assuming a perfectly wetting liquid, the local capillary pressure threshold p_{cap} of a throat is expressed using the Young-Laplace equation as

$$p_{cap} \approx \frac{4\gamma \cos\theta}{d_t} \tag{1}$$

where γ is the surface tension and θ is the contact angle; p_{cap} is the pressure that must exist between the two fluids for the bond to be invaded.

3. Capillary pressure curve, entry pressure, breakthrough pressure, percolation threshold

3.1 Breakthrough pressure and percolation threshold

According to our definition the entry pressure is defined as

$$P_E = \frac{4\gamma \cos\theta}{d_{t\max}} \tag{2}$$

According to (Dullien 1992), the breakthrough pressure corresponds to the inflexion point for the high wetting fluid saturations on the retention curve as illustrated in Fig.2a.

As discussed in (Sarrot and Prat 2010), this point correspond to the percolation threshold of the pore network presumably existing within the material. Consider for example a cubic bond network. The percolation threshold of this network, i.e. the minimum fraction of the bonds that must be occupied by one phase for this phase to percolate is $f_c \approx 0.249$ (Stauffer and Aharony 1992), P_{BT} can then be expressed as

$$P_{BT} = \frac{4\gamma \cos\theta}{d_c} \tag{3}$$

where d_c is the critical throat size corresponding to the percolation threshold of pore network. For example, d_c is simply given by $d_c = d_{t\max} - f_c(d_{t\max} - d_{t\min})$ for a throat size uniform probability density function. Thus, in this case,

$$P_{BT} \approx \frac{4\gamma \cos\theta}{(d_{t\max} - f_c(d_{t\max} - d_{t\min}))} \tag{4}$$

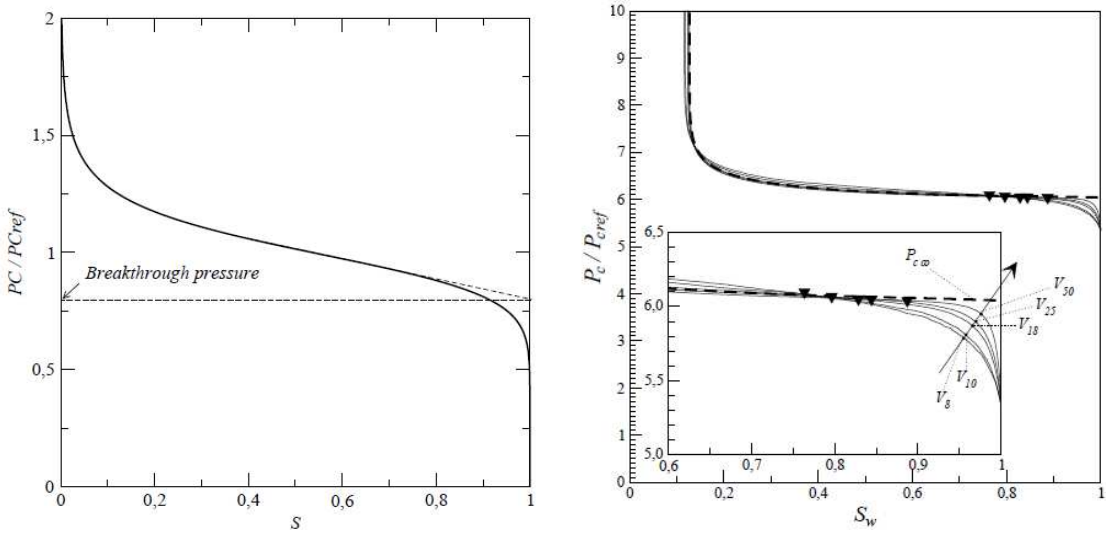
As reported in (Sarrot and Prat 2010) and shown in Fig. 2b, the pore network simulation of the capillary pressure curve using the algorithm presented in Appendix 1 gives results in excellent agreement with Eq.(4).

The result can be easily generalized to other throat size probability density function distribution using the relationship

$$f_c = \int_{d_{tc}}^{d_{t\max}} \alpha(d_t) dd_t \tag{5}$$

where $\alpha(d_t)$ is the probability density function of the throat (bond) size distribution. Note however, that we assume throughout this paper that there is no spatial correlation in the bond size distributions in the network. According to the results presented in (Renault 1991), the existence of correlations reduces the percolation threshold.

From the above consideration, it is obvious that $P_E << P_{BT}$. In passing, it can be noted that a simple model of parallel tube bundle, e.g. (Dullien 1992) and references therein, often considered for its simplicity is too simple for accounting for the difference between the entry and breakthough pressure. Such an oversimplified representation of pore space obviously leads to $P_{BT} = P_E$.



a) b)

Figure 2. a) Retention curve and breakthrough pressure according to Dulien (1992) b) pore network simulations of capillary curve (Sarrot and Prat 2010). The various curves correspond to various pore network sizes. The breakthrough pressure (filled triangles) converges toward the theoretical value as the network size increases, which is here $P_c / P_{cref} = 6.034$.

3.2 Breakthrough pressure from van-Genuchten "model"

For practical reasons, it is often convenient to represent the retention curve according to an analytical expression. The van Genuchten representation, (van Genuchten 1980), is commonly used and reads

$$\frac{S - S_c}{1 - S_c} = \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{P_c}{P_{cref}}\right)^n\right]^m} \tag{6}$$

with $m = 1 - \frac{1}{n}$. The parameters n and P_{cref} are determined by fitting the curve to experimental data. As an example, the retention curve shown in Figure 2a is for packing of monodisperse

spheres (Dullien et al. 1989), (Dodds and Srivastava 2006). The data reported in (Dullien et al. 1989) and (Dodds and Srivastava 2006) were well fitted using S_c =0.1, n = 10 and $P_{cref} = \frac{6(1-\varepsilon)\gamma}{\varepsilon d}$. Then as discussed in (Lehmann et al. 2008), the breakthrough pressure (called the air –entry value in their paper) is given by

$$P_{BT} = \rho_\ell g\left(\frac{P_{cref}}{\rho_\ell g}\left(\frac{n-1}{n}\right)^{(1-2n)/n} - L\right) \tag{7}$$

where L is given by (notation)

$$L = \frac{P_{cref}}{\rho_\ell g(n-1)}\left(\frac{2n-1}{n}\right)^{(2n-1)/n}\left(\frac{n-1}{n}\right)^{(1-n)/n} \tag{8}$$

For our example (Figure 2a), this gives P_{BT} / P_{cref} = 0.81 in very good agreement with the graphical determination in Figure 2a, which is not surprising since the above equations are based on a linearization of the retention curve corresponding to the tilted dashed line in Figure 2a, see (Lehmann et al. 2008) for more details.

4. Quasi-static (QS) algorithms

4.1 Q.S. drainage algorithm

Simulation of QS drainage is based on the classical invasion percolation (IP) algorithm (Wilkinson et Willemsen 1983). The network is invaded step by step from the inlet selecting at each step the bond of largest size available along the interface between the two fluids. The wetting fluid pore adjacent to the invaded bond is invaded together with the bond.

4.2 Q.S. drying algorithm

The starting point is the Kelvin - Laplace relationship allowing to link throat size and relative humidity at the surface of menisci in the network,

$$RH = \frac{P_{vequ}}{P_{vsat}} = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{P_c}{\rho_\ell}\right) = \exp\left(-\frac{M}{RT}\frac{4\gamma\cos\theta}{\rho_\ell d_t}\right) \tag{9}$$

where RH is the relative humidity, P_{vequ} and P_{vsat} are the equilibrium vapour pressure at the menisci and the equilibrium vapour pressure at a flat water-gas interface respectively; M is the vapour molecular weight, R the universal gas constant, θ the contact angle (taken equal to zero in this paper), T the temperature and ρ_ℓ the liquid density. As depicted in Fig.3, Eq. (9) gives the relative humidity at the surface of a meniscus in a bond when the meniscus curvature is the greatest possible (curvature radius ≈ d_t / 2 / cosθ). Any further increase in meniscus curvature would lead to the invasion of the bond.

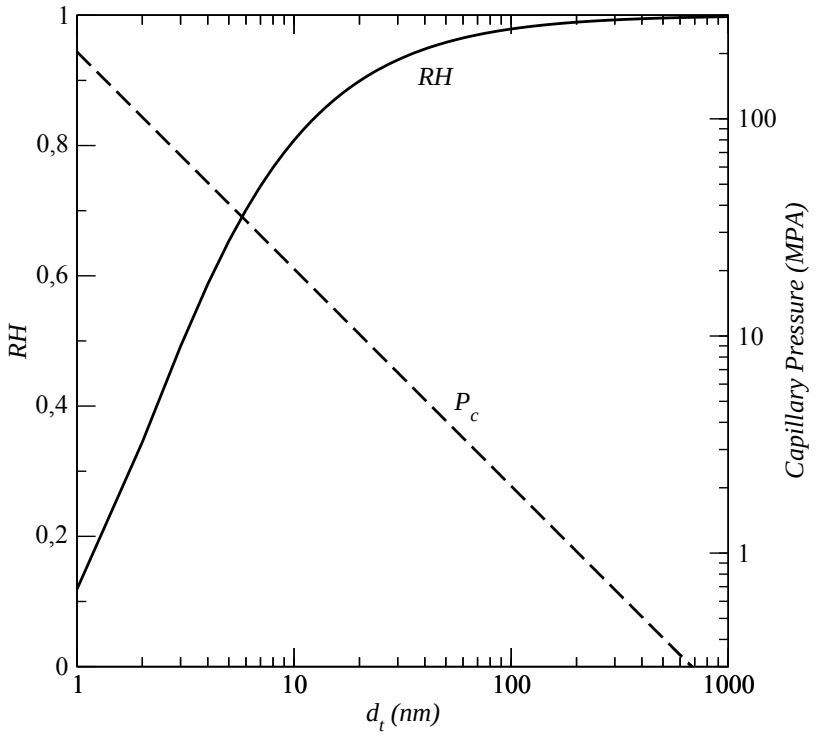


Figure 3 Equilibrium relative humidity as a function of pore diameter according to Kelvin's relationship for water and capillary pressure.

Suppose that RH_∞ is the relative humidity in the air surrounding the porous sample. One can then define a critical throat size from the Kelvin's relationship as

$$d_{tcrit} = \left(\frac{M}{RT} \frac{4\gamma \cos\theta}{\rho_\ell \left| \ln(RH_\infty) \right|} \right) \tag{10}$$

For the medium to dry, the equilibrium relative humidity RH_e at the menisci at the surface or inside the porous medium must be greater than RH_∞ since the evaporation process is driven by the difference in vapour pressure between the porous medium and the external air. As a result, evaporation can take place as long as $RH_e \geq RH_\infty$. A simple QS drying algorithm is then to invade the network bond by bond using the IP algorithm allowing only the bond on the liquid-gas interface in the range [d_{tcrit}, d_{tmax}] to be invaded.

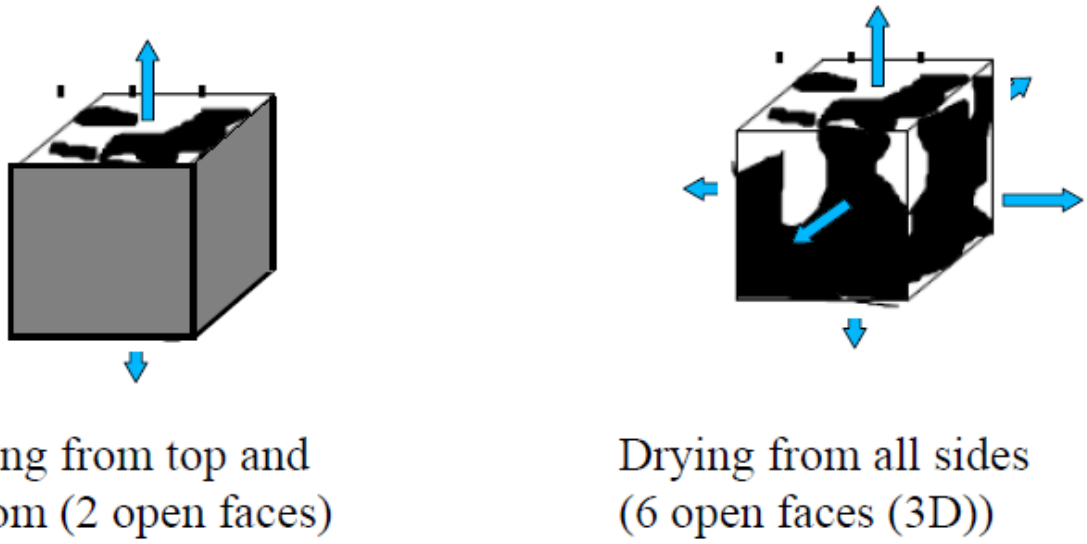


Figure 4. The two drying configurations

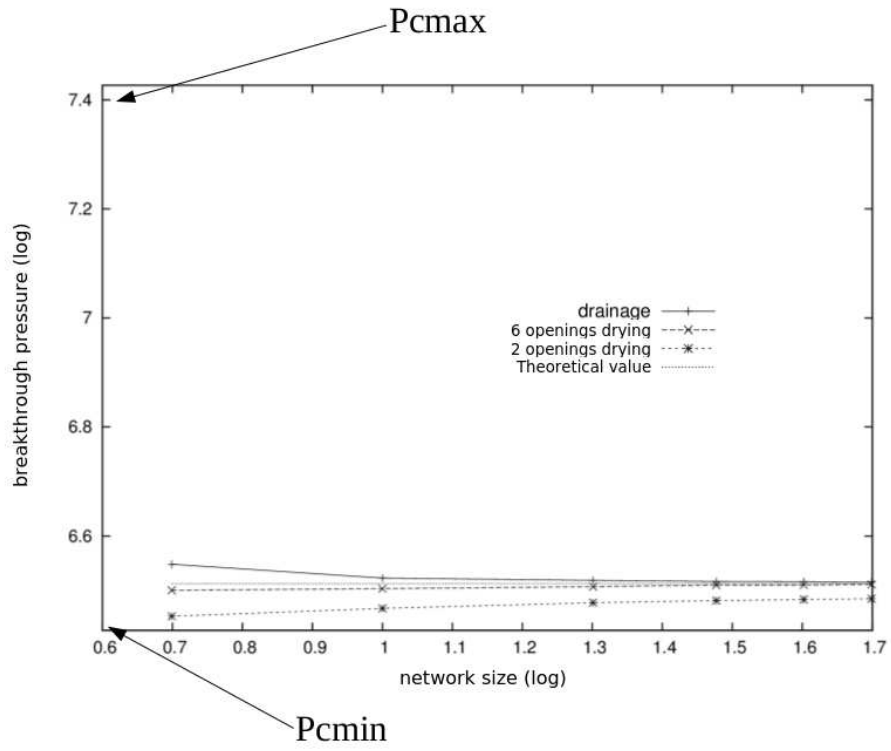
As sketched in Fig.4 , one considers that invasion can take place from several inlet faces in drying. In fact, we ran simulations with the top and bottom faces as inlet faces (= 2 sides drying) and with all faces as inlet faces (= 6 sides drying).
Breakthrough is when a gas phase percolating path exists for the first time between the top and bottom of sample. In practice, the lateral sides of sample are sealed after some drying time and one tests whether the gas can flow across the sample. Thus the definition of breakthrough is in accordance with this experimental procedure.
Breakthrough is tested numerically in the simulation using the deep search algorithm, which is classical in graph theory (Babalievski 1998) The detection of breakthrough is indeed non-trivial because the gas phase forms several independent growing clusters during drying since the gas can enter through several faces of medium (Fig.4).

4.3 Results for QS drainage and drying

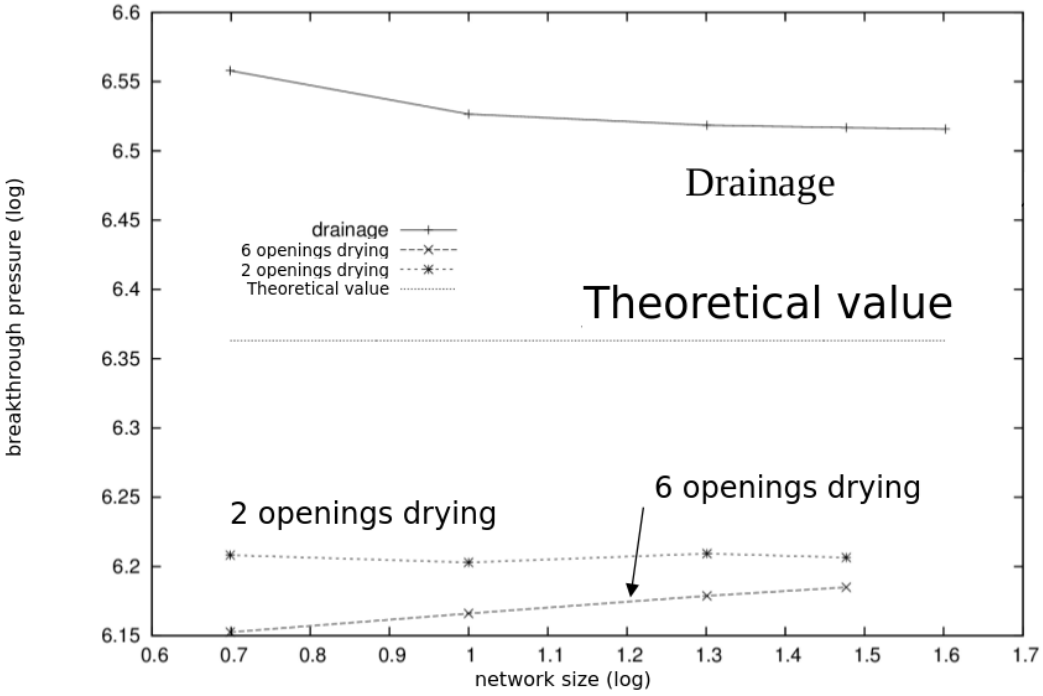
The simulations presented in this section were first performed considering a cubic pore network with throat and pores sizes both uniformly distributed in the ranges [70 nm – 700 nm]. The lattice spacing was a = 100 nm.
According to Eq.(4) the theoretical value of breakthrough pressure with f_c = 0.249 (percolation threshold for cubic bond network) is thus,

$$P_{BTh} /(\gamma / a) = 6.36 \qquad (11)$$

As shown in Fig.5, the simulations based of the QS drainage and drying algorithm are in good agreement with the theoretical value given by Eq.(11). The small deviations between the computed values and the theoretical value can be attributed to finite size effects. As can be seen from Fig.5, the theoretical value is approached from above using the drainage algorithm (the computed breakthrough pressure is greater than theoretical value) and from below using the drying algorithm (the computed breakthrough pressure is lower than theoretical value). It can be also noticed that the two sides drying and six sides drying lead to slightly different values, which seem, however, to converge toward the same values for a sufficient large network.



a)



b) **Zoom**

Figure 5. Variation of breakthrough pressure as a function pore network size. Figure 5b the a zoom of figure 5b in the vicinity of breakthrough pressure theoretical value. Note that the values along the horizontal axe are the $\log_{10}$ of network size (thus the value 1 corresponds to a 10x10x10 network)

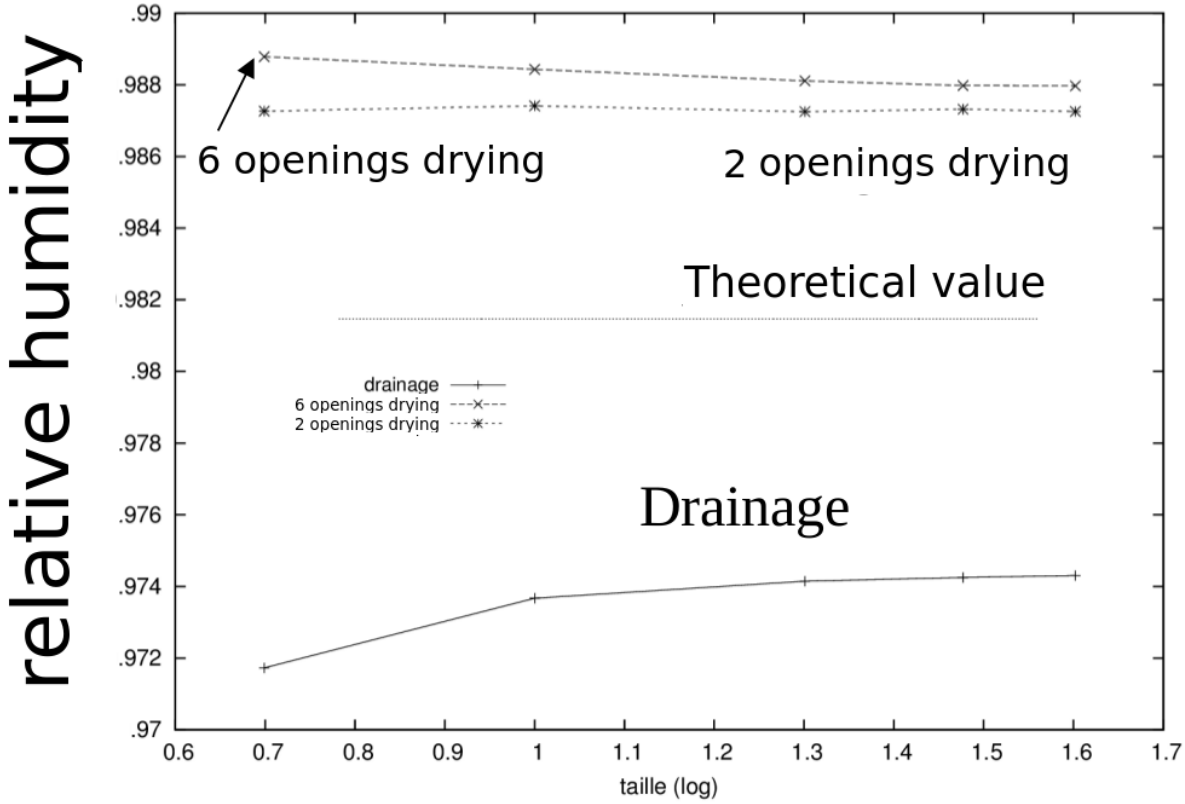


Figure 6 Breakthrough pressure expressed in term of equivalent relative humidity using Kelvin's relationship for throat sizes in the range [70 nm – 700 nm].

In the case of drying, the results are very sensitive to the value of RH_∞. This is illustrated in Fig.6, which shows essentially the same results as in Fig.5 expressing the breakthrough pressure in equivalent *RH* using the Kelvin equation Eq.(9). In practice it would be very difficult to determine accurately the breakthrough pressure using the drying method under these conditions because the relative humidity RH_∞ cannot be imposed with the necessary accuracy. However, it can be observed from Fig. 3 that the variation of relative humidity with pore size is relatively weak for the range of throat sizes [70 nm – 700 nm] considered in these simulations. Figs. 7 and 8 show the results obtained for throat sizes in the range [5 nm – 15 nm], which correspond to range over which the relative humidity varies significantly with pore size (see Fig. 3).

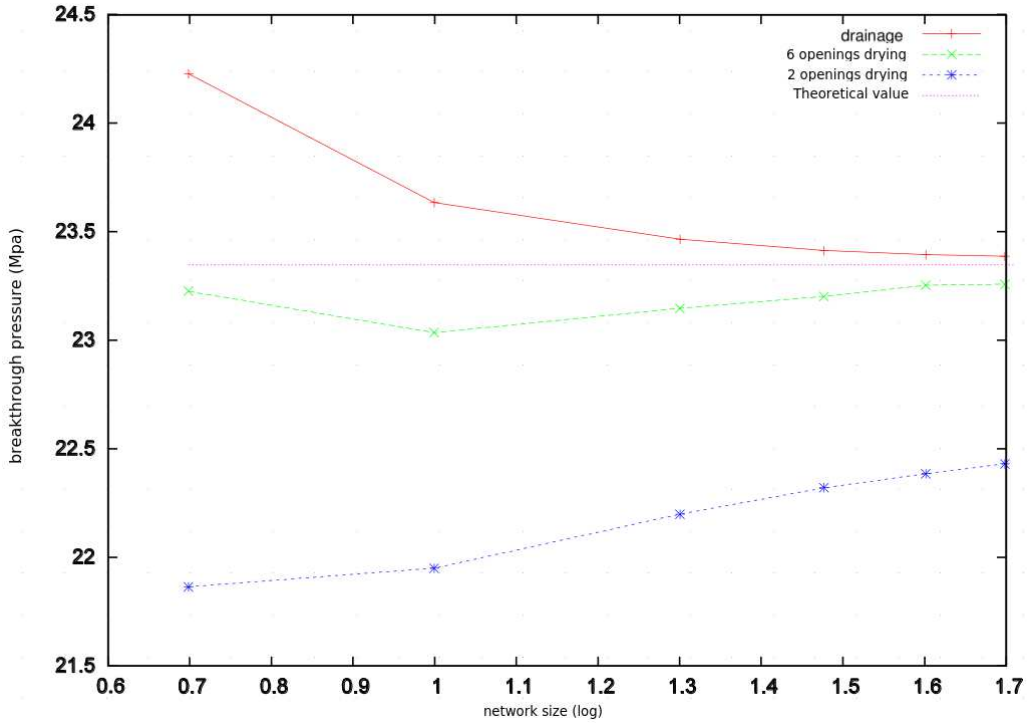


Figure 7. . Variation of breakthrough pressure as a function pore network size for throat sizes distributed according to a uniform *p.d.f.* in the range [5 nm – 15 nm],. Note that the values along the horizontal axe are the $\log_{10}$ of network size (thus the value 1 corresponds to a 10x10x10 network)

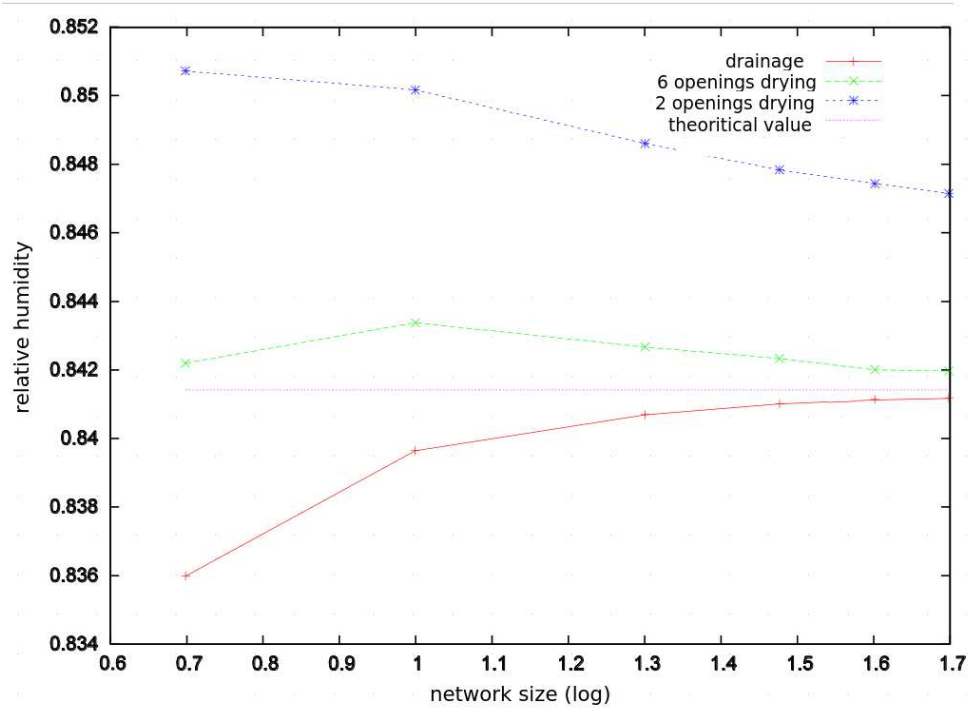
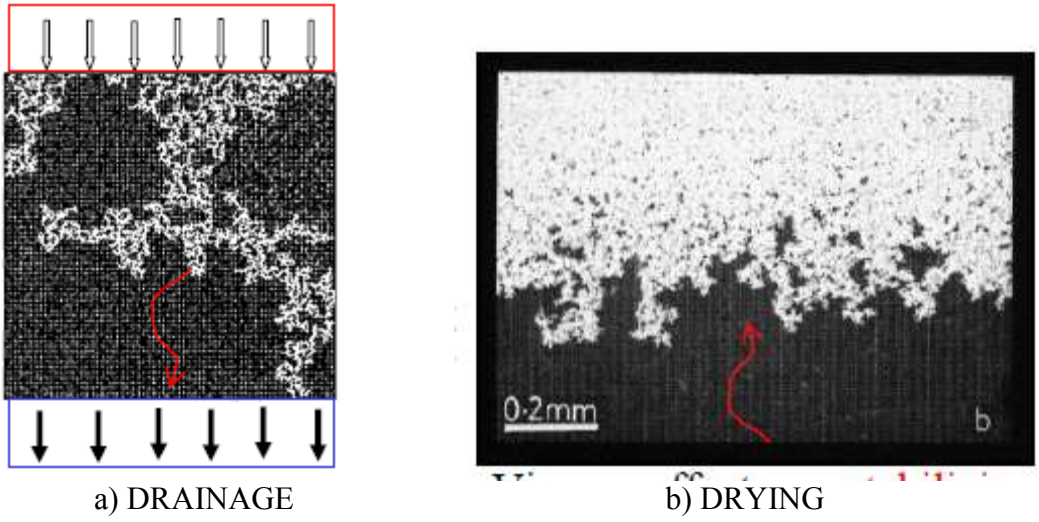


Figure 8 Breakthrough pressure expressed in term of equivalent relative humidity using Kelvin's relationship for throat sizes in the range [5nm – 15nm].

As before, the theoretical breakthrough pressure is given by Eq.(4) which leads here to d_c = 12.51 nm, and thus P_{cBT} = 23.4 PMA and RH_{BT} = 0.8414 (the range of a equilibrium relative humidities and capillary pressures corresponding to the [5 nm – 15 nm] throat size range are [RH_{MIN} = 0.6493 - RH_{MAX} = 0.8659] and [19.18 MPA (15 nm) - 57.54 MPA (5 nm)] respectively.

5. Drainage and drying beyond the QS assumption

5.1 Motivation.



a) DRAINAGE b) DRYING

Figure 9. Viscous effects in drainage when the displacing fluid is less viscous than the displaced fluid tend to induce viscous figuring (except in the case of hyperslow drainage as discussed in (Sarrot et Prat 2010). By contrast, viscous effects are stabilizing in drying, which leads to stabilized travelling two-phase zones. The red arrows indicate the mean direction of the flow induced in the liquid phase. The gas phase is in grey and the liquid phase is in black

In porous systems with tiny pores such as in nanoporous materials, it can be difficult to perform quasi-static experiments. Viscous effects are likely to be non-negligible. The impact of viscous effects is quite different in drainage and in drying. This is illustrated in Fig.9. We are interested in the case where a viscous fluid (liquid water) is displaced (drainage) or replaced (drying) by a less viscous fluid (gas). According to Lenormand's diagram (Lenormand et al. 1988) , a transition regime between the capillary fingering regime (which can be simulated using the IP algorithm) and the viscous fingering regime is expected in this case (destabilizing viscosity ratio) in drainage owing to the influence of viscous effects. By contrast, the viscous effects lead to a stabilized travelling two-phase zone in drying as first discussed by (Shaw 1987) and illustrated in Fig.9b. Within the framework of the theory of invasion percolation in a gradient (IPG), i.e. (Yortsos et al; 1997, Xu et al. 1998), sufficient viscous effects are expected to lead to invasion percolation in a destabilizing gradient (IPDG) pattern in drainage and invasion percolation in a stabilizing gradient (IPSG) pattern in drying. The fundamental difference between the two patterns originates from the sign of pressure gradient in the liquid. The liquid water flow is directed on average toward the outlet in drainage and toward the evaporation front, i.e. toward the inlet, in drying. The sign of liquid pressure gradient is thus opposite between the drainage and drying situation in Fig.9.

The objective is then to explore the impact of possible viscous effects on the determination of breakthrough pressure in both the drainage and the drying situations.
The consideration of viscous effects makes the pore-network simulations significantly more difficult, especially for the drying problem. Drainage algorithms with viscous effects have been the subject of many studies, i.e. (Joekar-Niasar et al. 2010) and references therein. By contrast, pore-network models of drying with viscous effects are much less numerous, see (Metzger et al. 2007) and references therein. The model combining viscous effects and Kelvin's effect was in fact developed very recently, in part for studying the breakthrough pressure problem considered in the present paper, (Lefort and Prat 2013).

5.2 Drainage with viscous effects

The pore-network model developed for simulating drainage in the presence of viscous effects is similar to the one proposed by (Lenormand et al. 1988). Throughout the article, we consider the displacement of water (defending fluid) by air (invading fluid), which corresponds to a viscosity ratio $M = \mu_g / \mu_\ell \approx 1.8\ 10^{-2}$.

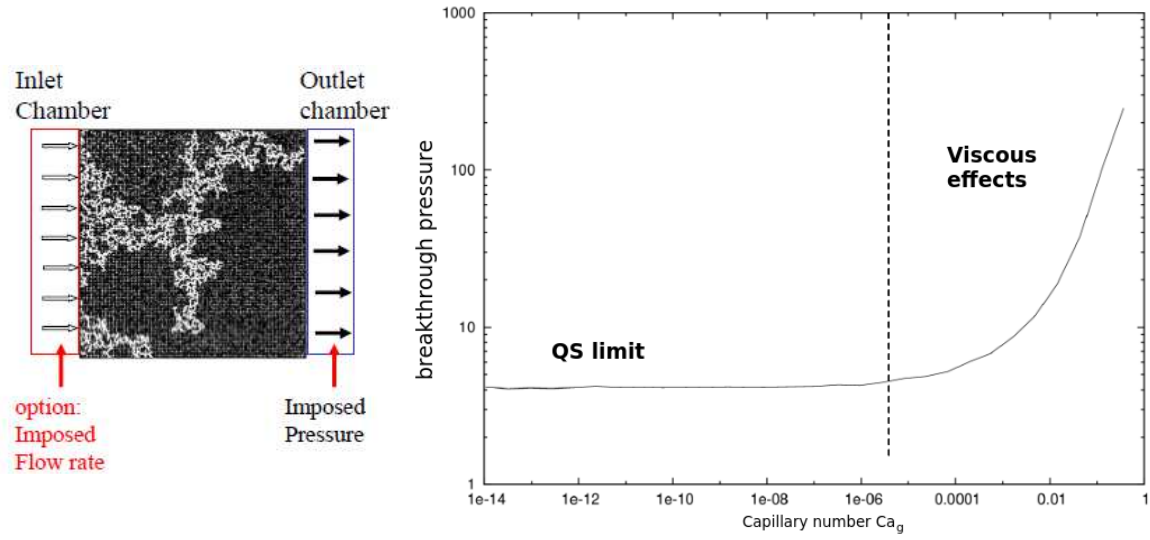


Figure 10. Simulations on a 50 × 50 2D pore network of the variation of breakthrough pressure as a function of capillary number when the flow rate is imposed at inlet . The dashed line approximately corresponds to the critical capillary number. The pressure is expressed in MPa.

Figure 10 shows a typical result obtained when the air injection flow rate is varied at the inlet. The results are expressed using the dimensionless flow rate (capillary number) $Ca = \dfrac{\mu_g Q}{\gamma A}$ Ca where Q is the injection flow rate, A the inlet cross-section area. The breakthrough pressure corresponds here to the pressure in the inlet chamber (mean pressure in the first row of pores as explained in Appendix 2) since we assume for simplicity a zero pressure in the outlet chamber. As expected, the QS solution, corresponding to the network percolation threshold, is recovered for sufficiently low injection flow rate. Above a « critical » flow rate, which in fact depends on the network size, the breakthrough pressure increases owing to the pressure drop accross the network due to viscous effects. The increase is rather progressive above the critical capillary number. The impact of viscous effects on the breakthrough pressure is therefore only significant for capillary numbers order of magnitude greater than the critical

capillary number. In summary this type of drainage experiment can lead to overestimate the breakthrough pressure if care is not exercised to perform the experiment at a sufficiently low capillary number.

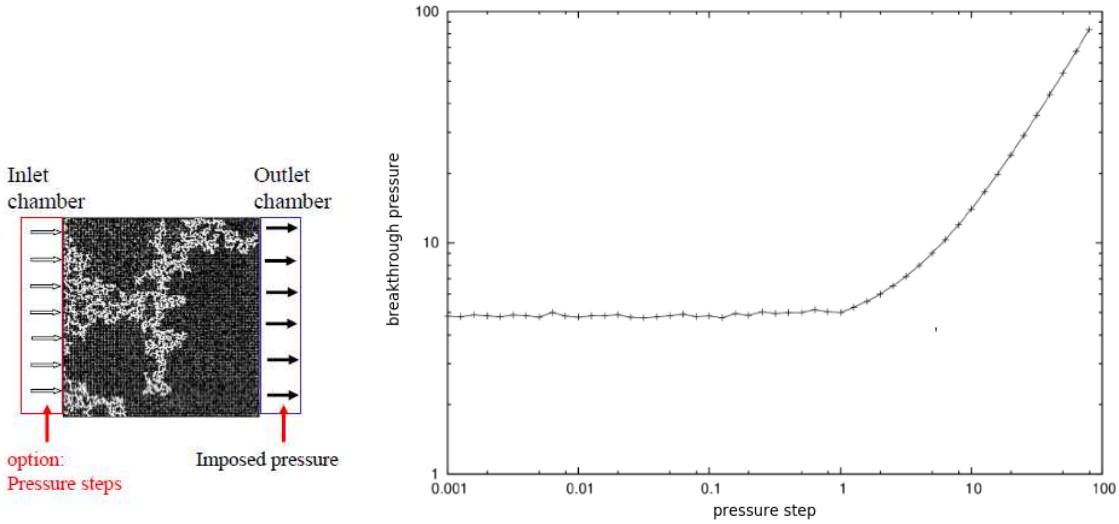


Figure 11. Simulations on a 50 × 50 2D pore network of the variation of breakthrough pressure as a function of pressure step increment when the drainage is controlled by pressure steps imposed at inlet. The pressure is expressed in MPa.

As illustrated in Fig.11, a similar result is obtained when the injection is performed by increasing the pressure at the inlet using a stepwise procedure. As expected, the breakthrough pressure is overestimated when the pressure difference between two steps is too large.

5.2 Drying with viscous and Kelvin's effects

The pore network drying algorithm used in this section is presented in detail in (Lefort and Prat 2013)[1]. The details are therefore not repeated here. This algorithm takes into account both the viscous effects in the liquid phase and the Kelvin's effect in addition to capillary effects and the transport by diffusion of the vapour in the region occupied by the gas phase in the network. The boundary condition at the open surface of network (surface in contact with external air) is expressed as

$$\phi_i = \frac{D M_v}{RT} d_{tij}^2 \left(\frac{P_{vi} - P_{v\infty}}{\delta}\right) \tag{12}$$

where ϕ_i us the vapour mass flux leaving the network from surface pore *I,* where the vapour partial pressure is P_{vi}; $P_{v\infty}$ is the vapour partial pressure in the surrounding air far from the porous medium ($P_{v\infty}$= RH_∞ P_{vsat} *(T),* where RH_∞ and P_{vsat} *(T)* are the relative humidity and equilibrium vapour partial pressure on a flat liquid - gas interface respectively*)* and δ is a length scale characterizing the external mass transfer (thickness of external mass boundary layer).

[1] Cette référence correspond au chapitre 3 du manuscrit

The idea is to explore the impact of viscous effects on the determination of breakthrough pressure from drying experiment according to the procedure described above, i.e. determination of relative humidity in external air leading to breakthrough and then use of Kelvin's relation ship to determine the breakthrough pressure.
One problem is that we cannot consider network sizes representative of real samples because of computational limitations. Consider for example a small cubic sample of 1 cm^3. We are interested in nanoporous materials. Thus let consider that the mean distance between two pores is on the order of 100 nm (which thus corresponds to the lattice spacing in our network model). We then would need a $10^5 \times 10^5 \times 10^5$ network to represent the 1 cm^3 cubic sample. In order to obtain reasonable computation times, we can actually consider networks with only a few tens of pores in each direction of space. This is especially true when the viscous effects are taken into account owing to the associated iterative procedures implying to compute the pressure field in the liquid several times per invasion steps, see (Lefort and Prat 2013) for more details. On the other hand, the consideration of small networks for evaporation rates in the range [1 - 10 mm /day] typical of laboratory slow evaporation experiments lead to drying patterns unaffected by viscous effects. This is so because the size of porous domain should be greater than the so-called viscous characteristic length, i.e. (Lehmann et al. 2008), for expecting to see a significant influence of viscous effects. This is so if we consider standard values of water viscosity and interfacial tension. Since we can perform the simulations only on small networks, we decided to increase artificially the viscosity so as to observe the impact of viscosity on small networks. We typically considered dynamical viscosity orders of magnitude greater than the physical value ($\approx 10^{-3}$ Pl for liquid water). The key point is to study the possible impact of pattern transition due to viscous effects. Increasing the viscosity is therefore just a mean to induce the pattern transition on a small network.

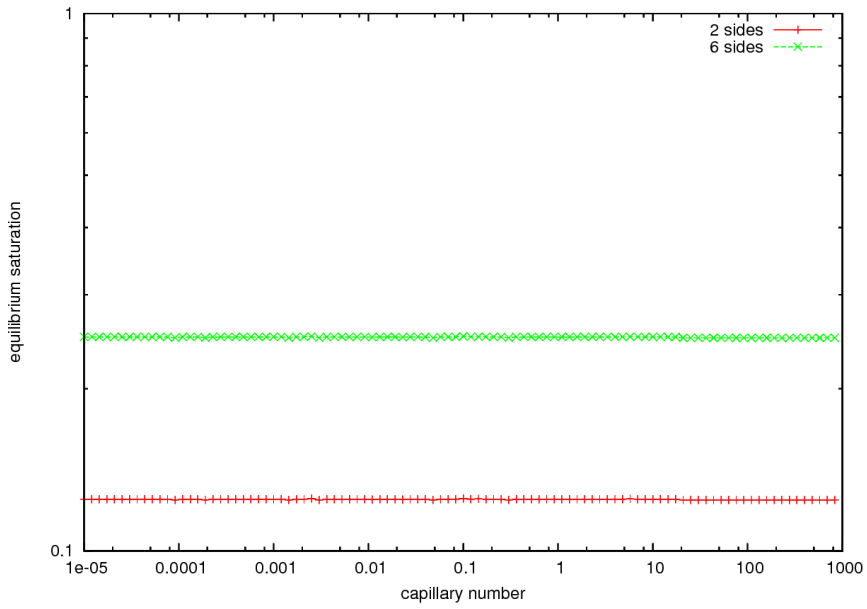


Figure 12. Equilibrium gas saturation as a function of capillary number $Ca_d = \frac{\mu_\ell e_0}{\gamma}$ in a $30\times30\times30$ network.

The influence of viscous effects is first illustrated through the consideration of equilibrium saturation, which is the liquid saturation at the end of drying when evaporation stops. For these simulations, we impose the relative humidity RH_∞ corresponding to breakthrough when

the QS drying algorithm is used (see § 4). For the network considered in this section, this leads to $RH_\infty = 0.8414$. Then we determine the equilibrium saturation using the full drying algorithm (Lefort and Prat 2013) varying the viscosity. The results are presented in Fig.12 and expressed as a function of capillary number $Ca_d = \frac{\mu_\ell e_0}{\gamma}$.

As can be seen, there is no impact of viscous effects on the equilibrium saturation and actually on the breakthrough pressure. In fact, the equilibrium relative humidity corresponding to the biggest throats in network is $RH_{MAX} = 0.8659$, thus quite close to the imposed relative humidity in the surrounding air ($RH_\infty = 0.8414$). Thus result is a quite low evaporation rate, the evaporation rate is proportional to (RH_{MAX} - RH_∞) at the beginning of drying and then still decrease with the lowering of relative humidity at the sample surface, and therefore no significant influence of viscous effects. These results thus suggest that a quite limited impact of viscous effects on drying pattern is expected under these circumstances, i.e. when drying is performed with external conditions corresponding to the breakthrough pressure relative humidity.

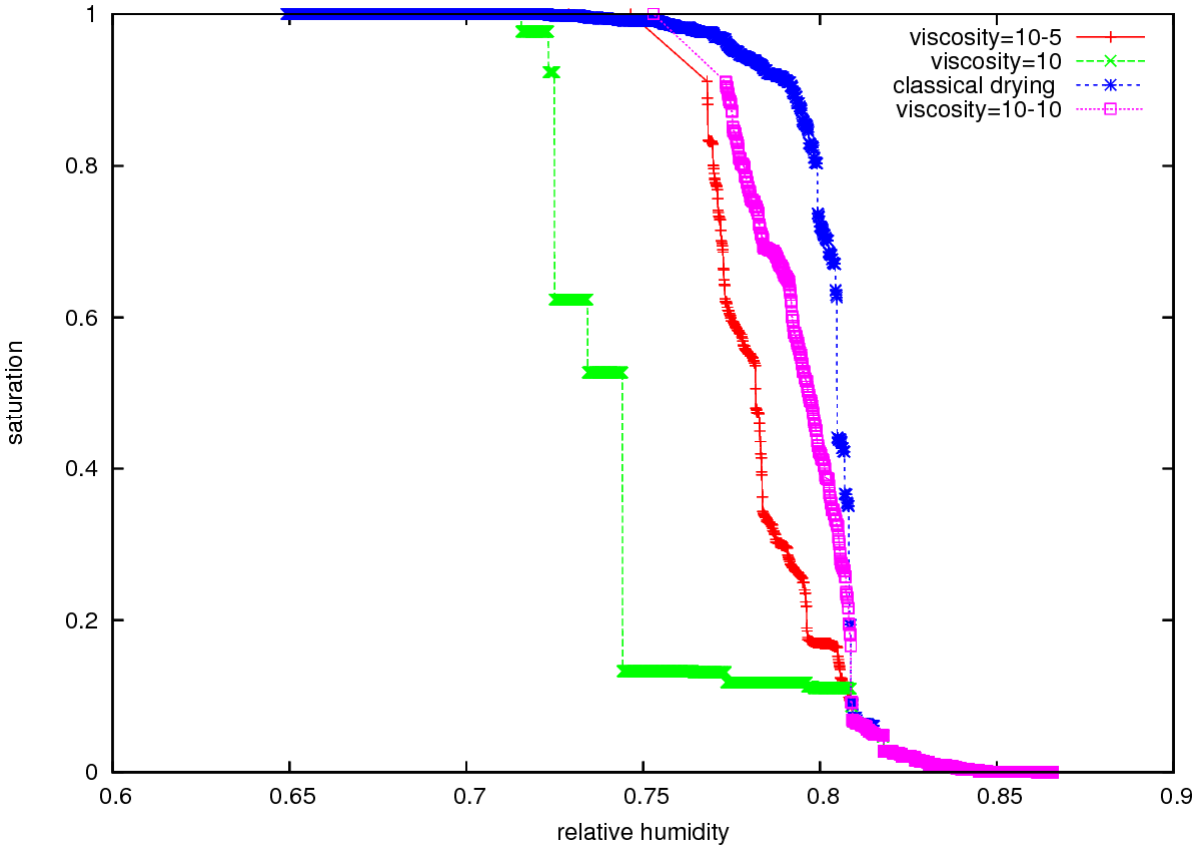


Fig. 13. Variation of equilibrium saturation with relative humidity in external air RH_∞ for various values of liquid viscosity. The capillary drying (no viscous effect) is referred to as the "classical" drying in the figure. Simulations on a 50 x 50 2D network with throat size distributed in the range [5nm, 15 nm] and two open sides. The lattice spacing is a = 100 nm. The external mass transfer length scale is δ = 5 cm. The temperature is 20°C.

This is confirmed from the computation of equilibrium saturation varying the relative humidity RH_∞ in the external air as reported in Figure 13. As can be seen, the effect of viscosity becomes significant when RH_∞ is sufficiently small whereas the equilibrium saturation does not depend on viscosity for sufficiently high RH_∞. It can be also noted that the simulations taking into account the viscous effects consistently tend toward the curve obtained with the drying algorithm neglecting the viscosity as the viscosity decreases.

6. Overview of mechanical effects

Owing to the high pressure variations that can be due to either capillary effects or viscous effects in tiny pores, the question arises as to whether the porous matrix can be really considered as non-deformable. Actually, the increasingly prevailing opinion is that couplings between flows and local deformation of pores do exist in many situations involving nanoporous materials. This pore scale mechanical effects can have an impact on flows and therefore on breakthrough pressure as well. This would be a typical example of situations where flows and poro-mechanical effects are intimately coupled.

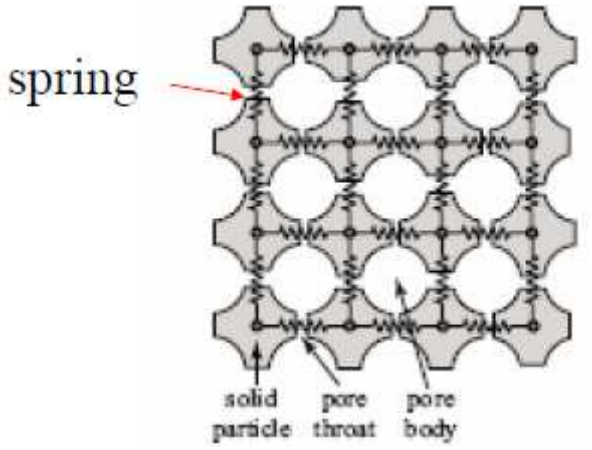


Figure 14. Modelling of microstructure deformation from the representation of solid phase as a system of interconnected springs) adapted from (Holtzman et. Juanes 2010)

As illustrated in Fig.14, a simple way of gaining insights into this type of problem within the framework of the pore-network models is to represent the solid phase as a network of interconnected springs, e.g. (Holtzman and Juanes 2010).

L'étude correspondante fait l'objet du Chapitre 7 du manuscrit. Elle montre qu'une pression de percée plus faible est obtenue lorsque l'effet de dilatance dû au passage du gaz à travers l'échantillon est suffisamment marquée. En clair, ce modèle couplé réseau de ressorts - réseau de pore conduit à un élargissement local des liaisons par lesquelles passe le gaz et donc à des seuils d'invasion capillaire plus faible que quand le milieu ne se déforme pas.

7. Conclusion

Pore network simulations on square and cubic networks were performed to investigate the concept of breakthrough pressure. The breakthrough pressure has a clear definition when the pore space can be represented as a random pore network of sites and bonds (throats). It corresponds to the percolation threshold of network and thus can be determined from the

value of the considered network percolation threshold and the throat size distribution. An alternative when the pore network is constructed from 3D images of real microstructures, using X-ray tomography or other techniques, is to use the invasion percolation algorithm to determine the breakthrough pressure.

Empirical determination can be also obtained from the van Genuchten representation of the retention curve when such a representation is of course well adapted to the considered porous material.

The pore network simulations show that the drainage method and the drying method lead to the same value of breakthrough pressure if the corresponding experiments are performed so that the viscous effects have a negligible influence on the invasion pattern compared to capillary effects. Otherwise, the consequence of viscous effects is to overestimate the breakthrough pressure.

Dilatancy effects, i.e. reversible deformations of the microstructure due to the gas invasion, tend to decrease the breakthrough compared to the situation where the porous medium can be considered as rigid. This point is discussed in more depth in Chapter 7 of the thesis.

Several effects were neglected in the study. These include the gas dissolution in the liquid and the compressibility of the gas. It might be interesting to considered these effects in a future work.

Acknowledgements.
Financial supports from ANDRA as well as the numerous discussions with the members of ANDRA "GL Gaz" committee and in particular with J.Talandier are gratefully acknowledged.

References

Babalievski, F., 1998, Cluster counting: the Hoshen-Kopelman algorithm versus spanning tree approaches, International Journal of Modern Physics C, Vol 9, No 1, p. 43-60.

Blunt M.J., Jackson M.D.,Piri M.,Valvatne P.H.,2002, Detailed physics, predictive capabilities and macroscopic consequences for pore-network models of multiphase flow, Adv. Water Resour.;25, 1069-1089.

Dullien, F.A.L., 1992, Porous Media Fluid Transport and Pore Structure, Academic Press.

Dullien, F.A.L., Zarcone, C, Mac Donald, I.F., Collins A., and Bochard, R.D.E, 1989, The effects of surface roughness on the capillary pressure curves and the heights of capillary rise in glass bead packs, J. of Colloid and Interface Sci., **127** (2), 362 – 372..

Dodds J.A., and Srivastava, P., 2006, Capillary pressure curves of sphere packings: correlation of experimental results and comparison with predictions from a network model of pore space,".Part. Part. Syst. Charact. **23**, 29-39.

Holtzman R. and R. Juanes**,** 2010. Crossover from fingering to fracturing in deformable disordered media Phys. Rev. E 82, 046305.

Joekar-Niasar, V.; Hassanizadeh, S. M.; Dahle, H., 2010, Dynamic Pore-Network Modeling of Drainage in Two-Phase Flow, *Journal of Fluid* Mechanics, vol. 655 , pp. 38 – 71.

Lefort, P. , Prat, M., 2013, Pore network model of drying with Kelvin's effect, to be submitted.

Lehmann, P., S. Assouline, and D. Or, 2008. Characteristic lengths affecting evaporative drying of porous media, Phys. Rev. E, 77, 056309.

Lenormand R., Touboul E., Zarcone C. (1988) Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J.Fluid Mech.* 189: 165-187.

Metzger, T., Tsotsas, E., Prat, M., 2007, Pore network models : a powerful tool to study drying at the pore level and understand the influence of structure on drying kinetics,

Chapter 2, pp.57-102, in "Modern Drying Technology", Volume 1 "Computational tools at different scales", A.Mujumdar and E.T.Tsotsas Ed., Wiley.
Renault, P., 1991, The effect of spatially correlated blocking-up of some bonds or nodes of a network on the percolation threshold , *Transport in Porous Media* 6: 451-468..
Sarrot,V., M. Prat, (2010). Hyperslow drainage in a porous medium. Influence of retention curve. *Advances in Water Resources,* 33 987–996.
Stauffer D., Aharony A.. (1992). Introduction to percolation theory. Taylor & Francis, London.
van Genuchten, M. T., 1980. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Sci. Soc. Am. J*., 44: 892– 898.
Wilkinson D.,Willemsen, J.F.(1983) Invasion percolation: a new form of percolation theory, *J.Phys. A: Math. Gen*. 16: 3365-3376.
Xu B., Yortsos Y., Salin D.(1998). Invasion percolation with viscous forces. *Phys. Rev. E* 57(1):739-751.
Yortsos Y., Xu B., Salin D. (1997) Phase diagram of fully developed drainage in porous media. *Phys. Rev. Lett.* 79(23): 4581-4584.

Appendix 1 Computation of retention curve from PN simulations.

To compute $P_c(S_w)$, we used the following algorithm, which relies on IP concepts considering networks of size $N \times N \times N$. For a given realization of the network (the final capillary curve is obtained by averaging the results over 100 realizations of the network), we start with a network saturated in wetting fluid and determine the overall capillary pressure as a function of S_w for successive states of hydrostatic equilibrium corresponding to small increment dP_{nw} in the non-wetting fluid pressure (the wetting fluid pressure is maintained constant). The algorithm used to determine the saturation evolution right after a non-wetting fluid pressure increment reads:

1. Identification of each bond that can be invaded, that is each wetting fluid bond such that its capillary pressure threshold $p_{cap,}$ (Eq.(1), is lower than the pressure difference $P_{nw} - P_w$ between the two fluids.
2. Identification of clusters formed by the bonds identified in 1) using the deep search algorithm, (Babalievski 1998)
3. Identification of clusters among the clusters identified in 2) in contact with the invading non-wetting phase
4. Invasion of all clusters identified in 3)
5. Computation of overall saturation

Note that pore trapping is not taken into account here as well as in the rest of the paper, only trapping of isolated throats is considered (a throat of wetting liquid between two pores invaded by the non-wetting fluid is considered as trapped and cannot be invaded), see for example (Bunt et al. 2002) and references therein for more details on this aspect. It should be noted that trapping is negligible for the range of high saturations that are of primary interest in the present study.

PARTIE II : DRAINAGE HYPERLENT

CHAPITRE 5

DRAINAGE HYPERLENT

1.Introduction

Ce chapitre est dédié à l'étude du drainage hyperlent, c'est-à-dire au déplacement non-miscible très lent d'un liquide mouillant (l'eau dans le problème du stockage) saturant complètement le milieu poreux initialement par un fluide non-mouillant (l'hydrogène dans le problème du stockage). Comme mentionné dans le chapitre d'introduction à cette thèse, l'aspect particulier qui justifie une étude spécifique est le très faible débit d'injection. Ceci conduit à des nombres capillaires de plusieurs ordres de grandeurs inférieurs que ceux rencontrés dans les applications classiques, comme en génie pétrolier par exemple.
Comme indiqué également dans le chapitre d'introduction, on peut découper l'étude en deux problèmes : le problème « fondamental » et le problème de paramétrisation. Le problème fondamental est la question de la validité du modèle diphasique continu classique pour décrire le drainage hyperlent. Le problème de la paramétrisation, si on fait ici l'hypothèse que l'étude du problème fondamental conduit à considérer le modèle biphasique classique comme applicable, est de savoir comment spécifier les paramètres du modèle (essentiellement la perméabilité relative au gaz et la courbe de rétention) dans la gamme des très fortes saturations en fluide mouillant.
Après évaluation du rapport de viscosité et du nombre capillaire, ce chapitre est organisé suivant ce découpage. Rappelons qu'ici l'étude se veut générique dans les cadres des hypothèses retenues (transport de l'H_2 en phase dissoute négligée, microstructure poreuse indéformable) et est conduite en partie à partir de simulations numériques sur un milieu poreux modèle, un simple réseau de pores cubique. Toutes les questions relatives à l'applicabilité des résultats présentés au cas particulier de l'argilite sont renvoyées au chapitre 8. La solution du drainage hyperlent sous l'hypothèse de milieu rigide est étudiée dans le chapitre suivant (Chap.6). L'impact d'une possible déformation de la microstructure est considérée au chapitre 7.

2. Position du drainage hyperlent dans le diagramme de Lenormand

Pour étudier le drainage il faut commencer par estimer les nombres sans dimension caractérisant le déplacement. Si on néglige les effets gravitaires étant donnée les tailles de pores dans l'argilite (inférieures aux microns en majorité) et les distances sur lesquelles devraient se faire le déplacement (de l'ordre de quelques dizaines de mètres), les paramètres clés sont d'après les travaux de Lenormand et al. 1988 (cf Figure 1), $M = \frac{\mu_\ell}{\mu_g}$ (= rapport des viscosités dynamiques $\approx 10^2$ dans le cas de l'eau et de l'hydrogène) et le nombre capillaire $Ca = \frac{\mu_g U}{\gamma}$ où U est une vitesse de filtration caractéristique du déplacement, γ la tension de surface (de l'ordre de 72 10^{-3} N/m) et μ_g la viscosité dynamique du fluide injecté ($\mu_g \approx 10^{-5}$ pl pour l'hydrogène).

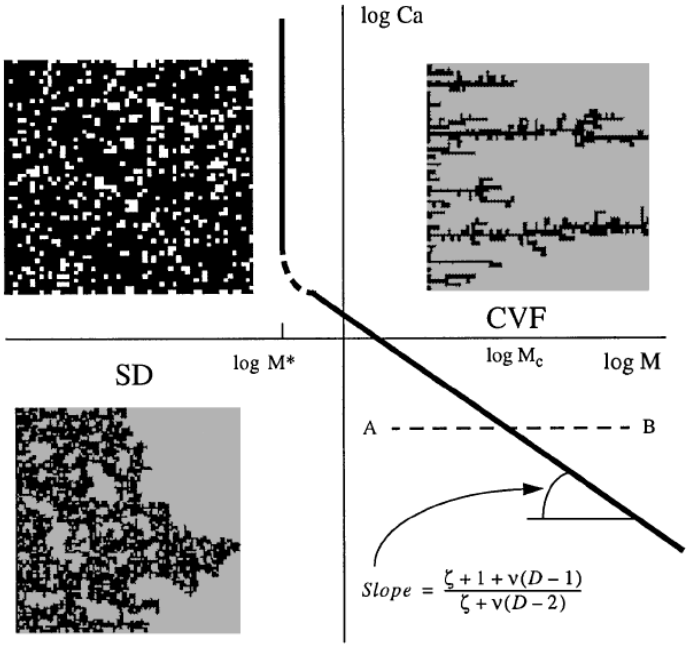


Figure 1 Diagramme des phases du drainage (Lenormand et al., 1988, Yortsos et al., 1997). SD signifie « stable displacement » tandis que CVF signifie « capillary viscous fingering ».

Dans le cas qui nous intéresse, on peut faire l'estimation suivante du nombre capillaire. En s'appuyant sur le document ANDRA relatif à l'exercice cas test couplex gaz 1, on suppose que 100 moles d'H2 sont générées par an dans le volume représenté sur la Figure 2.

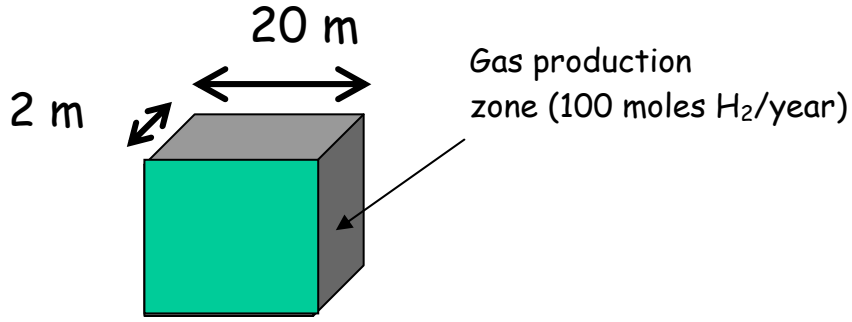


Figure 2. Volume et surface d'échange (en gris) utilisés pour le calcul de la vitesse de filtration de référence

Ceci conduit à un débit à travers la surface grise de $Q = \frac{22.4x100x10^{-3}}{3600x24x365} = 7.\ 10^{-8}\, m^3/s$ et à une vitesse de filtration,

$$U = \frac{Q}{S} = \frac{7.\ 10^{-8}}{4x20x2} \approx 4.10^{-10}\, m/s$$

Ce qui donne pour le couple eau-H_2, $Ca \approx 10^{-13}$-10^{-14}, soit comme annoncé plus haut des valeurs très inférieures aux situations classiques (plutôt de l'ordre de 10^{-8} - 10^{-7} pour les valeurs les plus basses).

La considération « brutale » de ces valeurs dans le diagramme proposé par Lenormand et al. en 1988 conduit à la conclusion que le régime est de type digitation capillaire, un régime dominé par la capillarité dont il est connu qu'il ne peut pas être simulé par le modèle continu diphasique classique. La raison fondamentale est que la distribution des phases forme un object fractal, un amas de percolation, incompatible avec le concept de volume élémentaire représentatif (VER), c'est-à-dire de séparation d'échelle VER / taille macroscopique sous jacent à l'approche continue classique.
Il est donc crucial de réaliser que les valeurs de *Ca* marquant les frontières des différents régimes asymptotiques dans le diagramme de 1988 sont propres au milieu poreux modèle considéré par Lenormand et al. En réalité, d'autres facteurs que le nombre capillaire, comme la nature 2D ou 3D de l'écoulement à l'échelle du réseau de pores ou encore l'étalement de la distribution des tailles de liens et de pores interviennent pour fixer les domaines de validité des différents régimes d'écoulements.
Les frontières des régimes asymptotiques ainsi que les régimes de transition entre les différents régimes peuvent s'étudier théoriquement à partir d'une extension de la théorie de la percolation d'invasion (IP), (Wilkinson et Willemsen, 1983), appelée percolation d'invasion en gradient (IPG). D'abord développée par Wilkinson (1984,1986), cette théorie a été développée de façon plus approfondie par Yortsos et coll. (Yortssos et al. 1997, Xu et al. 1998). Nous nous baserons très directement sur ces deux derniers articles pour étudier ce que nous avons appelé le problème fondamental. Alors que la percolation d'invasion ne permet de décrire que la situation asymptotique ($Ca \rightarrow 0$) où seuls les effets capillaires contrôlent la distribution des phases, la percolation d'invasion en gradient permet de prendre en compte l'effet d'autres forces, comme les forces gravitaires ou dans notre cas les forces visqueuses. L'idée essentielle est que les gradients de pression d'origine visqueuse (ou gravitaire) induisent un gradient dans la probabilité d'occupation des pores par l'une ou l'autre phase, la théorie de la percolation en gradient rendant compte précisément des situations où il existe un gradient dans la probabilité d'occupation.

3. Le problème fondamental.

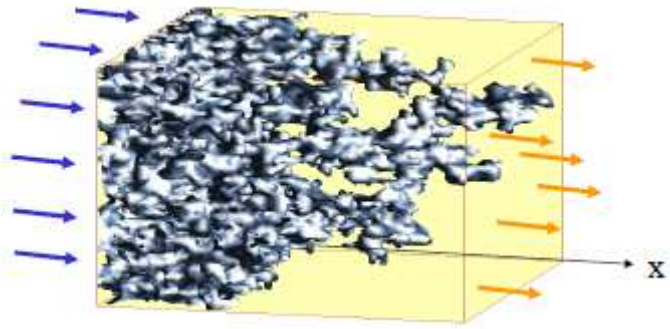


Figure 3. Situation de drainage rectilinéaire (simulée ici par l'algorithme de percolation d'invasion).

Dans cette partie, on suppose un drainage rectilinéaire (Figure 3). Le cas du drainage radial, plus représentatif a priori de la situation du stockage est brièvement discuté en fin de chapitre. Le milieu est supposé complètement resaturé par le fluide mouillant quand le drainage commence. On suppose le milieu poreux assimilable à un réseau « monoéchelle »,

c'est-à-dire caractérisé par une seule distance moyenne entre pores, par exemple pour fixer les idées un réseau cubique de pas a.

A partir des données ANDRA, les valeurs des nombres sans dimension intervenant dans le diagramme des phases (Fig. 1) peuvent donc être estimées à respectivement $Ca \approx 10^{-14}$ et $M = 10^2$. Compte tenu de ce très faible nombre capillaire, une application brutale du diagramme des phases pourrait conduire, comme indiqué dans la section précédente, à la conclusion erronée que le déplacement est de type « capillary fingering », c'est-à-dire descriptible à l'aide de l'algorithme de percolation d'invasion (IP), régime asymptotique fractal qu'on ne peut simuler à l'aide du modèle continu classique. En réalité, ce régime n'est observé que pour des longueurs de déplacement suffisamment faibles. Pour des longueurs de déplacement plus grandes, les gradients de pression dus aux effets visqueux influencent le déplacement et le régime d'invasion cesse d'être un régime de pure percolation d'invasion (Yortsos et al., 1997), (Xu et al., 1998).

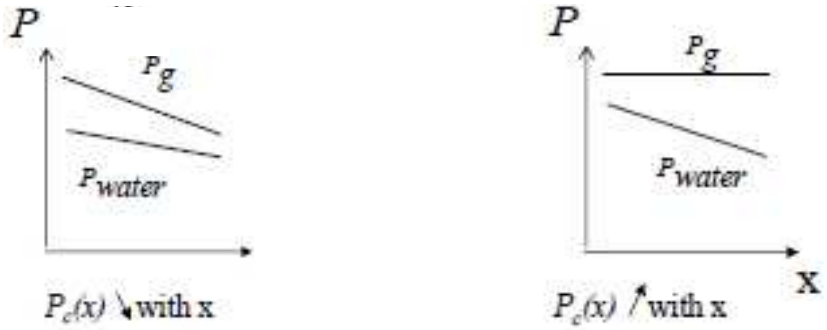
Comme cela est analysé en détail dans (Yortsos et al., 1997) et (Xu et al., 1998), deux régimes peuvent être alors observés quand les effets visqueux deviennent suffisamment importants : un déplacement stable ou des digitations capillaro-visqueuses. La théorie, (Yortsos et al., 1997), (Xu et al., 1998), fournit un critère pour savoir lequel de ces deux régimes va prévaloir. Ainsi dans le cas d'un déplacement rectilinéaire, le déplacement est stable quand

$$\frac{Ca}{\Sigma} M^{[\zeta+1+\nu(D_f-1)]/[\zeta+\nu(D_f-2)]} << 1 \qquad (3.1)$$

où Σ est l'écart type sans dimension de la distribution des tailles de lien (le pas du réseau a est utilisé comme longueur de référence). Les exposants intervenant dans les différentes expressions, dont l'Eq.(3.1) sont les exposants « universels » de la théorie de la percolation ordinaire (Stauffer et Aharony, 1992). Ainsi ζ est l'exposant de la conductivité de la théorie de la percolation, ν est l'exposant de la longueur de corrélation, D_f la dimension fractale de l'amas percolant (cf Chap.1). L'Eq.(3.1) indique donc que le déplacement peut être stable même pour une valeur grande de M pourvu que le nombre capillaire soit suffisamment petit. En substituant dans l'Eq.(3.1) les valeurs des exposants pour un système 3D ($\zeta = 2.$, $\nu = 0.88$, $D_f = 2.52$) on obtient $\frac{Ca}{\Sigma} M^{1.76} << 1$. Pour les très faibles valeurs du nombre capillaire intéressant notre étude, $Ca \approx O(10^{-14})$, le régime est donc stable et correspond à un régime de percolation d'invasion dans un gradient stabilisant (IPSG).

La formule (3.1) peut paraître quelque peu abstraite. Il n'est donc peut-être pas inutile d'en donner une interprétation physique qualitative. Le problème étudié peut se voir comme un problème de stabilité où la solution de base est la solution donnée par la percolation d'invasion (solution illustrée sur la Figure 3) et où on cherche à déterminer comment les effets visqueux vont perturber cette solution. Il est important de noter que cette solution de base n'est pas descriptible par une équation aux dérivées partielles dans le cadre de l'approche continue des milieux poreux. Ceci explique que l'on ne peut pas procéder ici selon un schéma classique d'étude de stabilité hydrodynamique (à la Saffman-Taylor par exemple). Au contraire, l'étude s'appuie sur une approche discrète, le milieu poreux étant vu comme un réseau de pores. L'analyse conduit alors essentiellement à analyser la distribution dans la direction moyenne de l'écoulement de la pression moyennée par tranche dans chaque phase. La solution de base pour la phase déplaçante étant un amas de percolation, il n'est alors pas surprenant que l'estimation de la distribution de pression dans cette phase fasse intervenir les exposants de la théorie de la percolation.

Comme cela est schématisé sur la Figure 4, si du fait des effets visqueux la pression capillaire $P_c = P_g - P_\ell$ augmente avec x (cas de la percolation d'invasion dans un gradient déstabilisant (IPDG)) ou si au contraire P_c diminue avec x, ce qui correspond au cas de la percolation d'invasion dans un gradient (de probabilité d'occupation) stabilisant (IPSG).



a) IPSG b) IPDG

Figure 4. Distribution schématique de la pression dans le cas où les effets visqueux sont stabilisants (a) et dans le cas où ils sont déstabilisants.

Dans le premier cas (IPDG) les effets visqueux induit dans la phase liquide sont suffisant pour créer une chute de pression supérieure à celle dans le gaz (fluide déplaçant) et des digitations visqueuses sont attendues (ceci est obtenu pour des nombres capillaires suffisamment élevés) alors que dans le second cas (IPSG) le gradient de pression dans le gaz est supérieur au gradient de pression de la phase liquide et une structure d'invasion stabilisée sans digitations visqueuses est attendue. Ce gradient de pression supérieur dans la phase gaz est une conséquence de la structure ramifiée, donc hydrauliquement peu conductrice, de la phase gaz pour les nombres capillaires suffisamment faibles (au sens de l'Eq.(3.1)).

La théorie, (Yortsos et al., 1997), (Xu et al., 1998), fournit aussi une équation pour estimer la longueur X_e (rendue sans dimension en utilisant comme précédemment le pas de du réseau a comme longueur de référence) en dessous laquelle les effets visqueux peuvent être négligés (régime descriptible par la percolation d'invasion)),

$$\frac{Ca}{\Sigma} X_e^{\frac{1+\nu}{\nu}} \left[cX_e^{\frac{\zeta+\nu(D-2)}{\nu}} - M \right] - q = 0. \qquad (3.2)$$

où q est un petit paramétre d'ordre 10^{-2} et où c est une constante d'ordre 1. Avec les valeurs des exposants pour un système 3D, et en prenant $\Sigma \approx 1$ (ce qui correspond à un écart type de la distribution des tailles de lien du réseau de l'ordre du pas du réseau), on obtient à partir de l'Eq.(3.2) $X_e \approx 355$ pour $Ca = 10^{-12}$, $X_e \approx 1151$ pour $Ca = 10^{-14}$ et $X_e \approx 3727$ pour $Ca = 10^{-16}$. Ainsi, on s'attend à ce que la transition entre le régime d'IP et le régime d'IPSG se produise lorsque le déplacement se développe sur une distance supérieure à environ 1000 pas de réseau. Pour par exemple une distance moyenne entre pores (pas du réseau) $a = 1$ μm, ceci donne $x_e \approx aX_e \approx 1$ mm, une distance très courte par rapport à la distance attendue de pénétration du gaz (de l'ordre de quelques dizaines de mètres d'après les simulations ANDRA). On conclut donc que le régime de drainage nous intéressant est le régime IPSG.

La théorie, (Yortsos et al., 1997), (Xu et al., 1998), donne aussi la structure du profil de saturation attendu dans un tel déplacement (cf. Figure 5) quand celui-ci est pleinement développé (ce qui ne sera pas le cas du drainage hyperlent).

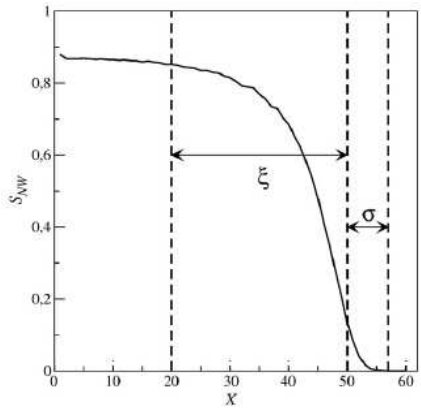


Figure 5. Allure du profil de saturation pleinement développé dans le régime IPSG. ξ est la taille de la zone de transition de la saturation dans la région « compacte », σ est la taille de la région fractale en tête d'invasion.

Comme cela est schématisé sur la Fig.5, on peut distinguer deux régions: une courte région frontale de taille σ suivie d'une région compacte beaucoup plus grande de taille ξ. La loi d'échelle gouvernant la taille ξ est donnée par

$$\xi \sim \frac{\sqrt{k}}{a} Ca^{-1} \tag{3.3}$$

où k est la perméabilité du milieu poreux;, tandis que σ est donné par l'équation,

$$\sigma^{1+1/\nu}\left(\sigma^{[\zeta+\nu(D-2)]/\nu} - bM\right) \approx \frac{2\Sigma}{Ca_F C} \tag{3.4}$$

où b est une constante d'O(1); C est une constante sans dimension. D'après (Xu et al., 1998), C est de l'ordre de r_m^2/k, où r_m est le rayon moyen des liens. En utilisant la relation classique de Kozeny-Carman, e.g. (Dullien, 1992), on obtient C~100. On peut donc prendre C = 100, sachant que de toute façon changer cette constante de un ou deux ordres de grandeur ne change pas les conclusions de l'analyse. Ca_F est un nombre capillaire défini par $Ca_F = \frac{u\mu_{nw}}{\gamma}$, où u est la vitesse du front d'invasion. En faisant l'hypothèse raisonnable que $Ca_F \approx O(Ca)$ (ce que est a priori d'autant plus raisonnable que la désaturation du milieu est faible sur toute l'étendue du déplacement, cas qui est celui qui nous intéresse), l' Eq. (3.4) est identique à l'Eq.(3.2) et nous concluons donc que σ ~ O(10^3) dans notre cas. L' Eq.(3.3) donne $\xi a \sim \sqrt{k} Ca^{-1} \approx 10^4$ m (en prenant la perméabilité de l'argilite soit k~10^{-20} m^2). Ainsi si nous prenons 1 μm comme distance moyenne entre deux pores (pas du réseau) (une distance plus petite est attendue pour l'argilite mais cela ne change pas le résultat ξ >> σ), nous concluons que ξ^*~ 10^4 m et σ^* ~ 1mm, où l'astérisque * désigne une quantité dimensionnelle.

Pour le problème du stockage, le déplacement est plutôt attendu intéresser une distance de l'ordre de la dizaine de mètres, c'est-à-dire trois ordres de grandeur plus faible que ξ^*. Comme on le verra au chapitre 6, ceci s'explique par le fait que le profil n'est pas développé dans le cas du drainage hyperlent (la saturation en entrée du fluide mouillant est loin d'atteindre la saturation irréductible). Comme cela est schématisé sur la Fig.5, ξ représente

la distance sur laquelle la saturation passe de zéro à une saturation élevée (correspondante à la saturation irréductible en fluide mouillant (Dullien, 1992)). La saturation reste donc essentiellement constante dans la zone située après la zone de taille ξ.

En conclusion sur cette partie, l'application de la théorie de la percolation d'invasion en gradient (IPG) indique:

1) que le déplacement est stable et donc compatible avec le modèle diphasique classique.
2) qu'il s'effectue sur une distance beaucoup trop courte pour espérer voir un profil de saturation pleinement développé

En d'autres termes, pour un milieu assimilable à un réseau de pore mono-échelle, la conclusion est qu'il n'y a pas de problème de validité générale du modèle diphasique continue classique, l'aspect hyperlent favorisant la stabilisation des profils de saturation. Il reste donc « uniquement » à spécifier optimalement les paramétres du modèle, c'est à dite les perméabilités relatives et la courbe de rétention, dans la gamme des très fortes saturations. Ceci constitue l'objectif des parties suivantes (§ 4-5-6) et en réalité aussi du chapitre suivant consacré à la solution du drainage hyperlent.
Naturellement, il convient de garder à l'esprit que cette importante conclusion n'est obtenue que pour un milieu rigide indéformable assimilable à un réseau de pores monoéchelle et dans lequel la physique de déplacement à l'échelle des pores est celle qui a été observée dans les systèmes modèles tels que ceux utilisés par exemple par Lenormand et al. 1988.

4. Le problème de paramétrisation

4.1 Introduction

Le comportement des paramètres du modèle dans la gamme des très fortes saturations en fluide mouillant est étudié à partir de simulations sur réseau de pores, un réseau cubique simple (cf. Fig.6) de pas a (a est la distance entre deux pores voisins). Un repère cartésien étant choisi, on dispose N_x (resp. N_y, N_z) sites régulièrement suivant la direction x (resp. les directions y et z). La taille du réseau est alors $N_x \times N_y \times N_z$. Les pores (sites) sont des cubes de coté d_p distribués aléatoirement suivant une loi de probabilité uniforme entre d_{pmin} = 0.75 et $d_{pmax.}$ =*0.9* (mesuré en unité de pas de réseau). Les liens sont des tubes de section carrée de coté d_ℓ distribués aléatoirement suivant une loi de probabilité uniforme entre $d_{\ell\,\min}$=0.4 et $d_{\ell\,\max}$=0.75. Sauf mention contraire, l'extension du réseau est la même dans les trois directions, $L = a\,N_x = a\,N_y = aN_z$.
La longueur d'une liaison (entre les pores i et j) est alors donnée par

$$\ell = a - \frac{1}{2}\left(d_{pi} + d_{pj}\right) \qquad (4.1)$$

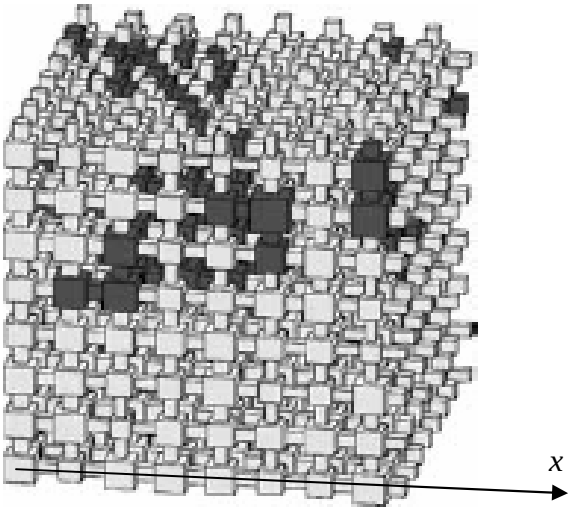


Figure 6. Le milieu modèle : un réseau de pore cubique

En accord avec le concept fondamental de l'équilibre capillaire local, sur lequel repose le modèle diphasique classique (cf. Chapitre 1), la distribution des phases est calculée selon l'hypothèse d'une distribution hydrostatique, c'est-à-dire uniquement contrôlée par les forces capillaires. La façon dont les distributions hydrostatiques sont calculées pour différents degrés d'occupation du réseau par chacune des phases est précisée dans les sections relatives aux calculs de la courbe de rétention et des perméabilités relatives respectivement.
Auparavant, il est utile de déterminer la perméabilité de notre système poreux modèle.

4.2 Perméabilité

Pour calculer un écoulement visqueux sur le réseau, le débit circulant q_{ij} dans un lien (lien ij entre les pores i et j) est exprimé par une loi de type Poiseuille,

$$q_{ij} = \frac{g_{ij}}{\mu} \delta P_{ij} \tag{4.2}$$

où μ est la viscosité du fluide, $\delta P_{ij} = P_i - P_j$ est la différence de pression entre le pore i et le pore j ; g_{ij} est la conductance hydraulique du lien qui est calculée par

$$g_{ij} = 0.1425 \frac{d_\ell^4}{\ell} \tag{4.3}$$

où ℓ est calculée à l'aide l'Eq.(4.1).

En exprimant la conservation du débit en chaque nœud (site) du réseau,

$$\sum_{j=1,6} q_{ij} = 0. \tag{4.4}$$

on forme un système linéaire dont la résolution par voie numérique donne la pression en chaque nœud du réseau. Les conditions aux limites sont d'imposer un écart de pression $\Delta P = P_e - P_s$ entre deux faces opposées du réseau, par exemple entre la face située en $x = 0$ et la face située en $x = (N_x\text{-}1)a$, et des conditions de flux nul sur les quatre autres faces.

L'application de la loi de Darcy permet alors de calculer la perméabilité à partir de l'équation,

$$Q = \frac{K}{\mu} \frac{\Delta P}{(N_x - 1)a} N_y N_z a^2 = \sum q_{ij} \tag{4.5}$$

où la somme du membre de droite est la somme des débits dans n'importe quelle rangée de liens dans un plan y z du réseau.

Pour notre réseau on trouve les résultats suivants où <*K*> est la moyenne sur le nombre de réalisations considérées et σ_K est l'écart type.

Tableau 4.1 Perméabilité intrinsèque du réseau en fonction de sa taille (mesurée en nombre de pores selon les trois directions d'un repère cartésien)

Taille du réseau	$(<K>/a^2)\ x10^{4}$	$(\sigma_k/a^2)\ x\ 10^6$	Nombre de réalisations
5×5×5	1.1202	7 .709	20000
10×10×10	1.0281	2.4139	20000
20×20×20	0.97949	0.81514	2000
30×30×30	0.96527	0.43265	2000
40×40×40	0.95771	0.276	2000
50×50×50	0.95310	0.206	2000
60×60×60	0.94960	0.194	200
70×70×70	0.94709	0.173	200
80×80×80	0.94473	0.16	100
90×90×90	0.94274	0.12	40

4.2 Courbe de rétention

L'algorithme de calcul de la courbe de rétention vise à imiter la procédure de détermination expérimentale de cette courbe en procédant par palier de pression. Le réseau est supposé complètement saturé en fluide mouillant initialement. Le fluide non-mouillant peut entrer dans le réseau par l'une des faces, par exemple celle située en $x = 0$. Le fluide mouillant peut sortir par la face opposée (celle donc située en $x = (N_x\text{-}1)$ a). Le fluide non-mouillant ne peut pas s'échapper par la face de sortie (on fait comme s'il y avait une membrane semi-perméable). Les faces latérales sont étanches. Pour calculer la relation pression capillaire – saturation, on procède par incrément de pression dans le fluide injecté, la pression dans le fluide mouillant sortant étant maintenue constante. L'angle de contact est supposé nul et le seuil d'invasion d'un lien est donné par $p_{th} = \frac{4\gamma}{d_\ell}$.

L'algorithme utilisé est le suivant :

1. Numérotation des nœuds du réseau *(i,j,k)* (1pore et 1 liaison dans chaque direction)

2. Tirage aléatoire du « diamètre » des pores et des liaisons (suivant une loi de probabilité uniforme)
3. initialisation des liaisons à l'interface fluide mouillant / fluide non-mouillant
4. identification des amas piégés le cas échéant (à l'aide de l'algorithme de recherche en profondeur)
5. itération sur la pression d'entrée P_{in} de P_{min} à P_{max} par saut de dP à chaque itération
6. Identification des liaisons envahissables, c'est-à-dire dont le seuil d'invasion capillaire est inférieure à la différence de pression atteinte entre les deux fluides.
7. itération sur les invasions de liens
8. invasion du lien de plus grand diamètre
9. modification de l'interface fluide mouillant / fluide non-mouillant
10. identification de nouveaux amas piégés, le cas échéant.
11. retour à l'étape 7 tant qu'il reste des liaisons envahissables
12. retour à l'étape 5

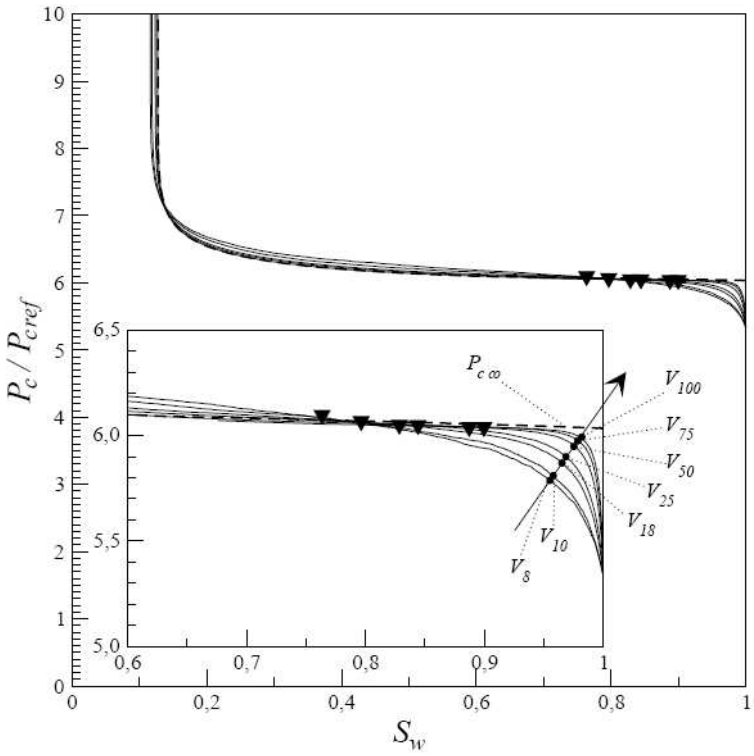


Figure 7. Courbe de rétention pour différentes tailles de réseau (V_N correspond à un réseau de taille $N\times N\times N$); $P_{cref} = \frac{\gamma}{a}$. L'insert montre une vue détaillée des courbes de rétention dans la gamme des fortes saturations. Les triangles noirs correspondent à la percée (pour les réseaux de taille 8, 10, 18, 25, 50, 75 et 100 respectivement de la gauche vers la droite) La courbe en tiret $P_{c\infty}$ correspond à une extrapolation de la courbe P_{c50} dans les hautes saturations ($P_{c\infty}$ et P_{c50} sont donc identiques pour $S_w \leq 1.\text{-}S_{NW50BT}$ où S_{NW50BT} désigne la saturation en fluide non-mouillant à la percée (BT = breakthrough))

Un amas de liquide mouillant peut être considéré comme piégé lorsqu'il n'est plus connecté à la face de sortie. S'il est considéré comme piégé, un tel amas ne peut alors être envahi. Le piégeage des pores n'a pas été pris en compte dans les simulations réalisées. Seules les liaisons de liquide mouillant situées entre deux pores occupés par le fluide non-mouillant sont

considérées comme piégées et ne sont donc pas envahies. Le phénomène de piégeage est en fait faible pour les fortes saturations en fluide mouillant qui nous intéressent en priorité, ce qui explique pourquoi il a été négligé.
Les calculs sont faits pour 100 réalisations du réseau et les résultats présentés (cf . Figure 7) sont des moyennes sur l'ensemble des 100 réalisations.

Ces calculs mettent en lumière que la courbe de rétention est dépendante d'échelle (c'est-à-dire de la taille du réseau) dans la gamme des fortes saturations. Il n'y a pas de V.E.R. !
La variation de P_c entre la saturation à la percée et la saturation 1 peut se voir comme un effet de taille finie (le réseau de calcul n'est pas « infini »). Il est bien connu depuis les travaux de Lenormand et ceux de Wilkinson (Wilkinson et Willemsen 1983) ; que la saturation en fluide non-mouillant à la percée est dépendante d'échelle et décroit en loi puissance avec la taille du réseau (elle tend donc vers zéro pour un réseau infini),

$$S_{BT} \propto L^{D_f - D} \tag{4.6}$$

où D est la dimension de l'espace et D_f la dimension fractale de l'amas de percolation. Ce qui donne en 3D ($D_f = 2.52$, $D=3$) ,

$$S_{BT} \propto L^{-0.48} \tag{4.7}$$

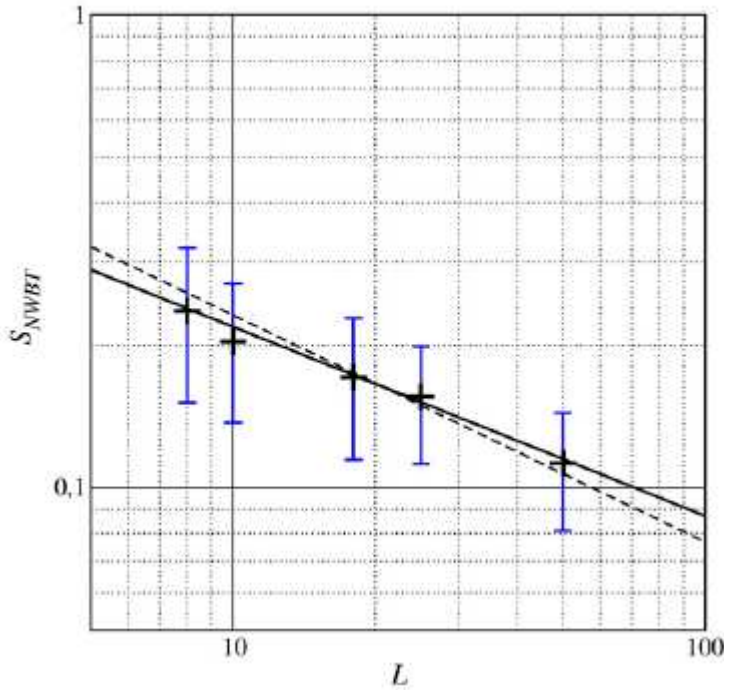


Figure 8. Evolution en coordonnées log-log de la saturation à la percée en fonction de la taille L ($L = a N_x = a N_y = a N_z$) du réseau. Chaque barre d'erreur représente une variation de ± 1 écart type autour de la moyenne d'ensemble sur les 100 réalisations considérées. Ces données sont cohérentes avec la loi d'échelle théorique (Eq.(4.7) qui correspond à la droite en pointillé sur la figure. Ces résultats suggèrent qu'il faudrait considérer de plus grande taille de réseau et un plus grand nombre de réalisations par taille pour retrouver l'exposant théorique (-0.48) avec une plus grande précision.

Nous avons testé la prédiction théorique (4.7) à partir de nos simulations. Nous avons obtenus les résultats présentés sur la Figure 8.

Le lien avec la percolation nous permet aussi de prédire la pression de percée (cf . Chapitre 4). Ce lien s'exprime particulièrement simplement lorsque, comme c'est notre cas, on considère que la loi de probabilité selon laquelle sont distribuées les tailles des liens est uniforme (ce qui signifie que toutes les tailles dans l'intervalle $[d_{\ell\min}, d_{\ell\max}]$ont la même probabilité). La fraction p de liens envahissables, c'est-à-dire la probabilité d'occupation en théorie de la percolation, pour une différence de pression δP entre les deux fluides est alors donnée par

$$p = \frac{d_{\ell\max} - d_\ell}{d_{\ell\max} - d_{\ell\min}} \text{ où } d_\ell \text{ est donné par } \delta P = \frac{4\gamma\cos\theta}{d_\ell} \tag{4.8}$$

si bien qu'à la percée on a,

$$p_c = \frac{d_{\ell\max} - d_{\ell c}}{d_{\ell\max} - d_{\ell\min}} \tag{4.9}$$

où p_c est le seuil de percolation du réseau. La pression dans le fluide injecté à la percée est donc donnée par

$$P_{gBT} = \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{\ell\max} - (d_{\ell\max} - d_{\ell\min})p_c} + P_\ell \tag{4.10}$$

Si on suppose nulle pour simplifier la pression dans le liquide (P_ℓ = 0.), on a alors

$$P_{gBT} = P_{cBT} = P_{gBT} = \frac{4\gamma\cos\theta}{d_{\ell\max} - (d_{\ell\max} - d_{\ell\min})p_c} \tag{4.11}$$

Pour un réseau cubique p_c = 0.249 (Stauffer et Aharony, 1992). Ceci donne $P_{c\,BT} / P_{cref} = 6.034$ en excellent accord avec les simulations (cf. figure 4.2). Le comportement pour un réseau très grand est donc proche de celui représenté par la courbe $P_{c\infty}$ sur la Figure 7. Nous verrons au chapitre suivant comment construire $P_{c\infty}$ en accord avec la théorie de la percolation.

En conclusion, ces résultats montrent que la courbe de pression capillaire dans la gamme des fortes saturations au voisinage de la percée dépend de la taille du réseau sur lequel elle est calculée. Pour un réseau infini, la courbe calculée tend vers une représentation à la Brooks et Corey (1966) avec un saut de pression égal à la pression la percée, Eq.(4.11), se produisant pour une saturation en phase liquide égale à 1, cf. Eq.(4.7).

4.3 Perméabilités relatives

Pour calculer les perméabilités relatives, on combine l'algorithme de calcul de la perméabilité (restreint à chacune des phases, soit un calcul pour chaque phase) et l'algorithme de calcul de la pression capillaire donnant l'envahissement progressif du réseau par une succession d'état d'équilibre. Tout comme la courbe de rétention, l'étude de la perméabilité relative est donc effectuée dans des conditions de déplacement quasi-statique (hypothèse de l'équilibre capillaire local). Dans le cas du drainage hyperlent, l'étude de la perméabilité relative de la phase déplacée à peu d'intérêt. Etant donné la faible désaturation attendue du milieu, cette

perméabilité reste proche de 1. La perméabilité relative qu'il est crucial d'étudier est la perméabilité relative du fluide non-mouiilant. Nous nous concentrons donc sur l'étude de cette perméabilité relative et spécialement au voisinage de la percée.

Comportement global

La Figure 9 montre l'évolution de la perméabilité relative sur toute la gamme de saturation pour différentes tailles de « V.E.R. », c'est de dire de réseau. On trouve une allure classique. On peut constater que dans cette représentation, la courbe obtenue n'est pas dépendante d'échelle, c'est-à-dire est indépendante de la taille du réseau considéré.

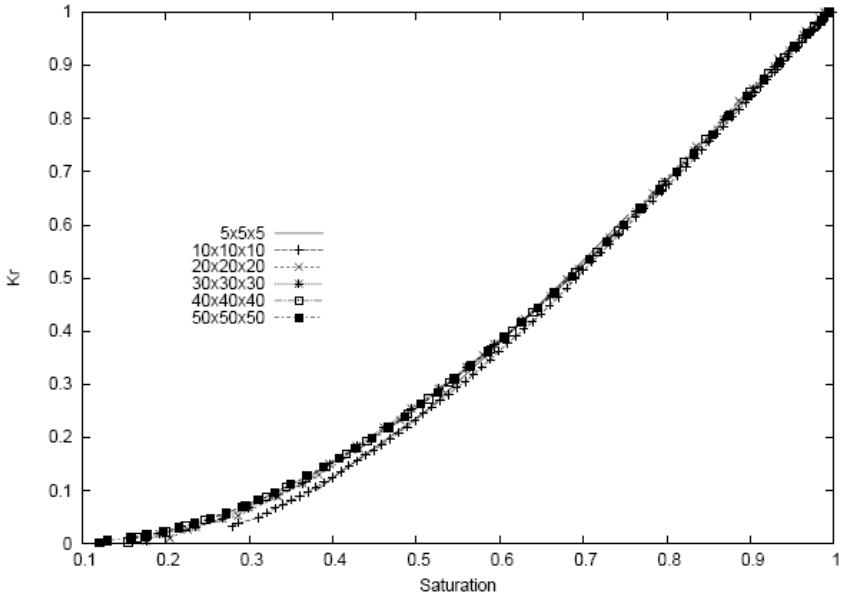


Figure 9. Evolution de la perméabilité relative au fluide non mouillant pour différentes tailles de réseau ($N \times N \times N$) sur toute la plage de saturation ($0 \leq S \leq 1$).

Ce type de représentation ne permet cependant pas de voir le comportement aux plus faibles saturations prés de la percée, qui nous intéresse particulièrement. Pour cela, une représentation en coordonnées log – log est plus adaptée comme l'illustre la Figure 10.

La Figure 10 met en évidence deux régimes : le régime « classique » pour les saturations (en fluide non-mouillant)suffisamment élevées ($S > 0.4$ dans ces exemples) et un régime pour les saturations suffisamment faibles où la perméabilité relative est dépendante d'échelle, c'est-à-dire varie avec la taille du réseau. C'est qualitativement le comportement attendu dans le cadre de la théorie de la percolation : comportement de type champ moyen loin du seuil de percolation (saturations en fluide non-mouillant suffisamment élevées), comportement dépendant d'échelle près du seuil de percolation (au voisinage de la saturation à la percée). Il est intéressant de noter que la gamme de saturation correspondant au régime de champ moyen s'élargit avec la taille du réseau et que le régime de percolation tend à intéresser des saturations de plus en plus faibles quand la taille du réseau augmente. Ce qui est cohérent avec la loi d'échelle (4.7).

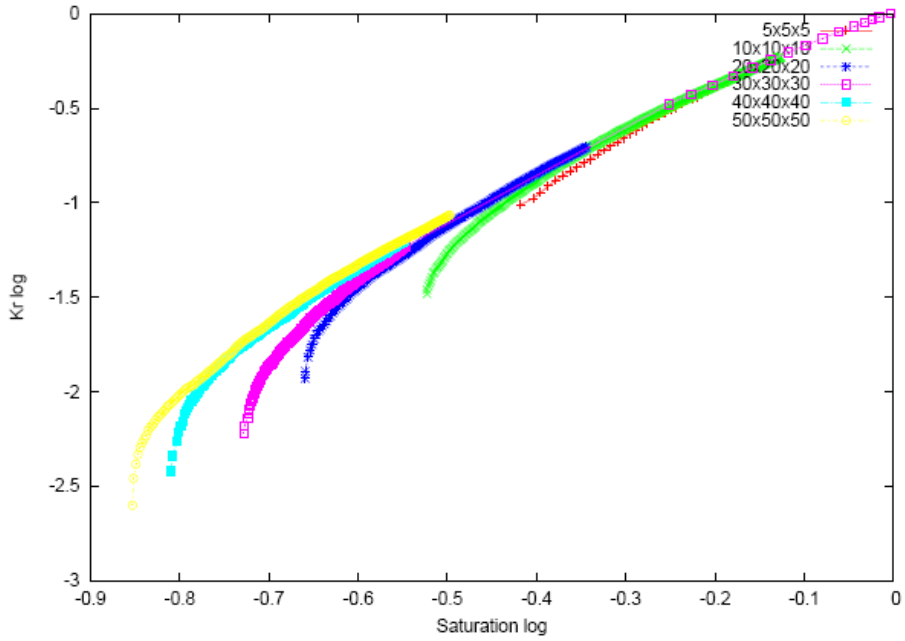


Figure 10. a) Evolution de la perméabilité relative au fluide non mouillant pour différentes tailles de réseau ($N \times N \times N$) sur toute la plage de saturation ($0 \leq S \leq 1$) en coordonnées log-log. S est la saturation en fluide non-mouillant.

Régime de champ moyen

Loin de la percée, les données pour les différentes tailles de réseau collapsent sur une seule courbe (Fig. 9). Un meilleur ajustement des données de la Figure 9, conduit à une évolution de la perméabilité relative dans ce régime donnée par

$$k_r = -0.045532 + 0.10362\,S + 1.008\,S^2 \qquad (4.12)$$

Cet ajustement ne permet évidemment pas de décrire correctement le comportement prés de la percée.

Comportement à la percée

A la percée, on obtient l'évolution montrée sur la Figure 11. On obtient bien des comportements en loi puissance en fonction de la taille du réseau en accord qualitatif avec les prédictions de la théorie de la percolation (Wilkinson 1986), c'est-à-dire des évolutions de la forme $k_r^* \propto L^{-b}$ (l'astérisque désigne la perméabilité relative de la phase non mouillante à la percée). L'exposant trouvé est $b = 1.59$, sensiblement différents de la prédiction théorique (b = 2.3) de Wilkinson. Cette différence pourrait être due à des effets de bord (Wilkinson et Willemsen, 1983). Ce point mériterait d'être creusé en considérant des réseaux de taille plus grande et en effectuant une étude propre des effets de taille finie, cf par exemple (Kozlov et Laguës, 2010), mais n'est pas crucial pour la suite de notre étude.

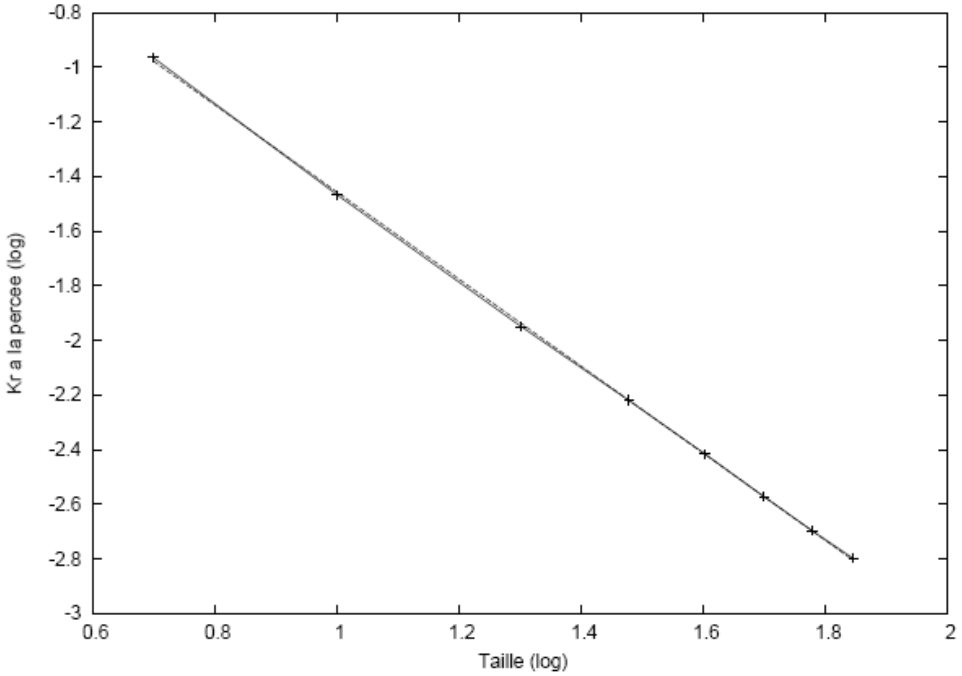


Figure 11. Evolution de la perméabilité relative à la percée en fonction de la taille du réseau (L comptée en pas de réseau, $L = N$)

Tableau 4.2 Nombre de réalisations utilisées pour obtenir les résultats de la figure 4.6

Taille du réseau	N_r
5	20 000
10	20 000
20	2000
30	2000
50	2000
60	200
70	200

Comportement près de la percée

La Figure 12 présente l'évolution $k_r - k_r^*(L)$ en fonction de $\left(S - S_{BT}(L)\right)$ pour différentes tailles du réseau. On retrouve les deux régimes, percolation et champ moyen. L'évolution prés du seuil est approximativement bien décrite par une loi puissance avec cette représentation caractérisée par une évolution très raide prés du seuil. Les courbes ne se superposent pas vraiment bien sauf très près du seuil.

La gamme de saturation correspondant à ce comportement en loi puissance près du seuil est extrêmement étroite. Plus intéressant pour notre problème est la gamme de saturation pour la laquelle on a une dépendance d'échelle marquée de la perméabilité relative. Comme l'indique la Figure 11, cette gamme est beaucoup plus étendue que la précédente.

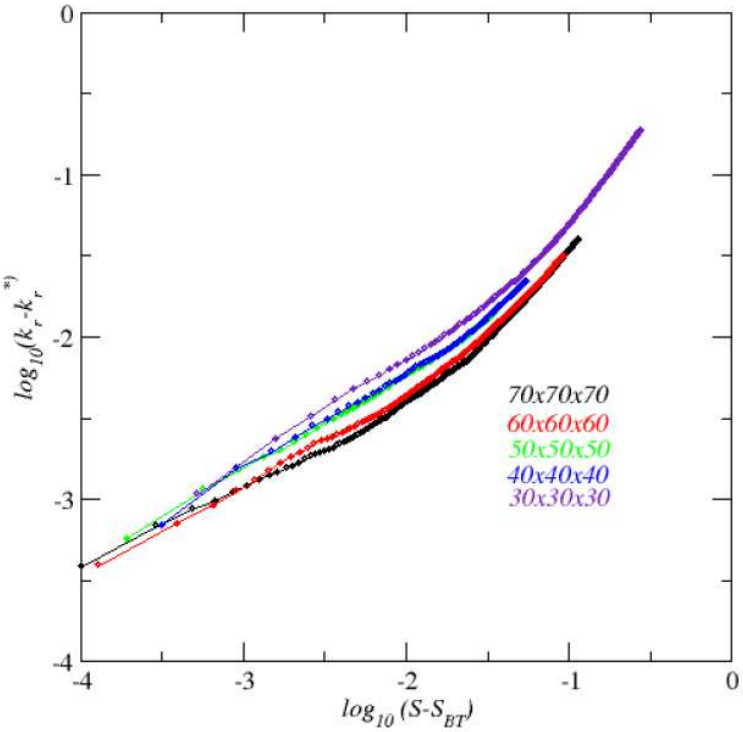


Figure 12. Evolution de $k_r - k_r^*(L)$ en fonction de $\left(S - S_{BT}(L)\right)$ pour cinq tailles de réseau.

Comme pour la pression capillaire, la perméabilité relative montre donc une dépendance d'échelle lorsqu'on s'intéresse à la gamme des saturations voisines de la saturation à la percée. En d'autres termes, on obtient autant de courbes de perméabilité relative que de tailles de réseau, soit donc une infinité de courbes. Ces résultats conduisent ainsi à la conclusion intermédiaire présentée dans la section suivante.

4.4 Conclusion intermédiaire

Concernant le problème de paramétrisation, la conclusion est donc que dans le cas du drainage hyperlent, c'est-à-dire lorsque le drainage s'effectue pour une gamme de saturation proche de la saturation à la percée, la courbe de rétention et la perméabilité relative du fluide non-mouillant dépendent non-seulement de la saturation comme en drainage classique mais également de la taille L du domaine sur lequel ces propriétés sont déterminées. Soit,

$$k_{rg} = k_{rg}(S, L) \tag{4.13}$$

$$P_{cg} = P_{cg}(S, L) \tag{4.14}$$

L'étape suivante est de comprendre comment choisir k_{rg} et P_c parmi cette infinité de possibilités de façon à obtenir une solution optimale avec le modèle diphasique classique..

4.5 Equilibre capillaire local et effets visqueux

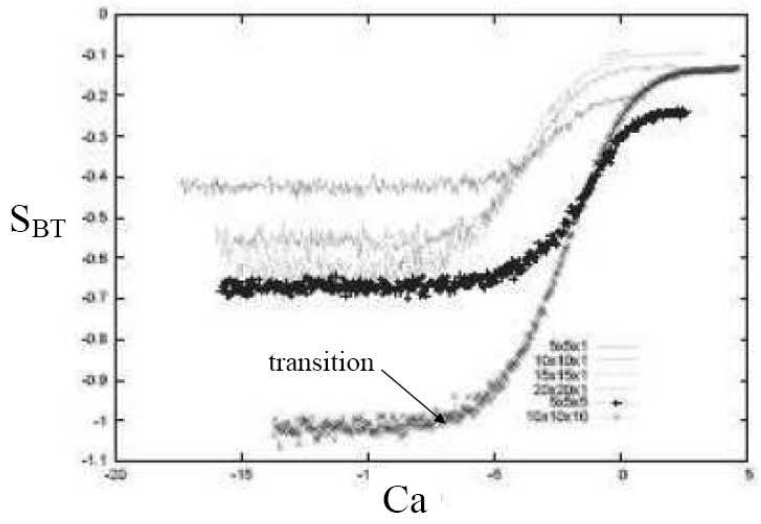
Si l'on l'est donc intéressé par la situation où le système fonctionne suffisamment prés du point de percée pour que les paramètres P_c et k_{rg} du modèle diphasique soient dépendants d'échelle, la question devient donc comment spécifier ces deux paramètres. En d'autres termes existe-il un volume élémentaire représentatif (VER) pour la détermination de ces deux paramètres ?

L'analyse est tout d'abord basée sur l'idée que l'hypothèse d'équilibre capillaire local est toujours parfaitement correcte. Ensuite, un deuxième point consiste à remarquer que le drainage hyperlent se fait certes à très faible nombre capillaire mais pas à nombre capillaire nul. En d'autres termes les effets visqueux sont nécessairement à prendre en compte aussi en ce qui concerne la question de la dépendance d'échelle des paramètres macroscopiques.
La conséquence des effets visqueux est d'introduire une longueur de coupure supérieure L_{max} dans la gamme des tailles L de réseau compatibles avec l'hypothèse d'équilibre capillaire local. Ceci est illustré sur la Figure 13, qui montre l'évolution de la saturation et de la perméabilité relative à la percée en fonction du nombre capillaire pour différentes tailles de réseau (en 2D et en 3D).
Ces résultats sont obtenus en calculant par simulations sur réseau de pores la distribution des phases à la percée à l'aide de l'algorithme présenté dans l'Annexe 1.
L'élément clé montré sur la Figure 13 est l'existence de deux régimes. Pour une taille donnée de réseau, la saturation à la percée et la perméabilité relative sont indépendantes du nombre capillaire Ca imposé (= du débit imposé) tant que celui-ci est inférieur à une valeur critique. Pour des valeurs plus grandes du nombre capillaire, ces grandeurs dépendent non seulement de la taille du réseau mais également de Ca. Ceci est évidemment une conséquence directe de l'évolution de la distribution des phases à la percée en fonction de Ca (ceci est illustré sur la figure de l'Annexe 1). Pour des nombres capillaires suffisamment faibles, la distribution n'est pas modifiée par les effets visqueux et on obtient les valeurs du cas quasi-statique. Comme illustré dans l'Annexe 1, la distribution des phases est modifiée lorsque Ca est suffisamment grand. Davantage de pores sont envahis, ce qui conduit à des valeurs plus élevées de la saturation et de la perméabilité relative à la percée.
La Figure 13 montre également que le Ca critique ou de transition, noté dans ce qui suit Ca_T, dépend de la taille du réseau,

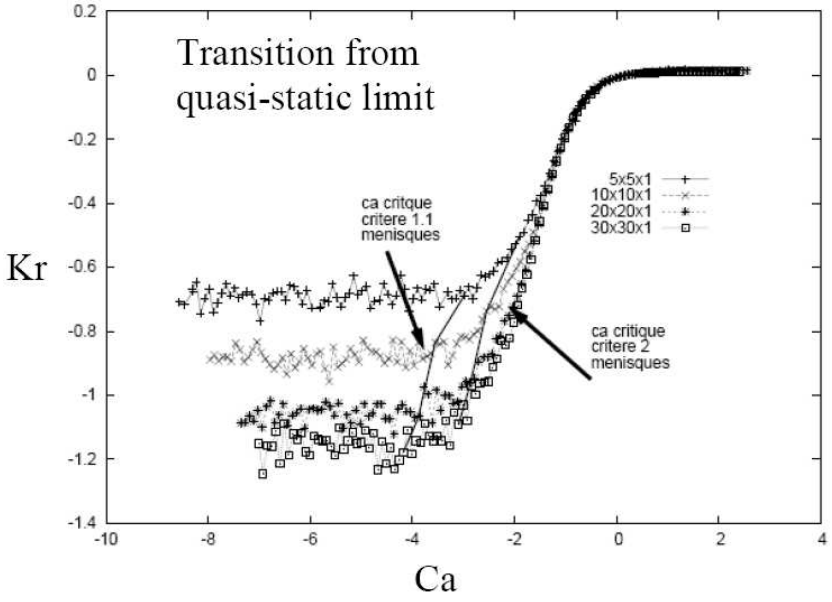
$$Ca_T = Ca_T(L) \tag{4.15}$$

et est de plus une fonction décroissante de la taille (cf. Fig.4.8b).
Si maintenant on raisonne à Ca donné, ces résultats indiquent donc qu'il existe une taille de réseau maximum $L_{max}(Ca)$ pour laquelle la perméabilité relative est indépendante de Ca. En d'autres termes, la distribution des phases à la percée pour cette valeur particulière de Ca s'écarte de la distribution quasi-statique pour tout réseau plus grand que $L_{max}(Ca)$
Le postulat que l'hypothèse de l'équilibre local doit être vérifié donc un premier critère sur la taille du réseau sur lequel doit être calculé la perméabilité relative (et la courbe de pression capillaire),

$$L \leq L_{max}(Ca) \tag{4.16}$$



a)



b)

Figure 13. Evolution de la saturation (a) et de la perméabilité relative du fluide non-mouillant (b) à la percée en fonction du nombre capillaire pour différentes tailles de réseau. Deux critères ont été utilisés pour déterminer le nombre capillaire de transition. Le premier (critère 1.1 ménisques) consiste à considérer que l'on n'est plus en régime quasi-statique dès qu'il y en moyenne sur l'ensemble du déplacement jusqu'à la percée 1.1 ménisques envahis par étape (dans la limite quasi-statique, il n'y a qu'un ménisque déplacé à chaque étape de l'invasion). Le second (critère 2 ménisques) consiste à considérer que l'on n'est plus en régime quasi-statique dès qu'il y en moyenne sur l'ensemble du déplacement jusqu'à la percée 2 ménisques envahis par étape.

Par ailleurs, on sait que la structure de la distribution de la phase envahissante à la percée pour tout réseau de taille $L \leq L_{max}(Ca)$ est fractale (c'est un amas de percolation). Ce caractère fractal est à l'origine de la dépendance d'échelle des paramètres. Compte tenu de ce caractère fractal, la distribution des phases attendue localement dans le déplacement est a priori dans ces conditions celle correspondant à la plus grande échelle possible compatible avec l'hypothèse de distribution hydrostatique, soit

$$L = \sup\ (L \text{ tel que } L \leq L_{sup}\ (Ca)\ ) \tag{4.17}$$

Cette analyse conduit donc à la conclusion que l'échelle du réseau sur laquelle il convient de calculer k_r (et la courbe de rétention) est $L_{max}\ (Ca)$.

En d'autres termes, la nouveauté majeure résultant d'un fonctionnement près du seuil de percée est que pour une microstructure donnée (= un milieu poreux donné) la perméabilité relative et la courbe de pression capillaire dépendent non seulement de la saturation mais également du nombre capillaire, c'est-à-dire en fait du débit d'injection,

$$P_c = P_c(S, L_{\max}) = P_c(S, Ca) \tag{4.18}$$

$$k_{rg} = k_{rg}(S, L_{\max}) = k_r(S, Ca) \tag{4.19}$$

La procédure est donc la suivante. Soit un débit d'injection donné, Q dans un milieu poreux donné. Si A est la surface d'injection, on a alors $Ca = \frac{\mu_g Q}{\gamma A}$. Il faut alors estimer $L_{max}\ (Ca)$ à partir de résultats du type de ceux montrés sur la Figure 13 (a priori ceux moins bruités concernant la saturation à la percée). Une fois, $L_{max}\ (Ca)$ déterminé, il ne reste plus (sic) qu'à déterminer les courbes $k_{rg}(S)$ et $P_c(S)$ correspondantes au réseau de taille $L_{max}\ (Ca)$.

4.8 Conclusion pour la section 4.

En conclusion sur cette section, les résultats présentés suggèrent que pour un débit donné d'injection en drainage hyperlent, c'est-à-dire plus précisément une vitesse moyenne d'injection donnée, il existe une courbe de perméabilité relative (pour la phase déplaçante) et une courbe de rétention conduisant à des prédictions de qualité optimale à partir du modèle diphasique classique.

Jusqu'ici nous avons considéré une situation de déplacement rectilinéaire. Si l'on travaille à débit fixé dans une telle configuration, le nombre capillaire est fixé pour un débit donné et un seul jeu de paramètres $k_{rg}(S)$ et $P_c(S)$ est suffisant pour faire le calcul du déplacement. Si on travaille en revanche à pressions imposées, la vitesse de filtration moyenne change au cours du déplacement (on suppose que la mobilité est différente de 1) et il faudrait alors régionaliser les deux paramètres $k_{rg}(S, Ca)$ et $P_c(S,Ca)$ puisqu'ils dépendent de la vitesse de filtration locale via le Ca.

Une situation similaire est rencontrée si on travaille par exemple en injection radiale à débit fixé comme cela est schématisé sur la Figure 14, configuration d'écoulement beaucoup plus proche de celle attendue dans le stockage que le déplacement rectilinéaire.

Du fait du caractère radial de l'écoulement, la vitesse moyenne de l'écoulement décroît avec l'éloignement de la zone d'injection, ce qui impliquerait encore la prise en compte de la variation spatiale des paramètres (fonctions) k_{rg} et P_c étant donnés leur dépendance avec la vitesse locale via le nombre capillaire. La situation est en réalité plus compliquée puisque le débit d'injection varie en fait au cours du temps, sans oublier qu'il faudrait pour être complet tenir compte des nombreuses hétérogénéités spatiales, qu'elles soient liées à la présence de matériaux très divers (bétons, bentonite, argilite, etc) ou par exemple à l'hétérogénéité naturelle de l'argilite.

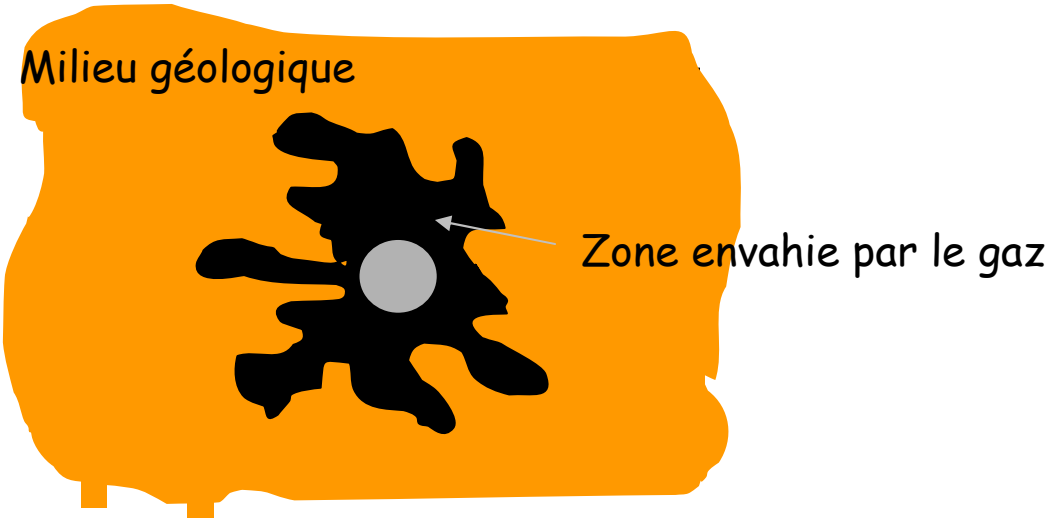


Figure 14. Schéma du « problème ANDRA ». Drainage hyperlent avec déplacement radial.

5.Conclusions

Notre étude met en évidence un régime particulier dans la gamme des saturations proches de la saturation à la percée. L'étude suggère que ce régime peut être calculé à l'aide du modèle diphasique classique mais que sa mise en œuvre impose en principe de considérer que la perméabilité relative du fluide injecté k_{rg} et la courbe de rétention P_c sont dépendantes, pour un milieu donné, non seulement de la saturation mais aussi du nombre capillaire local.

Toutefois, dans le cas du régime de drainage hyperlent, le problème du choix optimal des paramètres k_{rg} et P_c peut être considérablement simplifié car comme on le verra dans le chapitre qui suit la dépendance d'échelle n'intéresse en réalité qu'une zone d'extension spatiale négligeable (cette zone correspond à la zone de taille σ de la Figure 5).

Références

Brooks RH, Corey AT. Properties of porous media affecting fluid flow. J Irrigation Drainage Div, in: Proc Am Soc Civil Eng (IR2)1966;92:61–88.

Dullien, F.A.L. (1992), Porous Media Fluid Transport and Pore Structure, Academic Press.

Kozlov B., Laguës M. (2010), Universality of 3D percolation exponents and first-order corrections to scaling for conductivity exponent, Physica A 389, 5339-5346.

Lenormand R., Touboul E., Zarcone C. (1988) Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J.Fluid Mech.* 189: 165-187.

Stauffer D., Aharony A.. (1992). Introduction to percolation theory. Taylor & Francis, London.

Wilkinson D.,Willemsen, J.F.(1983) Invasion percolation: a new form of percolation theory, *J.Phys. A: Math. Gen*. 16: 3365-3376.

Wilkinson D. (1984). Percolation model of immiscible displacement in the presence of buoyancy forces, *Phys. Rev. A* 30(1): 520-531.

Wilkinson D.(1986) Percolation effects in immiscible displacement, *Phys. Rev. A* 34, 1380–1391

Xu B., Yortsos Y., Salin D.(1998). Invasion percolation with viscous forces. *Phys. Rev. E* 57(1):739-751.

Yortsos Y., Xu B., Salin D. (1997) Phase diagram of fully developed drainage in porous media. *Phys. Rev. Lett.* 79(23): 4581-4584.

Annexe 1 Simulation sur réseau de pores du drainage capillaro-visqueux

Algorithme de calcul
L'algorithme d'invasion est résumé sur la Fig.A.1

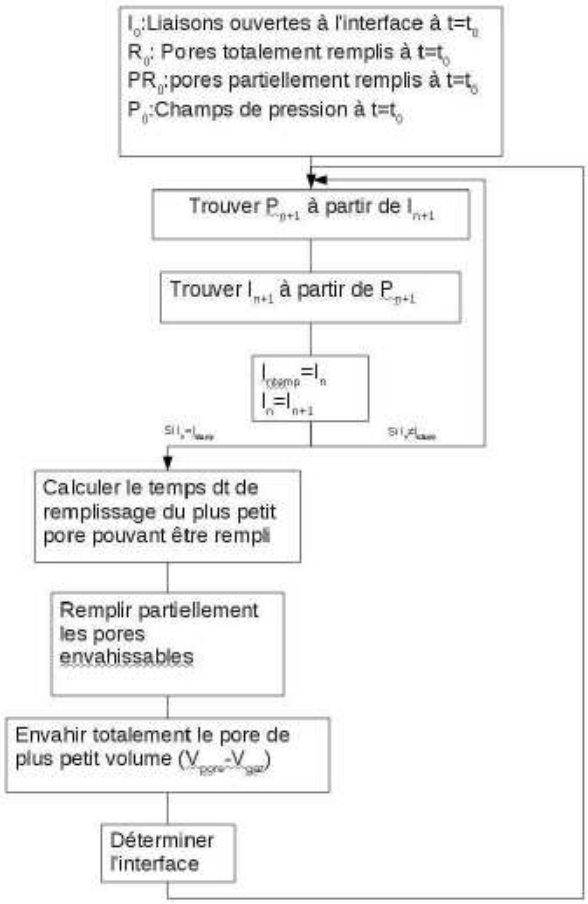


Fig. A.1 Organigramme de l'algorithme visqueux

Validation
Le code a été testé en calculant l'évolution de la figure d'invasion à la percée en fonction du nombre capillaire pour un réseau 2D 25 × 25. Des résultats sont présentés sur la Figure A.2.

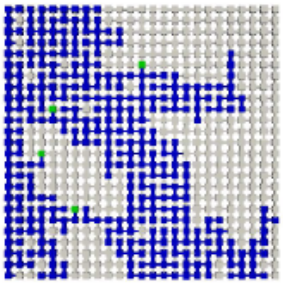


Figure 2.6: Pattern for $Ca = 10^{-5}$

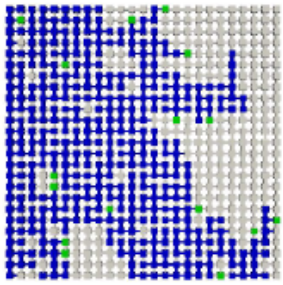


Figure 2.7: Pattern for $Ca = 10^{-4}$

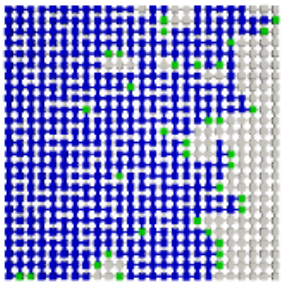


Figure 2.8: Pattern for $Ca = 10^{-3}$

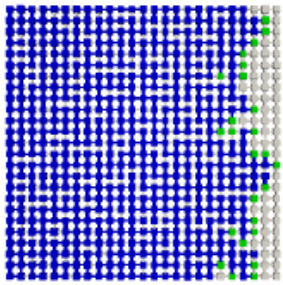


Figure 2.9: Pattern for $Ca = 10^{-2}$

Fig.A.2 Evolution de la figure d'invasion à la percée en fonction du nombre capillaire ans un réseau 2D. Le fluide visqueux en bleu est injecté à débit constant par le coté gauche du réseau. Les bords haut et bas sont des frontières imperméables.

L'évolution de la figure d'invasion est cohérente avec les résultats présentés dans (Lenormand et al., 1988).

CHAPITRE 6

SOLUTION DU DRAINAGE HYPERLENT

1.Introduction

Dans ce chapitre, on étudie la solution du drainage hyperlent. La configuration considérée est schématisée sur la Figure 1. Il s'agit d'une situation de drainage rectilinéaire. Le milieu est initialement saturé en fluide mouillant (l'eau). Du fluide non-mouillant (du gaz) est injecté à débit constant Q. Le débit est très faible si bien qu'on est en drainage hyperlent. L'avantage de cette configuration est que si le débit à l'entrée est constant, le nombre capillaire ne varie pas au cours du déplacement (contrairement à un déplacement radial par exemple où le nombre capillaire décroit avec la distance au point d'injection). D'après les résultats du Chapitre 5, les paramètres dépendent du nombre capillaire. Dans le cas d'un déplacement rectilinéaire à débit constant les paramètres sont donc alors indépendants de la coordonnée d'espace comme en drainage classique en milieu homogène. On verra toutefois que la solution trouvée se généralise sans difficulté à d'autres configurations de drainage hyperlent.

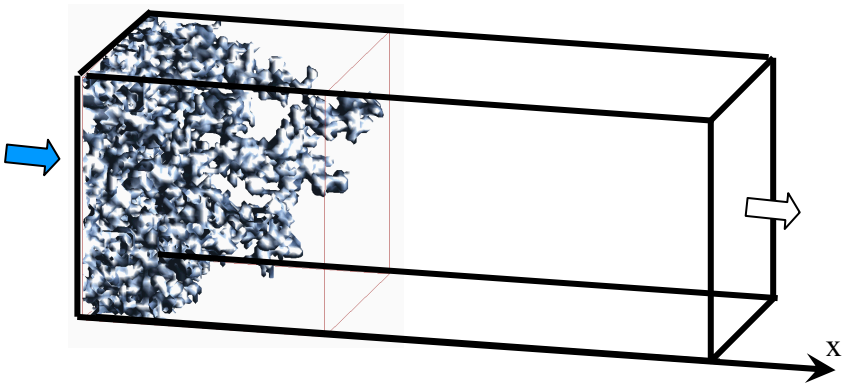


Figure 1. Situation de drainage rectilinéaire. Contrairement à ce schéma les dimensions latérales sont en réalité grandes devant la distance sur laquelle s'effectue le déplacement (de façon à éviter tout effet de confinement latéral).

L'objectif est de construire la solution de ce problème dans la limite du régime hyperlent. Il faut donc calculer l'évolution le profil de saturation et de pression au cours du temps. On commence par un cas hydrostatique. Plus simple à analyser, il sert en quelque sorte de mise en route avant le cas plus compliqué des écoulements visqueux, qui est étudié dans un second temps. La microstructure poreuse est tridimensionnelle si bien que les valeurs numériques des exposants de la théorie de la percolation indiquées tout au long du chapitre sont celles du cas 3D.

2. Cas hydrostatique.

2.1 Configuration étudiée

La configuration hydrostatique correspond à un échantillon placé verticalement dans le champ de la gravité comme cela est illustré sur la Figure 2. Le fluide mouillant (supposé parfaitement mouillant) est plus lourd et sort par le bas du domaine considéré. Le fluide non-mouillant rentre par le haut de l'échantillon. Ceci correspond à une des plus simples

situations de type IPSG (invasion percolation in a stabilizing gradient). La gravité est ici à l'origine de l'effet stabilisant. Le débit volumique de drainage Q est supposé extrêmement faible si bien que la distribution des phases est à tout instant hydrostatique.

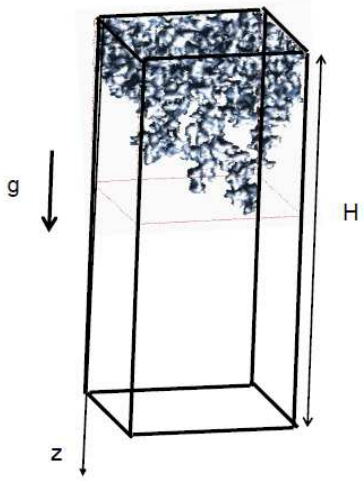


Figure 2. Drainage hydrostatique. Le fluide non-mouillant plus léger est injecté par le haut et déplace le fluide mouillant plus lourd qui s'échappe par le bas de l'échantillon.

La pression dans le fluide non-mouillant, de masse volumique négligeable, est constante et égale à la pression atmosphérique, noté P_g. La pression dans le fluide mouillant est donc de la forme

$$P_\ell(z) = \rho_\ell g(z - H) + P_H(t) \tag{2.1}$$

où $P_H(t)$ est la pression au bout de l'échantillon en $z = H$. Cette pression diminue au fur et à mesure que le gaz envahit la colonne.
Notons $z_{max,}$ le point le plus avancé de la zone diphasique à l'intérieur de la colonne à l'instant t considéré. On a alors,

$$P_c(z,t) = P_g - \rho_\ell g(z - H) - P_H(t) \quad 0 \le z \le z_{\max} \tag{2.2}$$

Que l'on peut simplifier en

$$P_c(z,t) = \rho_\ell g(z_{\max} - z) \quad 0 \le z \le z_{\max} \tag{2.3}$$

puisque z_{max} correspond au début de la zone non encore envahie par le gaz.
Supposons qu'il existe une relation fonctionnelle entre la saturation et la pression capillaire. On a alors d'après l'équation (2.3)

$$P_c(S(z,t)) = \rho_\ell g(z_{\max} - z) \quad 0 \le z \le z_{\max} \tag{2.4}$$

où S est la saturation de la phase non-mouillante (la phase gaz).

La conservation de la masse impose que

$$\frac{Q}{A}t = \varepsilon \int_0^{z_{\max}} S(t,z)dz \tag{2.5}$$

où A est la section de la colonne et ε sa porosité. La résolution des équations (2.4) et (2.5) permet alors de déterminer les deux inconnues z_{max}(t) et $S(z,t)$.

Si l'on écrit l'Eq.(2.4) sous forme adimensionnelle en prenant le pas du réseau a (ou de façon équivalente une échelle de taille moyenne de pores) comme échelle de longueur, on obtient (où on a gardé les mêmes notations pour les longueurs adimensionnelles que les longueurs dimensionnelles),

$$\frac{P_c(S(z,t))}{\gamma / a} = B(z_{\max} - z) \quad 0 \le z \le z_{\max} \tag{2.6}$$

où B est le nombre Bond $B = \dfrac{\rho_\ell g a^2}{\gamma}$ et γ la tension de surface. Le nombre de Bond joue ici le rôle que joue le nombre capillaire dans le cas visqueux.

Comme discuté dans le chapitre précédent, toute la difficulté dans le cas du drainage hyperlent réside dans la spécification de la relation $P_c(S)$ étant donné que cette relation est dépendante d'échelle dans la gamme des très fortes saturations.

Pour cela deux approches sont considérées dans ce qui suit. La première est en ligne directe avec le chapitre précédent et consiste à considérer $P_c(S)$ comme dépendant de B. La deuxième, qui peut se concevoir comme une conséquence de la première approche, consiste à considérer la courbe de rétention limite obtenue pour un « VER » infini. Ses deux approches sont présentées successivement.

2.2 Approche 1 : $P_c(S,B)$

D'après le chapitre 5, la taille du VER sur laquelle on doit calculer ou mesurer la courbe de pression capillaire dépend de B. Plus B et petit et plus le « VER » est grand. Il faut donc construire la courbe de rétention en fonction de B. Pour cela rappelons deux résultats majeurs des chapitres précédents. Premièrement la pression de percée P_{BT} est fixée par le seuil de percolation du réseau (cf . Chapitre 4). On la suppose connue. Deuxièmement la saturation à la percée est dépendante d'échelle suivant la loi,

$$S_{BT} = \kappa \sigma^{(D-d)} \tag{2.7}$$

où D est la dimension fractale de l'amas de percolation (D = 2.52) et d la dimension de l'espace (d = 3), σ est la taille du VER et κ est un préfacteur numérique qui dépend du milieu considéré.
Pour aller plus loin il nous faut trouver une relation entre σ et B. Celle-ci nous est donnée par la théorie de la percolation qui stipule que

$$\sigma \propto B^{-\nu/(1+\nu)} \tag{2.8}$$

où ν = 0.88 est l'exposant de la longueur de corrélation dans la théorie de la percolation. En combinant les Eqs. (2.7) et (2.8) et en notant qu'il existe la relation suivante entre les exposants $D = d - \beta/\nu$, *cf* Stauffer et Aharony (1992), on obtient

$$S_{BT} = \lambda B^{\beta/(1+\nu)} \tag{2.9}$$

où β = 0.42 est l'exposant de l'amas infini en théorie de la percolation, cf. Stauffer et Aharony (1992) ; λ est un facteur numérique dépendant du milieu.

L'Eq.(2.8) explicite donc la relation entre la taille du VER et le nombre de Bond.
Examinons maintenant les profils de saturation obtenus en faisant varier le nombre de Bond. Pour cela on considère les courbes de rétention obtenues par simulation sur réseau de pores qui ont été présentées dans le chapitre précédent. Ces courbes sont présentées à nouveau sur la Figure 3.

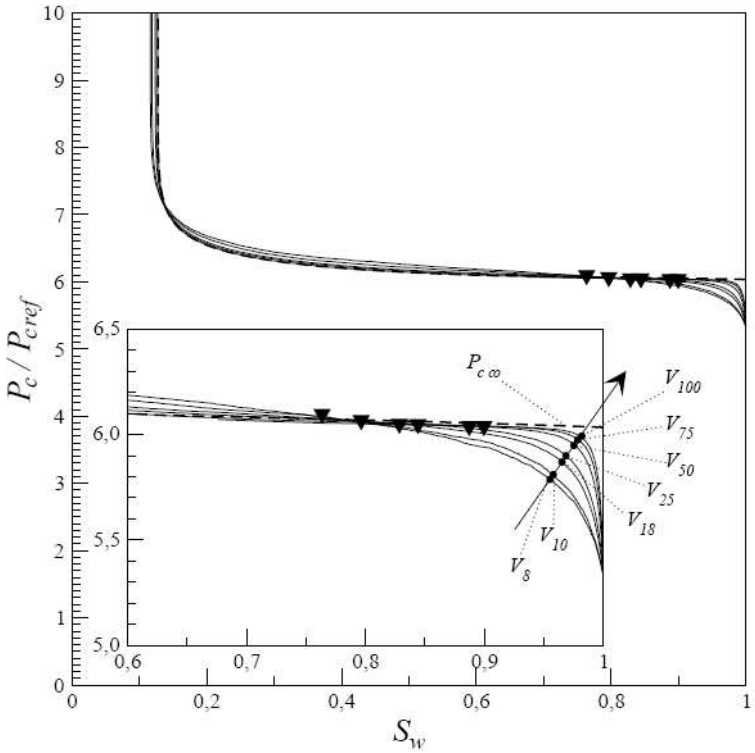
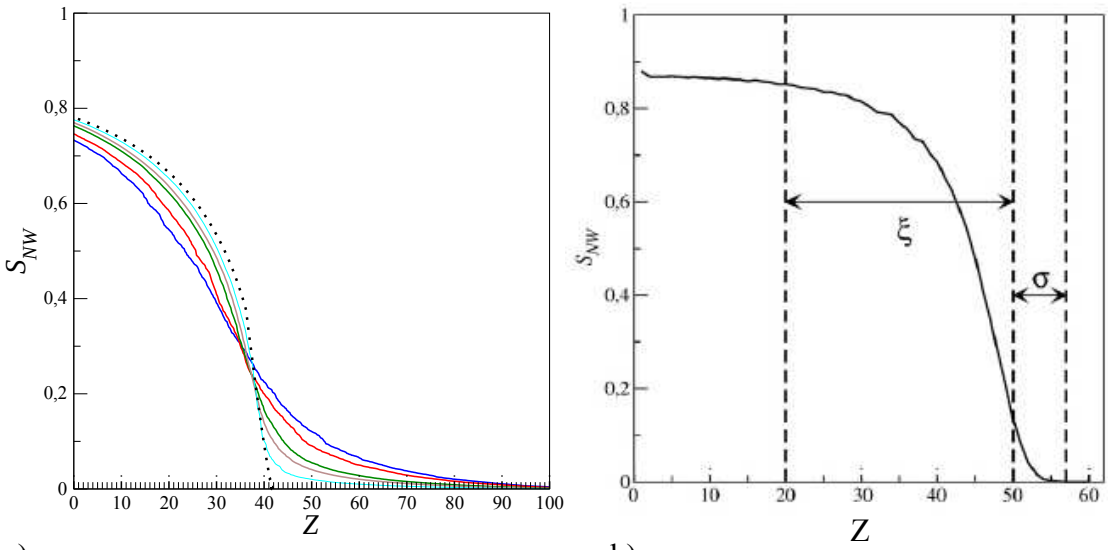


Figure 3. Courbe de rétention pour différentes tailles de réseau (V_N correspond à un réseau de taille $N\times N\times N$); $P_{cref} = \frac{\gamma}{a}$. L'insert montre une vue détaillée des courbes de rétention dans la gamme des fortes saturations. Les triangles noirs correspondent à la percée (pour les réseaux de taille 8, 10, 18, 25, 50, 75 et 100 respectivement de la gauche vers la droite) La courbe en tiret $P_{c\infty}$ correspond à une extrapolation de la courbe P_{c50} dans les hautes saturations ($P_{c\infty}$ et P_{c50} sont donc identiques pour $S_w \leq 1.\text{-}S_{NW50BT}$ où S_{NW50BT} désigne la saturation en fluide non-mouillant à la percée (BT = breakthrough))

A partir de ces courbes on obtient les profils de saturation montrés sur la Figure 4a (pour un même volume de gaz injecté). La Figure 4b rappelle le profil théorique prédit par la théorie de la percolation en gradient (Yortsos et al., 1997), (Xu et al., 1998).



a) b)

Figure 4. a) Profils de saturation en fluide non-mouillant obtenus en considérant les différentes courbes de rétention de la Figure 3 P_{c8} (bleu roi), P_{c10} (rouge), P_{c18} (vert), P_{c25} (marron-gris), P_{c50} (turquoise) et $P_{c\infty}$ (ligne pointillé), b) Allure du profil de saturation pleinement développé d'après la théorie IPSG. ξ est la taille de la zone de transition de la saturation dans la région « compacte », σ est la taille de la région fractale en tête d'invasion.

La comparaison des Figures 4a et 4b montre un très bon accord qualitatif, indiquant que la considération d'une courbe de rétention dépendante d'échelle permet de retrouver le résultat théorique. La zone fractale en tête de profil est bien obtenue et correspond à l'effet de taille finie sur les courbes de rétention (= partie des courbes sur la droite dépendant fortement de la taille du VER considéré.

Un autre résultat intéressant est que cette zone fractale tend à se réduire comparativement à la zone située à sa gauche (le point où toutes les courbes se coupent sur la Figure 4a délimite la zone fractale (à droite de ce point) et la zone compacte (à gauche de ce point)) au fur et à mesure que la taille du VER augmente, c'est-à-dire d'après l'Eq.(2.8) que le nombre de Bond diminue. Ceci est cohérent avec la loi d'échelle de la zone compacte

$$\xi \sim B^{-1} \tag{2.10}$$

qui combiné à l'Eq.(2.8) conduit à

$$\frac{\sigma}{\xi} \propto B^{0.53} \tag{2.11}$$

Ainsi lorsque B devient très petit (cas du drainage hyperlent) $\sigma << \xi$.
Ceci suggère qu'on peut s'affranchir de la dépendance d'échelle dans le cas du drainage hyperlent. Une autre façon d'exprimer cette conclusion est de constater que la différence entre

la courbe $P_{c\infty}(S)$ et les courbes P_{cN} sur la Figure 3 tend à devenir négligeable pour N, c'est-à-dire la taille de VER, très grand.
Ceci conduit à considérer l'approche 2, où ces différents points sont repris et explicités.

2.3 Approche 2 : $P_{c\infty}(S)$

Plutôt que de considérer des paramètres macroscopiques dépendants d'échelle, les résultats de la section précédente (§2.2) suggère dans le cas du drainage hyperlent (= très petits nombres de Bond), une autre approche consistant à prendre comme paramètre, ici la courbe de rétention, le paramètre attendu pour un milieu infini. Dans cette perspective, il devient crucial de construire correctement la courbe de rétention pour le milieu (VER) infini.

Le comportement de la pression capillaire au voisinage de la percée pour un réseau infini a été étudié par Wilkinson (1986). Le comportement prédit est le suivant,

$$\frac{P_c}{P_{cref}} = \frac{P_{cBT}}{P_{cref}} + \lambda_p S^{1/\beta} \tag{2.12}$$

où P_{cBT} est la pression de percée, λ_p est un préfacteur numérique dépendant du milieu et P_{cref} une pression de référence (par exemple $P_{cref} = \gamma/\bar{r}$ où $\bar{r}$ est une taille moyenne de pore).

Pour construire, la courbe $P_{c\infty}$, c'est-à-dire la courbe de rétention pour un milieu infini, considérons l'exemple montré sur la Figure 5.

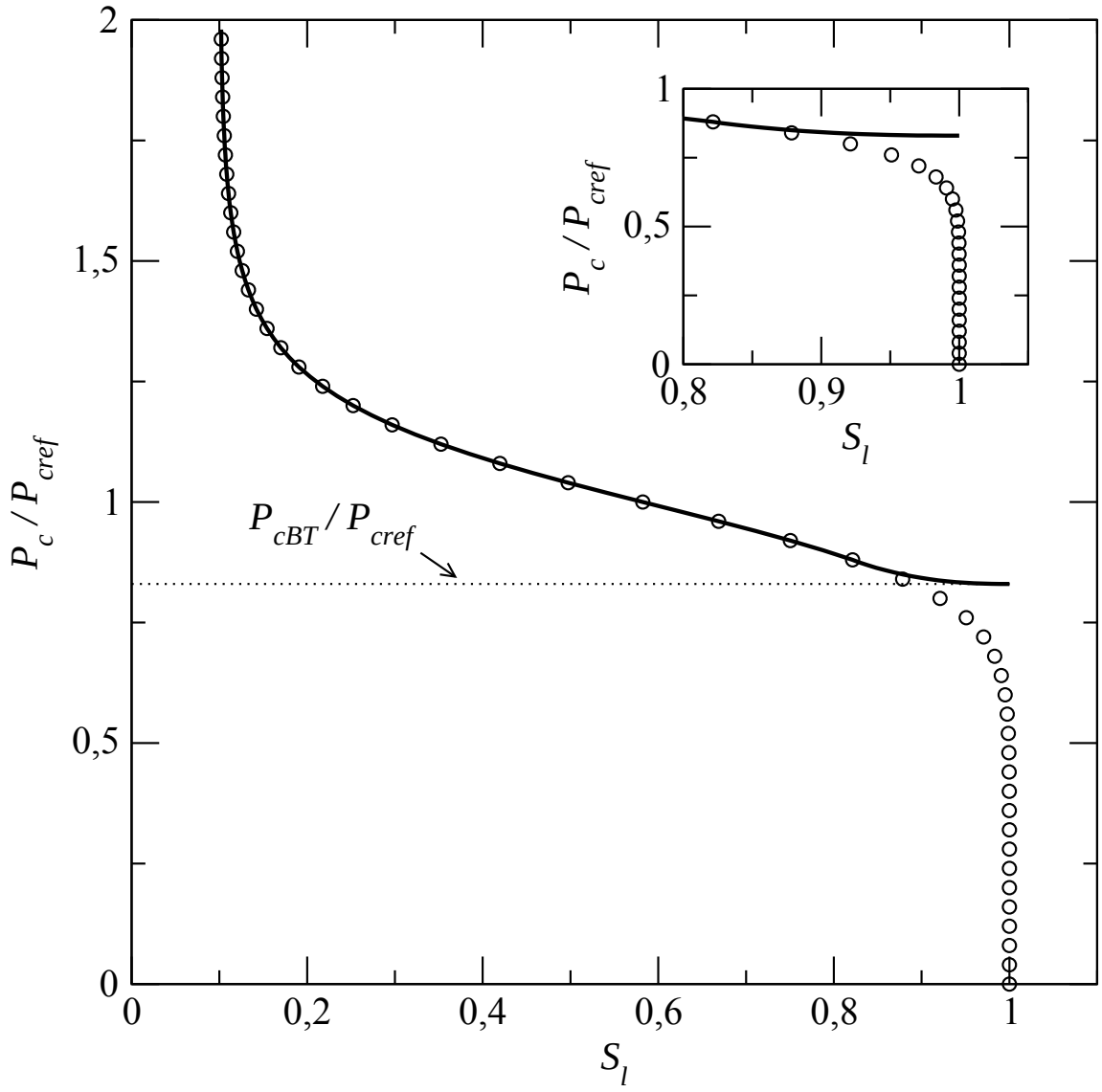


Figure 5. Les symboles (cercles vides) correspondent à la courbe de rétention mesurée sur un échantillon de taille finie (= courbe expérimentale). La courbe en trait continu est la courbe $P_{c\infty}$ correspondant au milieu infini.

On part de la courbe mesurée sur un échantillon de taille finie (cercles vides sur la Fig.5). Dans l'exemple de la Fig.5, il s'agit d'une courbe obtenue expérimentalement pour un empilement de billes monodisperses de diamètre d. Comme discuté dans Hidri et al. (2013), ces données peuvent raisonnablement bien être représentées par la relation de van Genuchten (1980) avec $n = 10$,

$$\frac{S_\ell - S_c}{1 - S_c} = \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{P_c}{P_{cref}}\right)^n\right]^m} \tag{2.13}$$

où $m = 1 - \frac{1}{n}$, $P_{cref} = \frac{6(1-\varepsilon)\gamma}{\varepsilon d}$, $S_c = 0.1$; $\varepsilon \approx 0.4$ est la porosité.

Pour obtenir la courbe pour le milieu infini, il est nécessaire de spécifier les deux paramètres P_{cBT} et λ_p intervenant dans l'Eq.(2.12). En faisant en sorte que la courbe donnée par l'Eq.(2.12) coïncide avec la courbe correspondant à la relation de van Genuchten (Eq.(2.13)) sur une plage de saturation, on trouve $P_{cBT} / P_{cref} \approx 0.83$ et $\lambda_p \approx 3$. Ceci correspond à la courbe en trait plein sur la Figure 5.
Pour établir le profil de saturation pour le nombre de Bond considéré on commence par appliquer l'Eq.(2.6), en utilisant la courbe de rétention $P_{c\infty}$ de la Figure 5. Considérons à titre d'exemple un nombre de Bond élevé $B = 10^{-1}$. On obtient ainsi la courbe en trait continu montrée sur la Figure 6.

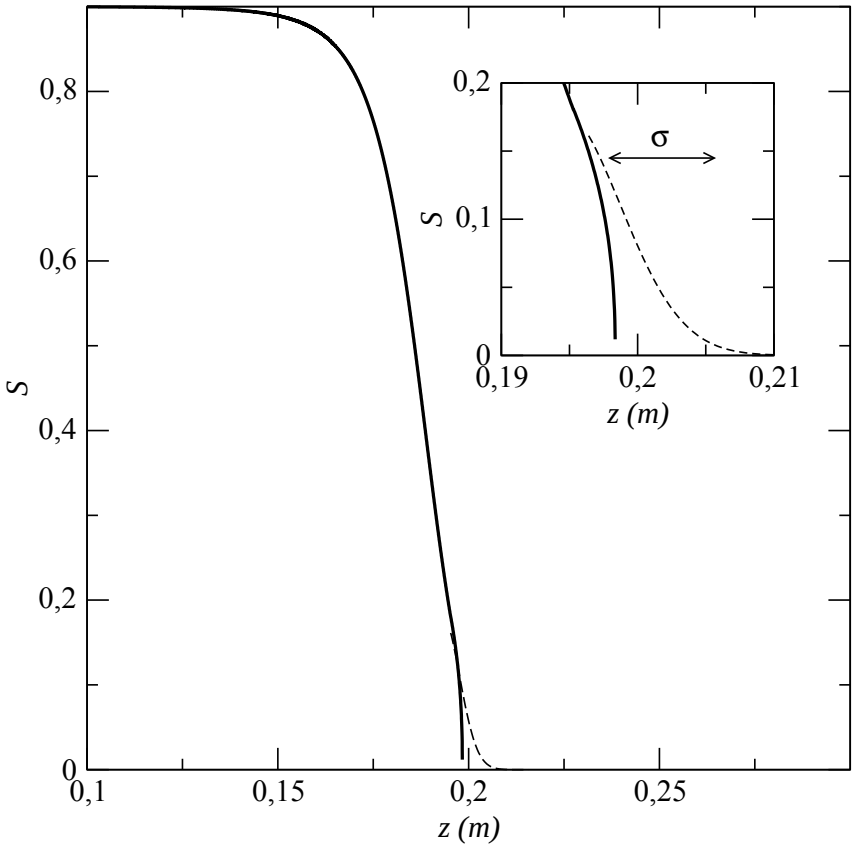


Figure 6. Exemple de profil de saturation pour $B = 0.1$. Le profil en trait continu correspond à la courbe de rétention $P_{c\infty}$. La courbe en trait pointillé correspond au profil dans la zone fractale d'extension σ. Le profil attendu est celui formé par la courbe en trait plein (jusqu'à ce qu'elle rencontre la courbe en pointillé) et la courbe en trait pointillé. L'insert montre un zoom de la partie la plus avancée du profil. *S* est la saturation en fluide non-mouillant (gaz).

Comme déjà mentionné et discuté dans des travaux précédents, Gouyet et al. (1988), Yortsos et al. (1997), Xu et al.(1998), Sarrot et Prat (2010), la zone diphasique peut se décomposer en deux zones, la zone dite compacte pour les points situés entre 0 et z_c et la zone fractale en tête de profil pour $z \geq z_c$; z_c correspond au point où la probabilité d'occupation du réseau poreux par la phase envahissante est égal au seuil de percolation du réseau (plus exactement la fraction des constrictions de l'espace des pores occupées par le gaz en ce point est égal au seuil de percolation). Dans l'exemple de la Figure 6, $z_c \approx 0.198$ m. La taille σ de la zone

fractale en tête de profil varie de façon non triviale avec le nombre de Bond ($\sigma \propto B^{-\nu/(1+\nu)}$). La théorie présentée dans Gouyet et al. (1988), fournit le profil de saturation dans la zone fractale, cf . Eq.(21) dans Sarrot et Prat (2010), c'est-à-dire dans la zone $z \geq z_c$

$$S = \lambda B^{\beta/(1+\nu)} F\left(\frac{z_c - z}{\sigma}\right) \quad z \geq z_c \tag{2.14}$$

où la fonction F est donnée par

$$\log_{10} F(u) = -1.1u^2 + 0.48u + 0.1 \tag{2.15}$$

Il y a donc trois paramètres intervenant dans l'Eq.(2.14), la position z_c, la taille σ et le préfacteur λ. Nous avons ajusté ces grandeurs en considérant que la taille de la zone fractale devait correspondre à l'effet de taille finie visible sur la courbe de rétention de la Figure 5, étant donné que la taille de l'échantillon ayant servi à mesurer la courbe de rétention est du même ordre de grandeur que la distance sur laquelle varie la saturation sur la Figure 6. On verra que les détails de l'ajustement ne sont pas en fait pas importants pour le problème du drainage hyperlent. Ceci conduit à $\lambda = 0.21$, $\sigma / d = 5.2\ B^{-\nu/(1+\nu)}$ et au profil de saturation dans la zone fractale correspondant à la courbe en pointillé sur la Figure 6.

En résumé, le profil s'obtient en utilisant la courbe $P_{c\infty}$ tant que $z \leq z_c$ et l'Eq.(2.14) pour $z \geq z_c$. En pratique le point z_c est déterminé par le point où la solution obtenue à l'aide de $P_{c\infty}$ (courbe en trait plein sur la Figure 6) intercepte l'axe des z.

Considérons maintenant le cas du drainage hyperlent, c'est à dire un petit nombre de Bond. Commençons par un nombre de Bond modéré de 10^{-3}. Le résultat est montré sur la Figure 7 où on a porté aussi le résultat obtenu avec la courbe de rétention expérimentale (modélisée par la relation de van Genuchten Eq.(2.13)). Deux tendances émergent :

- La première est que la courbe obtenue à partir de la courbe de rétention expérimentale (courbe de « van Genuchten ») conduit à un résultat différent du résultat théorique. Ceci s'explique par le fait que le « VER » correspondant à cette courbe est beaucoup plus petit que le VER correspondant au nombre de Bond considéré ici (cf. § 2.2). L'utilisation de cette courbe conduit donc à des résultats erronés.

- La zone fractale (ligne pointillé sur la Figure 7) tend à devenir négligeable par rapport à la prédiction obtenue à partir de $P_{c\infty}$. Pour s'en rendre compte on peut calculer le rapport σ / ξ où ξ est la distance sur laquelle la saturation passe de 0.2 à zéro en utilisant le résultat obtenu à partir de $P_{c\infty}$. On obtient σ / ξ = 2.63 et 0.23 pour respectivement $B = 10^{-1}$ et $B = 10^{-3}$ respectivement. Ceci est évidemment une conséquence directe des lois d'échelle $\xi \sim B^{-1}$ et $\sigma \sim B^{-0.47}$ entre la zone compacte et la zone fractale, $\sigma / \xi \sim B^{0.53}$

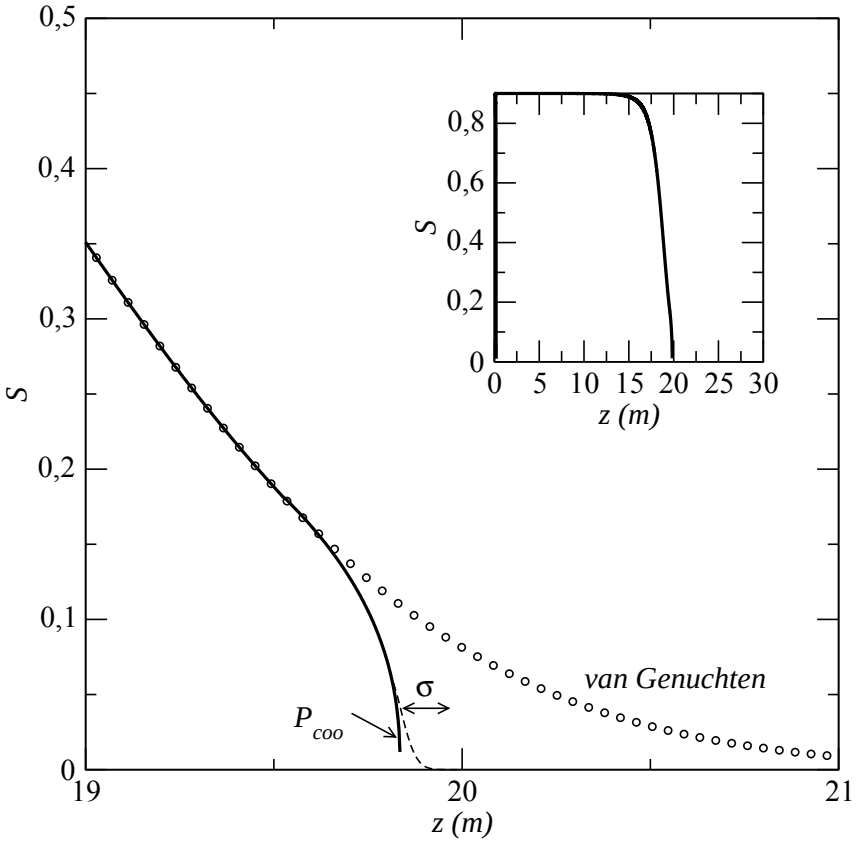


Figure 7. Exemple de profil de saturation pour $B = 10^{-3}$. Le profil en trait continu correspond à la courbe de rétention $P_{c\infty}$. La courbe en trait pointillé correspond au profil dans la zone fractale d'extension σ. Le profil attendu est celui formé par la courbe en trait plein (jusqu'à ce qu'elle rencontre la courbe en pointillé) et la courbe en trait pointillé. La courbe avec les symboles (cercles) correspond à la courbe de rétention affectée par l'effet de taille finie de l'échantillon de mesure (courbe avec les symboles de la Figure 5). L'insert montre le profil pleinement développé obtenu à partir de la courbe $P_{c\infty}$. S est la saturation en fluide non-mouillant (gaz).

Lorsqu'on considère un nombre de Bond nettement plus petit ($B = 10^{-7}$) comme cela est illustré sur la Figure 8, la zone fractale devient indiscernable et la solution obtenue à partir de la courbe $P_{c\infty}$ devient une approximation tout à fait acceptable. La prédiction obtenue à partir de la courbe de rétention « expérimentale » (symbole sur la Figure 8) est évidement mauvaise comparée à la solution de référence correspondant à $P_{c\infty}$. Si on ne considère que les courbes « compactes » il est évident que les Figures 7 et 8 se superposent si on divise les longueurs par B^{-1}.

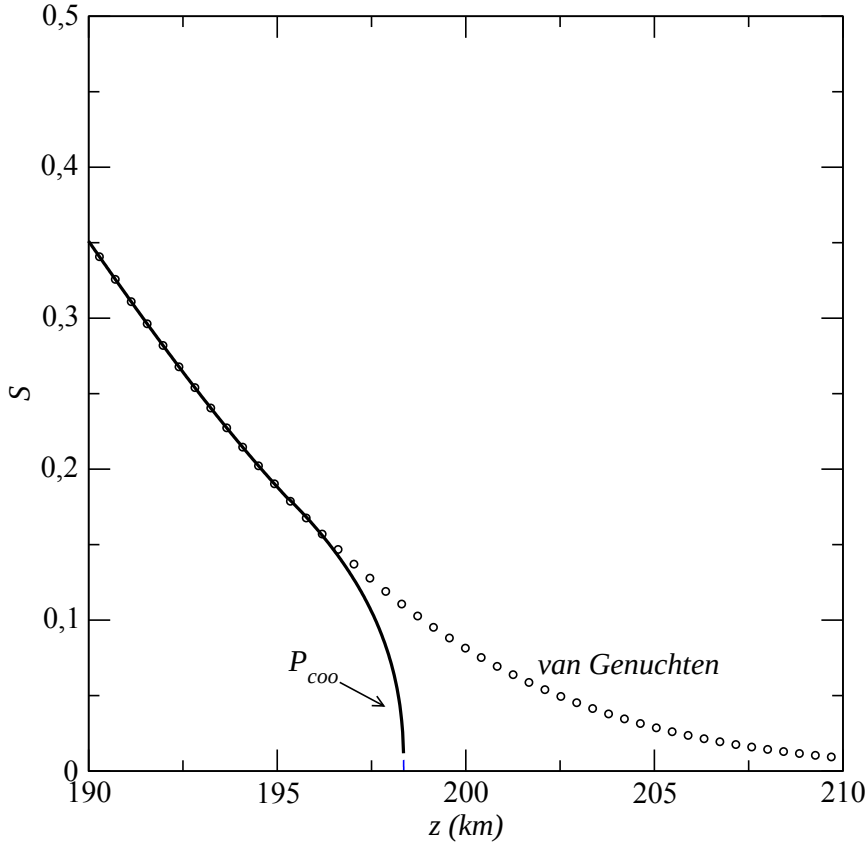


Figure 8. Exemple de profil de saturation pour $B = 10^{-7}$. Le profil en trait continu correspond à la courbe de rétention $P_{c\infty}$. La zone fractale d'extension σ devient indiscernable. Le profil attendu est celui formé par la courbe en trait plein. La courbe avec les symboles (cercles) correspond à la courbe de rétention affectée par l'effet de taille finie de l'échantillon de mesure (courbe avec les symboles de la Figure 5). *S* est la saturation en fluide non-mouillant (gaz).

Il est à préciser que les profils $P_{c\infty}$ et «van Genuchten » sur les Figures 6, 7, 8 ne sont pas comparés pour un même volume de fluide mouillant injecté (comme cela était le cas dans la section § 2.2) mais en supposant une même saturation en entrée du domaine (z = 190 km dans l'exemple de la cas de la Figure 8). Ceci ne change pas le résultat essentiel que ces courbes conduisent à des profils très différents.

En conclusion sur cette partie, on peut noter les points suivants :

- La courbe de rétention à utiliser dans la perspective du calcul du drainage hyperlent est la courbe de rétention pour un milieu infini. Cette courbe, noté $P_{c\infty}$, peut se construire à partir d'une courbe expérimentale classique obtenue sur un échantillon de taille finie en la corrigeant dans la zone entachée par l'effet de taille finie (zone des fortes saturations en liquide). La correction consiste à imposer dans la zone des fortes saturations le comportement en loi puissance prévu par la théorie de la percolation en tenant compte aussi du fait que la pression capillaire doit converger vers la pression de percée pour la saturation 1.

- Dans la limite d'un très faible nombre de Bond (qui joue ici le rôle du nombre capillaire), la dépendance d'échelle devient négligeable si on prend comme indiqué ci-dessus la courbe $P_{c\infty}$. En effet la dépendance d'échelle se traduit essentiellement par la présence d'une zone en tête de profil où la distribution des fluides est fractale. La taille de cette zone devient insignifiante dans la limite d'un très faible nombre de Bond.
- L'utilisation directe de la courbe de rétention expérimentale conduit à des résultats significativement différents des résultats obtenus à partir de la courbe $P_{c\infty}$ et ceci d'autant plus le nombre de Bond est petit. En particulier on peut noter une augmentation beaucoup plus rapide de la saturation en tête de profil avec la courbe de rétention $P_{c\infty}$ qu'avec la courbe expérimentale (cf. Figure 8).

3. Cas visqueux

Revenons maintenant au cas de la Figure 1 où les effets de gravité sont négligeables et où l'effet stabilisant provient des chutes de pression dues aux effets visqueux, le fluide le moins visqueux étant ici le fluide déplaçant (= le gaz). La procédure est similaire à celle suivie dans la section précédente. Il s'agit de calculer le profil de pression dans chaque phase. Un élément clé est de prendre en compte dans le calcul la structure fractale de l'amas de percolation formé par le gaz. Pour cela on s'inspire à nouveau directement des travaux de Yortsos et collaborateurs, Yortsos et al. (1997), Xu et al.(1998).

Comme discuté dans le chapitre précédent, trois paramètres contrôlent le déplacement pour un milieu poreux donné, le nombre capillaire Ca = $\frac{Q\mu_g}{A\gamma}$, le rapport de viscosité $M = \frac{\mu_\ell}{\mu_g}$ et la taille L visité par le déplacement (si Ca est très petit, les chutes de pression visqueuse deviendront comparables aux sauts de pression dus à la capillarité pour L suffisamment grand). Concernant le rapport de viscosité, nous sommes intéressé par le cas $M = \frac{\mu_\ell}{\mu_g} > 1$. En accord avec la discussion présentée dans le chapitre précédent, on suppose que le déplacement est stable, c'est-à-dire compatible avec le modèle de Darcy généralisée.
Comme dans la section précédente on distingue la région du front qui est fractale et la région en amont du front descriptible par l'approche continue. On note x_c le point de transition entre ces deux zones. Ce point est le point où la probabilité d'occupation au sens de la théorie de la percolation est égale au seuil de percolation du réseau (auquel le milieu poreux considéré est supposé pouvoir être associé).

La théorie présentée dans Xu et al.(1998) conduit au résultat suivant concernant la taille σ de la région du front,

$$\sigma \sim \left(\frac{Ca_F C}{2\Sigma} \right)^{-\nu/[1+\zeta+\nu(D-1)]} \tag{3.1}$$

où l'exposant $\nu/[1+\zeta+\nu(D-1)]$ vaut numériquement ≈ 0.25.
Dans l'analyse de Yortsos et al. (1998), le nombre capillaire Ca_F est différent du nombre capillaire Ca car il est construit sur la vitesse du front (la vitesse de déplacement du point x_c) v et non sur la vitesse de filtration Q/A du fluide non mouillant à l'entrée, ces deux vitesses

pouvant être différentes. En combinant cette équation à l'Eq. (2.7), on obtient la saturation en $x = x_c$

$$S_{BT} = \lambda \left(\frac{Ca_F C}{2\Sigma} \right)^{-\nu(D-d)/[1+\zeta+\nu(D-1)]} = \lambda \left(\frac{Ca_F C}{2\Sigma} \right)^{\beta/[1+\zeta+\nu(D-1)]} \tag{3.2}$$

qui de façon similaire au cas hydrostatique montre explicitement la dépendance d'échelle de la saturation à la percée avec le nombre capillaire Ca_F , c'est-à-dire en définitive avec le débit d'injection. S_{BT} diminue quand le débit diminue et tend vers zéro pour un débit très fiable.

Pour construire le profil de saturation l'idée est similaire au cas hydrostatique considéré dans la section précédente. Il s'agit de combiner la solution correspondant à la zone compacte avec la solution pour la zone fractale que l'on vient de écrire. Ici encore l'idée est de renvoyer toute la dépendance d'échelle dans la zone fractale plutôt que de considérer des paramètres diphasiques dépendant d'échelle sur toute la zone diphasique. De façon analogue au cas hydrostatique, l'idée est également que la zone fractale puisse être négligée dans la limite des faibles nombres capillaires. La raison pour cela est que l'exposant dans la relation 3.1 est petit (il vaut 0.25), si bien que la taille de la zone fractale décroît beaucoup plus rapidement avec l'inverse du nombre capillaire que la taille de la zone diphasique compacte (qui varie comme Ca^{-1}, donc avec un exposant (= 1), 4 fois plus grand que l'exposant contrôlant la zone fractale).
Nous avons vu comment construire la courbe de rétention pour un milieu infini. Un travail analogue doit être fait pour la courbe de perméabilité relative au fluide déplaçant. Ici encore l'idée est de s'appuyer pour cela sur la théorie de la percolation. Cette théorie, cf Wilkinson (1986), prédit le comportement suivant pour les saturations en gaz voisines de 0.

$$k_{rg} = \lambda_k S^{\tau/\beta} \tag{3.3}$$

où τ est l'exposant de la conductivité dans la théorie de la percolation ($\tau = 2$ en 3D) et λ_k un préfacteur numérique. Considérant à nouveau un empilement de particules, l'évolution de k_{rg} pour de plus faibles saturations est classiquement décrite par des formules en loi puissance du type

$$k_{rg}(S) = \left(\frac{S}{1-S_c} \right)^3 \tag{3.4}$$

Il s'agit donc de construire $k_{rg\infty}$ en combinant les Eqs. (3.3) et (3.4). Les évolutions de k_{rg} correspondant aux équations (3.3) et (3.4) sont montrées sur la Figure 7. Le préfacteur λ_k dans l'équation (3.4) a été spécifié de façon à ce que les deux modèles de k_r conduisent à des valeurs proches pour les saturations voisines de 0.1 en cohérence avec les courbes de rétention de la Figure 5 (les courbes de rétention « milieu infini » et « expérimentale » se rejoignent vers cette valeur de saturation). Ceci a conduit à $\lambda_k = 75$.
En clair, $k_{rg\infty}$ suit le comportement (3.3) pour S < 0.1 et le comportement (3.4), dit de champ moyen, pour $S > 0.1$. Il faut évidemment s'arranger pour que la courbe obtenue soit continue. Pour ce qui nous concerne, nous allons nous intéresser essentiellement à ce qui se passe pour $S < 0.1$, si bien que nous n'aurons pas besoin en réalité d'utiliser la courbe $k_{rg\infty}$.

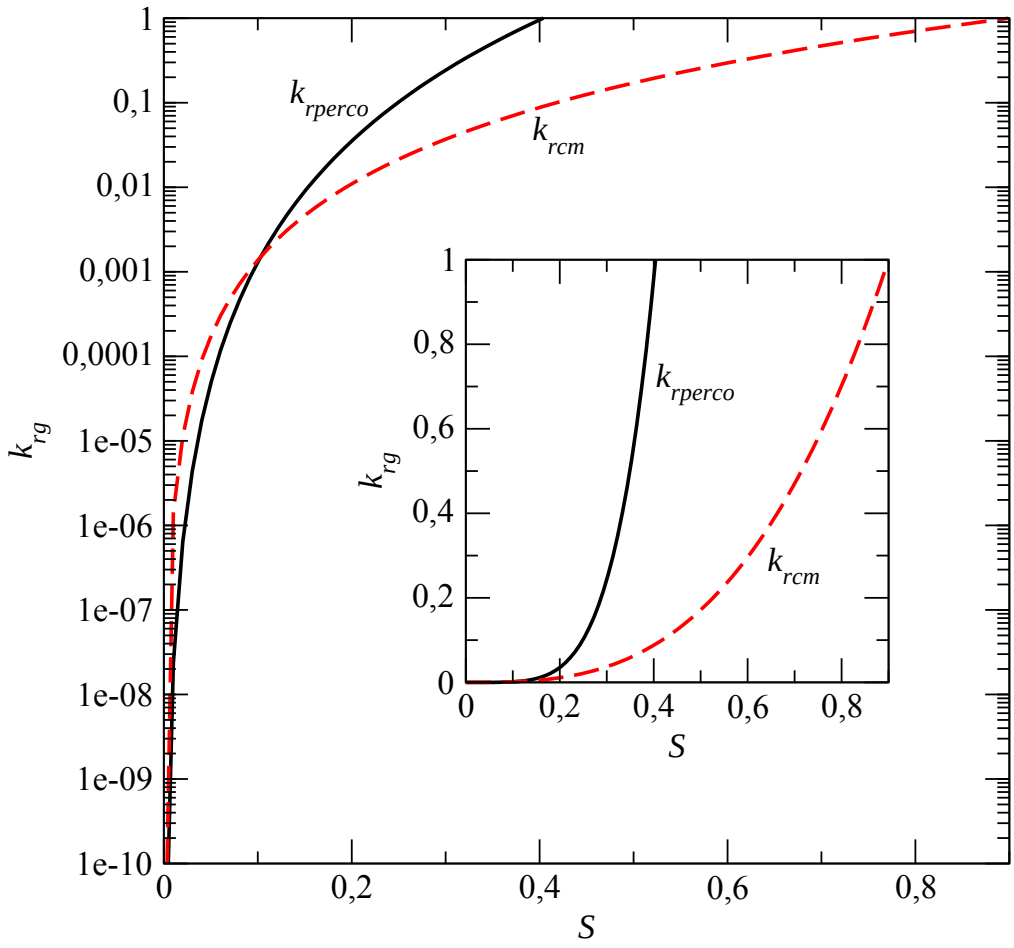


Figure 9. Variation de k_{rg} avec la saturation en gaz. k_{rperco} correspond au comportement prévu par la théorie de la percolation au voisinage des faibles saturations en gaz (Eq.(3.3)) ; k_{rcm} correspond au comportement dit de champ moyen (Eq. (3.4)) qui est celui typiquement mesuré dans une expérience standard de caractérisation des k_r. L'insert montre les évolutions en coordonnées normales.

Pour construire le profil de saturation, la méthode consiste à admettre que le modèle continu s'applique pour calculer jusqu'à la cote $x = x_c$ à condition bien sur de considérer les « bons » comportements des k_r et de P_c. Au-delà de $x = x_c$, c'est-à-dire dans la zone fractale le profil est décrit de façon similaire au cas hydrostatique à l'aide de la fonction F, Eq.(2.15). En fait comme indiqué précédemment, on ne s'intéressera pas à la zone fractale puisque son extension spatiale devient négligeable pour les nombres capillaires très petits du drainage hyperlent.
Etant donné que l'on s'intéresse a priori à des cas où le milieu se désature peu et où l'effet stabilisant est dû à la chute de pression dans la phase envahissante, on suppose négligeable la variation de pression dans la phase déplacée. La phase déplacée étant donc considérée en fait comme non-visqueuse, le modèle diphasique classique se simplifie et prend la forme de l'équation de Richards,

$$\varepsilon \frac{\partial S}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(D \frac{\partial S}{\partial x} \right) \tag{3.5}$$

où

$$D = \frac{k k_r(S)}{\mu} \frac{dP_c}{dS} \tag{3.6}$$

La condition à la limite est un débit imposé en $x = 0$ (entrée du milieu poreux) :

$$Q = -AD \frac{\partial S}{\partial x} \text{ en x = 0.} \tag{3.7}$$

où A est la section du milieu poreux.

En considérant à nouveau un empilement de grains de diamètre d, $k = \frac{\varepsilon^3 d^2}{180(1-\varepsilon)^2}$, on obtient les courbes montrées sur la Figure 10 pour l'évolution de $D(S)$ selon que l'on parte des relations champ moyen (= relation de Van Genuchten avec n = 10 (Eq.(2.13)), $k_{rg}(S)$ donné par l'Eq.(3.4)) ou des relations prédites par la théorie de la percolation (Eqs (2.12) et (3.3)). Les courbes de la Figure 10 ont été obtenues pour d = 0.1 µm, ε =0.4, n =10, S_c=0.1, µ = 10^{-5} Pl, γ = 72 10^{-3} N/m.

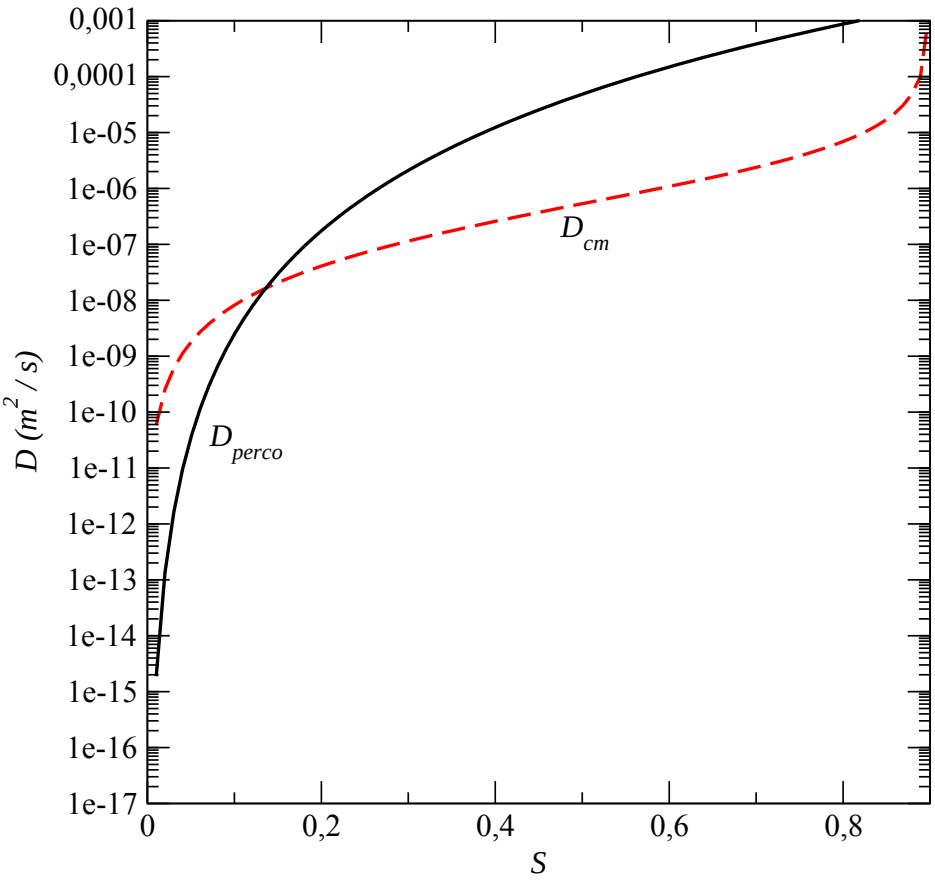


Figure 10. Variation du coefficient D avec la saturation en gaz pour d = 0.1 µm, ε =0.4, n =10, S_c=0.1, μ = 10^{-5} Pl, γ = 72 10^{-3} N/m., λ_p = 3., λ_k =75. D_{perco} est obtenue en utilisant les Eqs. (2.12) et (3.3) ; D_{cm} la relation de Van Genuchten, Eq.(2.13), pour P_c et l'Eq.(3.4) pour k_{rg}

Comme on peut le voir les valeurs de *D(S)* différent de plusieurs ordres de grandeur dans la gamme des faibles saturations selon que l'on adopte les paramètres « champ moyen » ou au contraire les évolutions prédites par la théorie de la percolation.
Ceci a évidemment de fortes conséquences sur les profils de saturation. Pour transmettre un débit donné, le gradient de saturation doit être d'autant plus important que le coefficient *D* est faible. En conséquence, on s'attend à une augmentation plus forte de la saturation à l'entrée du domaine et à une distance de pénétration du gaz plus faible dans le cas du coefficient « percolation » par rapport au cas du coefficient « champ moyen ». Ceci est illustré sur la Figure 11.

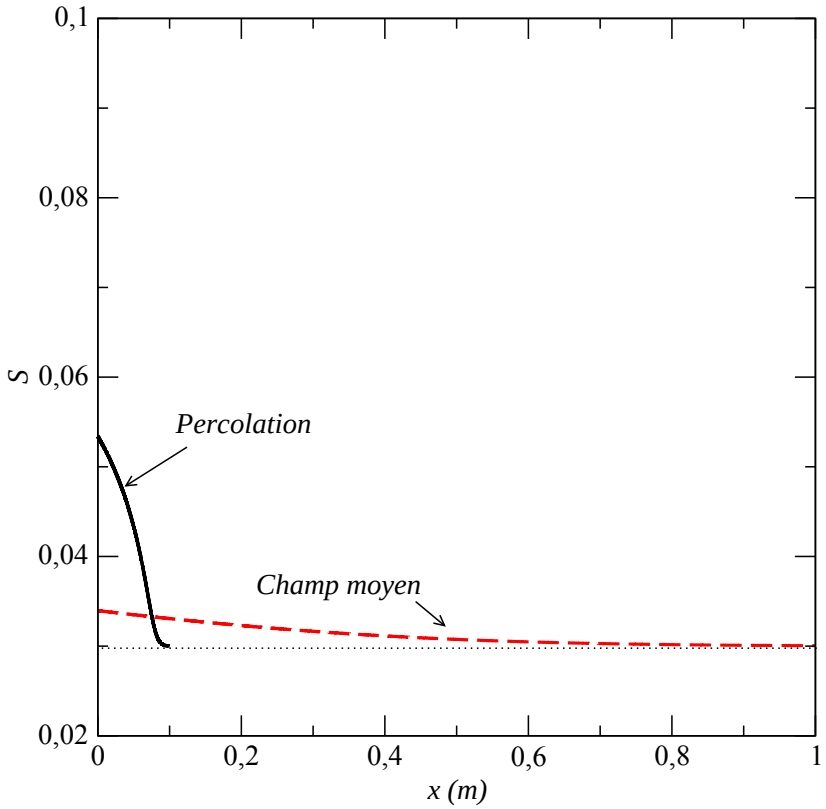


Figure 11. Comparaison du profil de saturation à même volume de gaz injecté entre la solution obtenue avec les paramètres « champ moyen » (D_{cm} de la Figure 10) et la solution obtenue en adoptant les comportements théoriques de ces paramètres prévus par le théorie de la percolation (D_{perco} de la Figure 10). Le calcul a été fait en supposant une saturation initiale en gaz uniforme égale à 0.03. Le nombre capillaire Ca = $\frac{\mu U}{\gamma}$ est de 10^{-15} ; d = 0 .1 µm, ε =0.4, n =10, S_c=0.1, μ = 10^{-5} Pl, γ = 72 10^{-3} N/m., λ_p = 3., λ_k =75. D_{perco} est obtenue en utilisant les Eqs. (2.12) et (3.3) ; D_{cm} la relation de Van Genuchten, Eq.(2.13), pour P_c et l'Eq.(3.4) pour k_{rg}. Les profils sont montrés au temps 2.1 ans.

Pour obtenir les résultats montrés sur la Figure 9, nous avons résolu numériquement le problème (3.5) – (3.7). L'eq.(3.5) a été discrétisé par une méthode aux volumes finis classique. Nous avons utilisé un maillage de 10^6 points régulièrement espacés. Pour définir le pas de temps et le pas d'espace, on peut partir de la forme discrète de l'Eq.(3.7) qui se met sous la forme,

$$\frac{Ca\gamma}{\mu} \approx D\frac{\delta S}{\delta x} \tag{3.8}$$

Soit,

$$\delta x \approx \frac{D\mu\,\delta S}{Ca\gamma} \tag{3.9}$$

On voit que le pas d'espace varie linéairement avec *D*. Si on veut par exemple une variation de saturation de l'ordre de 10^{-3}, on voit, d'après la Figure 10, que le pas d'espace est d'autant plus petit que la saturation initiale dans le domaine est faible. Le pas de temps peut être fixé à partir de la loi donnant l'ordre de grandeur du temps d'établissement du régime stationnaire pour un problème de diffusion dans un domaine de taille *L*.

$$t \approx \frac{\varepsilon L^2}{D} \tag{3.10}$$

On peut prendre $\delta t \approx t/100.$ par exemple si on utilise un schéma numérique implicite.
L'application numérique de l'eq.(3.9) avec $\delta S \approx 10^{-3}$ et Ca = 10^{-15}, conduit à $\delta x \approx 10^{8} D$. Prenons un domaine de 1 m, le nombre de points de maillage est alors $N = 10^{-8} D^{-1}$. Si on veut un nombre de points de maillage raisonnable (10^6 par exemple), ceci conduit à considérer des valeurs de $D \geq 10^{-14}$ m^2/s. Ceci explique pourquoi en pratique, on ne part pas d'une saturation nulle (ou extrêmement faible) qui correspondrait à des valeurs de D_{perco} inférieures à 10^{-15} m^2/s d'après la Figure 10. L'idée est de choisir une saturation de départ suffisamment élevée pour avoir des temps de calcul raisonnables mais suffisamment basse et avec un débit suffisamment faible pour être dans le régime où les coefficients D_{perco} et D_{cm} sont vraiment différents (cf Figure 10). Il est certainement possible de partir de saturations plus basses en raffinant les procédures numériques (maillage variable et adaptatif, etc). Ceci ne devrait qu'accentuer la tendance illustrée sur la Figure 11.

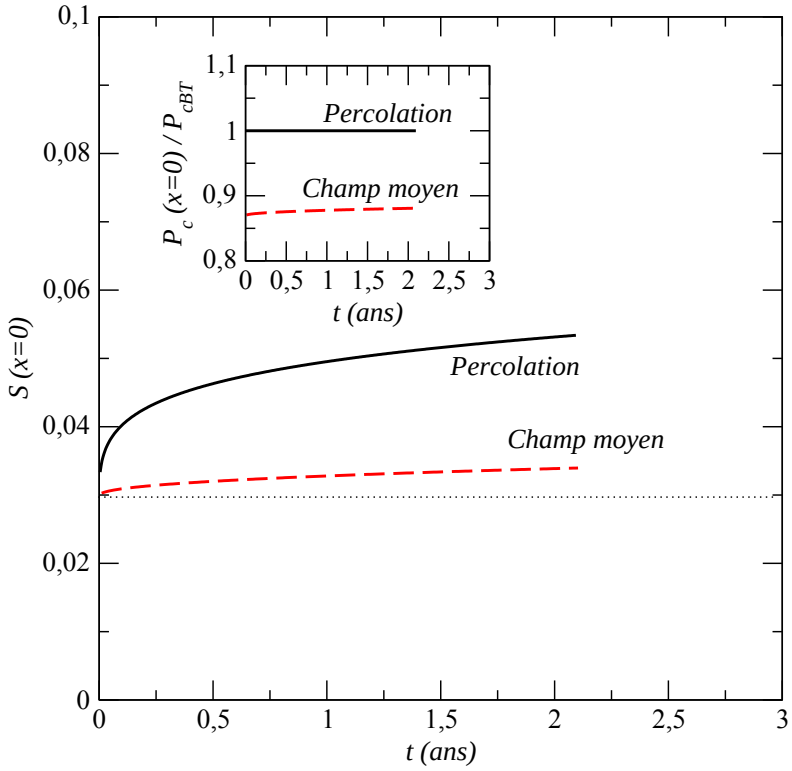


Figure 12. Evolution de la saturation en gaz à l'entrée du domaine poreux (x =0). L'insert montre l'évolution de la pression (capillaire) en x = 0. Le calcul a été fait en supposant une saturation initiale en gaz uniforme égale à 0.03. Le nombre capillaire Ca = $\frac{\mu U}{\gamma}$ est de 10^{-15} ; d = 0 .1 µm, ε =0.4, n =10, S_c=0.1, μ = 10^{-5} Pl, γ = 72 10^{-3} N/m., λ_p = 3., λ_k =75. D_{perco} est obtenue en utilisant les Eqs. (2.12) et (3.3) ; D_{cm} la relation de Van Genuchten, Eq.(2.13), pour P_c et l'Eq.(3.4) pour k_{rg}.

La Figure 12 montre l'évolution de la saturation à l'entrée du domaine poreux. L'augmentation de saturation est beaucoup plus rapide avec les paramètres « percolation » qu'avec les paramètres « champ moyen ». L'insert de cette figure montre un résultat clé en ce qui concerne la pression de gaz à l'entrée du domaine. Dans la limite du drainage hyperlent celle-ci est directement donnée par la pression de percée P_{cBT} (auquel on rajoute la pression (hydrostatique) dans la phase mouillante pour obtenir la pression de gaz). En revanche, l'utilisation des paramètres « champ moyen » conduit à une sous-estimation de cette pression.

Enfin, on peut caractériser la distance visitée par le gaz à l'aide de la mesure suivante

$$L_g = \frac{\int_0^\infty (S(x) - S_0) x dx}{\int_0^\infty (S(x) - S_0) dx} \tag{3.11}$$

où S_0 est la saturation initiale en gaz (S_0 = 0.03 dans notre exemple numérique).

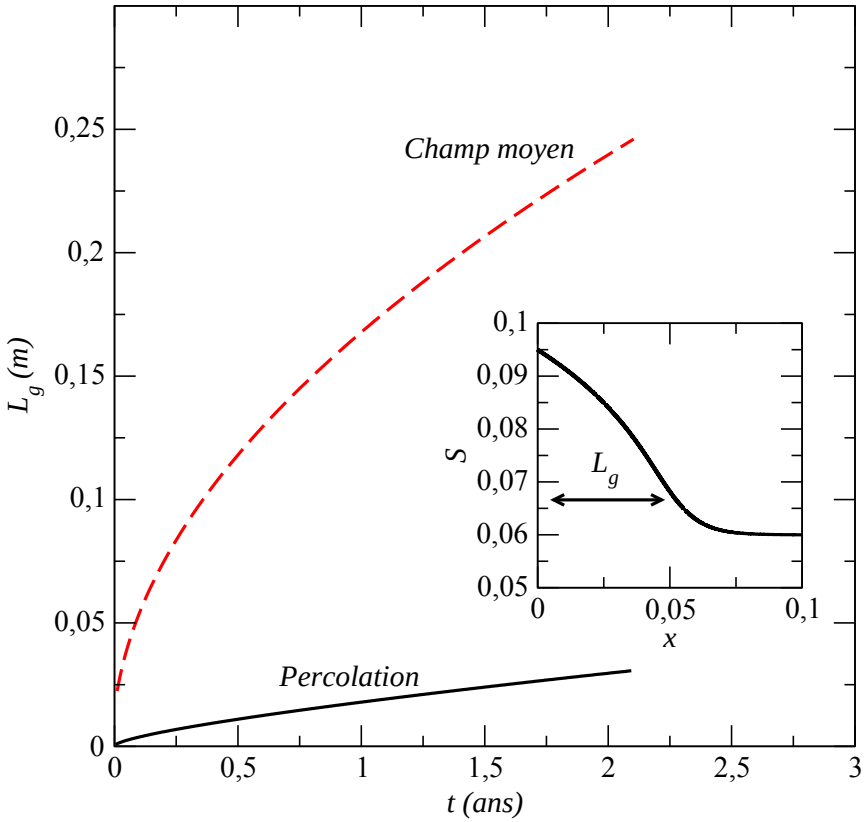


Figure 13. Evolution de la distance visitée par le gaz (Eq.(3.11)). Le calcul a été fait en supposant une saturation initiale en gaz uniforme égale à 0.03. Le nombre capillaire Ca = $\frac{\mu U}{\gamma}$ est de 10^{-15} ; d = 0 .1 µm, ε =0.4, n =10, S_c=0.1, μ = 10^{-5} Pl, γ = 72 10^{-3} N/m., λ_p = 3., λ_k =75. D_{perco} est obtenue en utilisant les Eqs. (2.12) et (3.3) ; D_{cm} la relation de Van Genuchten, Eq.(2.13), pour P_c et l'Eq.(3.4) pour k_{rg}. L'insert montre la définition schématique de L_g.

L'évolution de L_g est montrée sur la Figure 13. Comme attendu, la paramétrisation à partir du comportement champ moyen conduit à surestimer très fortement la zone visitée par le gaz.

En conclusion sur cette partie, on peut donc noter le point principal suivant :

- La perméabilité relative et la courbe de rétention à utiliser dans la perspective du calcul du drainage hyperlent sont la perméabilité relative et la courbe de rétention pour un milieu infini. L'utilisation de ces courbes accentue encore les tendances observées dans le cas purement hydrostatique, tendances qui se traduisent par une montée beaucoup plus rapide de la saturation au voisinage de l'injection qu'avec les courbes dites de champ moyen qui correspondent aux mesures expérimentales classiques. Le corollaire est que la zone visitée par le gaz pour un volume de gaz injecté donné peut être de plusieurs ordres de grandeur plus faible que la prédiction « champ moyen ».

4. Conclusion

Le principal résultat de ce chapitre concerne le problème de paramétrisation (spécification de la courbe de rétention et de la perméabilité relative au gaz pour le drainage hyperlent) :

- Ainsi, la perméabilité relative et la courbe de rétention à utiliser dans la perspective du calcul du drainage hyperlent sont la perméabilité relative et la courbe de rétention pour un milieu infini. Ces courbes peuvent se construire à partir des courbes

expérimentales classiques obtenues sur un échantillon de taille finie en les corrigeant dans la zone entachée par l'effet de taille finie (zone des fortes saturations en liquide). La correction consiste à imposer dans la zone des fortes saturations en fluide mouillant les comportements en loi puissance prévus par la théorie de la percolation en tenant compte aussi du fait que la pression capillaire doit converger vers la pression de percée pour la saturation 1.

Cette paramétrisation s'appuie sur le fait que dans la limite de très faibles nombres capillaires (drainage hyperlent), la dépendance d'échelle devient négligeable. En effet la dépendance d'échelle se traduit essentiellement par la présence d'une zone en tête de profil où la distribution des fluides est fractale. La taille de cette zone devient insignifiante dans la limite d'un très faible nombre capillaire.

On peut également noter les points suivants :

- L'utilisation directe des courbes expérimentales conduit à des résultats très significativement différents des résultats obtenus à partir de la perméabilité relative et la courbe de rétention pour un milieu infini et ceci d'autant plus que le nombre capillaire est petit. En particulier on peut noter une augmentation beaucoup plus rapide de la saturation en tête de profil avec les paramètres « milieu infini » qu'avec les paramètres mesurés expérimentalement (cf. Figures 11 et 12).
- Le drainage hyperlent est caractérisé par une très faible désaturation du milieu (si on considère des nombres capillaires très petits voisins de ceux ($Ca \approx 10^{-14}$) attendus dans le problème du stockage) et donc une pression du gaz à l'entrée restant voisine de la pression de percée (si on prend par convention la pression nulle dans le liquide).
- Le déplacement est plutôt radial dans le cas du stockage. Etant donné que la dépendance d'échelle est négligeable dans la limite d'un très faible nombre capillaire, la paramétrisation proposée s'applique bien entendu aussi au cas radial comme à toute autre configuration. Elle n'est évidemment pas restreinte à la configuration rectilinéaire considérée dans ce chapitre.

Références

Gouyet J.F., Rosso M, Sapoval B. (1988). Fractal structure of diffusion and invasion fronts in three-dimensional lattices through the gradient percolation approach. Phys. Rev. B; 37(4), 1832-1838.

Hidri F., Sghaier N., Eloukabi H., Prat M. , Ben Nasrallah S., (2013). Porous medium coffee ring effect and other factors affecting the first crystallization time of sodium chloride at the surface of a drying porous medium. *Physics of Fluids* **25**, 127101.

Sarrot,V., M. Prat, (2010). Hyperslow drainage in a porous medium. Influence of retention curve. *Advances in Water Resources,* 33 987–996.

Stauffer D., Aharony A.. (1992). Introduction to percolation theory. Taylor & Francis, London.

Wilkinson D.(1986) Percolation effects in immiscible displacement, *Phys. Rev. A* 34, 1380–1391

Xu B., Yortsos Y., Salin D.(1998). Invasion percolation with viscous forces. *Phys. Rev. E* 57(1):739-751.

Yortsos Y., Xu B., Salin D. (1997) Phase diagram of fully developed drainage in porous media. *Phys. Rev. Lett.* 79(23): 4581-4584.

CHAPITRE 7

DRAINAGE HYPERLENT ET DEFORMATION MECANIQUE A PETITE ECHELLE

1.Introduction

De façon un peu schématique, les expériences de drainage avec des échantillons d'argilite menées par différents groupes dans le cadre du GL « gaz » de l'ANDRA conduisent à distinguer deux points de vue. Le premier point de vue, défendu notamment par le BGS (Bristish Geological Survey) est que le drainage dans l'argilite s'accompagne nécessairement de déformations mécaniques à petites échelles, qui à leur tour vont affecter l'écoulement. Le drainage est donc vu ici comme un problème fluide – structure où écoulement et déformations mécaniques à petite échelle sont intimement couplés. Cette vision des choses qui est notamment supportée par des mesures de déformations de l'échantillon au cours de l'écoulement peut être sans doute mise en relation avec certains travaux de physiciens, i.e. Villey et al. (2013), montrant que dans des systèmes très confinés il devient difficile d'étudier un écoulement sans prendre en compte les déformations des parois. La taille critique de confinement en dessous de laquelle cet effet devient très important est de l'ordre de 1 ou 2 nm dans le travail de Villey et al. (2013) mais cela dépend évidemment des propriétés mécaniques du matériau. Dans le cas du drainage de l'argilite, on est plutôt intéressé par des pores de quelques dizaines de nanomètres. La conséquence est que dans ce cas la valeur de la pression de percée par exemple pourrait évidemment dépendre de ce couplage fluide – structure à petite échelle. Plus largement, selon l'importance de ce couplage cela peut remettre en question les simulations du déplacement de l'eau par l'hydrogène ignorant cet effet même si la question est en fait plus subtile puisque la détermination des propriétés comme la pression capillaire ou les perméabilités relatives par voie expérimentale intègre de fait cet effet en partie, s'il existe.

En relation avec les expériences du BGS , les travaux numériques de l'ULG basées sur l'approche continue classique suggèrent l'existence possible de chemins préférentiels au sein de l'argilite i.e. Gerard et al. (2014). Dans le cas des calculs de l'ULG le chemin préférentiel est imposé a priori de façon à faire coller au mieux les calculs avec les observations expérimentales. Dans ce contexte, il est évidemment intéressant d'explorer la possibilité que de tels chemins préférentiels puissent être auto-générés par le système lui–même en conséquence du couplage fluide / structure.

L'autre point de vue, qui correspond à certains travaux effectués par le laboratoire LML de Lilles par exemple, est qu'il est possible de déterminer raisonnablement les propriétés de l'argilite à partir d'images numériques de sa microstructure (obtenues par la technique FIB, voir plus loin le chapitre sur l'argilite). Ces images étant obtenues hors écoulement (il y a cependant une injection de résine), ceci revient donc à considérer comme négligeables les effets de microdéformations.

Dans ce contexte, il est donc intéressant de tenter d'explorer cette question du possible couplage entre écoulements et déformations mécaniques locales. Ici encore, il s'agit de s'appuyer sur des simulations de type réseau de pores. La nouveauté est la prise en compte des effets micro-mécaniques via un système de ressorts couplés en eux comme cela est schématisé sur la Figure 1.

L'objectif est d'étudier l'impact de la déformation sur la figure d'invasion et d'explorer l'éventuelle dépendance de la pression de percée avec la déformation.

Utiliser des modèles de réseau de ressort pour simuler des déformations élastiques dans un matériau est une démarche assez ancienne, voir par exemple Ostoja-Starzewski et al. (1996) et les références citées dans cet article. Ce type de modèle a aussi été utilisé pour étudier la fracturation dans les matériaux, e.g. Bolander and Saito (1998).

Plus récemment, Holtzman and Juanes (2010) ont également utilisé cette technique pour étudier l'impact du couplage fluide-structure sur les figures d'invasion en drainage. Le travail présenté dans ce qui suit s'inspire directement de leur travail et utilise le même modèle. Après quelques rappels élémentaires de mécanique, notamment en ce qui concerne la loi du comportement d'un ressort en traction / compression, nous commençons ce chapitre par présenter plus en détail leur travail.

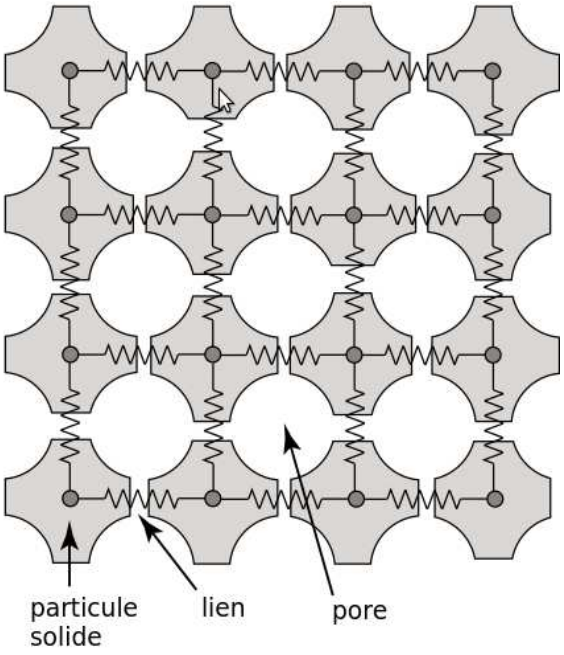
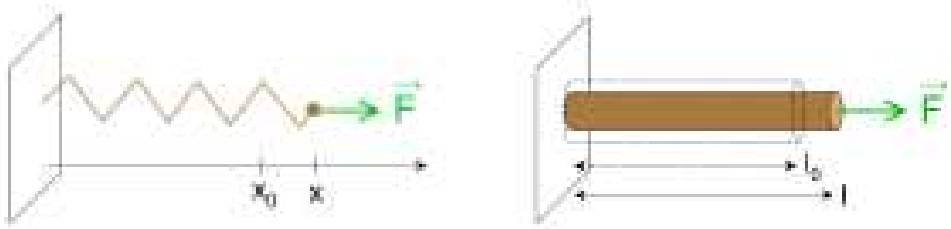


Figure 1. Le système considéré dans ce chapitre : un réseau classique bidimensionnel de pores et de liens pour le calcul de l'écoulement est couplé à un réseau de ressorts précontraints et à seuil.

2. Loi de comportement d'un ressort en régime élastique



a) b)

Figure 2. a) Ressort soumis à une force F ; b) barre soumis à une force F

Considérons le schéma de la Figure 2a. Un ressort est au repos d'une longueur x_0 et soumis à une force F considérée ici comme positive (le ressort s'allonge). Dans le régime élastique qui nous intéresse pour la suite, la force et l'allongement sont reliés par une loi linéaire,

$$F = K\,(x\text{-}x_0) = K\Delta x \tag{2.1}$$

où K est la constante de raideur du ressort.

Dans le cas du barreau de la Figure 2b, on a de façon analogue en régime élastique une relation linéaire entre contrainte et déformation,

$$\sigma = \frac{F}{S} = E\frac{\ell - \ell_0}{\ell_0} \tag{2.2}$$

où ℓ_0 est la longueur de la barre au repos et ℓ la longueur après déformation ; S est la section de la barre ; E est le module d'Young du matériau.
L'équation (2.2) peut se mettre sous la forme de celle du ressort en posant

$$K = \frac{ES}{\ell_0} \tag{2.3}$$

Soit,

$$F = K\Delta\ell \tag{2.4}$$

3. Théorie de Hertz pour le contact sans friction entre deux sphères

Le modèle de Holtzman and Juanes (2010) s'appuie en partie sur la théorie classique de Hertz qui décrit le contact élastique entre deux sphères. La configuration étudiée est illustrée sur la Figure 3. On suppose que les deux sphères sont de même rayon R_s

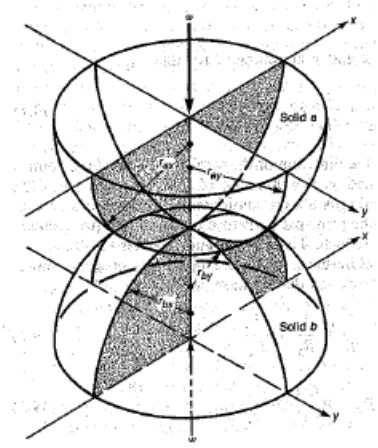


Figure 3. Contact élastique entre deux sphères (figure tirée de Hamrock and Dowson (1981)), b)

On applique sur chacune des sphères une force F (symbolisée par des flèches verticales sur la Figure 3). La conséquence est une déformation élastique des deux solides qui se traduit par la formation d'une surface de contact circulaire dans le plan tangent aux deux sphères en contact et un rapprochement des deux objets. La distance entre le centre des sphères et le plan du contact devient respectivement $R_s - \delta_a$ (sphère supérieure) et $R_s - \delta_b$ (sphère inférieure). Les deux sphères se donc sont rapprochées d'une distance $\delta = \delta_a + \delta_b$.

La théorie de Hertz permet d'obtenir la relation suivante entre le déplacement et la force appliquée dans la limite d'une faible déformation,

$$\delta = \left(\frac{9F^2}{16RE^{*2}} \right)^{1/3} \tag{3.1}$$

où $R = R_s / 2$ et le module d'Young E^* est un module d'Young effectif qui se calcule à partir des propriétés de chaque sphère selon la formule,

$$E^* = \left(\frac{1-\nu_a^2}{E_a} + \frac{1-\nu_b^2}{E_b} \right)^{-1} \tag{3.2}$$

où E_a et ν_a sont respectivement le module d'Young et le coefficient de Poisson du la sphère *a (*idem pour la sphère *b)* . L'équation (3.1) se met sous la forme

$$F = \frac{2\sqrt{2}}{3} E^* \sqrt{R_s \delta}\, \delta \tag{3.3}$$

En introduisant la raideur

$$K = \frac{2\sqrt{2}}{3} E^* \sqrt{R_s \delta} \tag{3.4}$$

l'équation (3.3) se met sous une analogue à l'équation (2.4),

$$F = K\,\delta \tag{3.5}$$

4. Modification de l'ouverture du passage entre les sphères liée à la déformation

Le modèle de Holtzman and Juanes (2010) s'appuie sur une représentation du milieu solide comme un arrangement bidimensionnel de grain (esquissé sur la Figure 4).

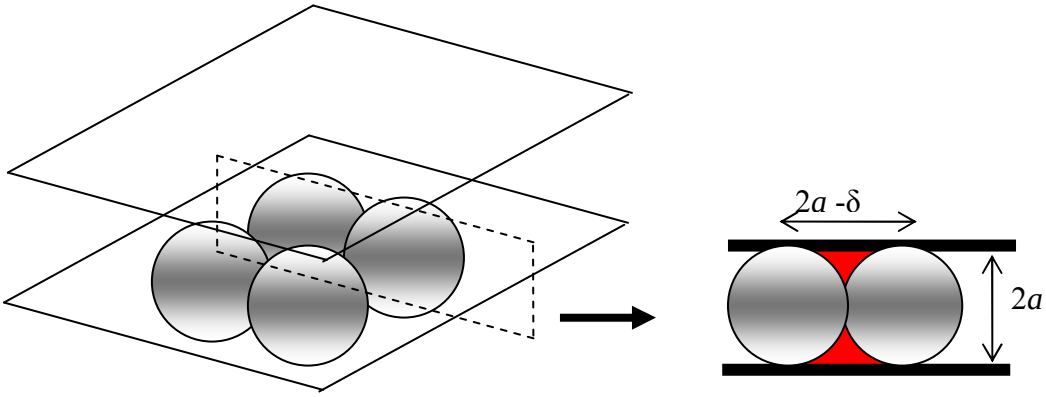


Figure 4. Schéma de la réduction du passage (aire en rouge) entre les deux sphères.

Dans le modèle réseau, on est intéressé par la section du lien et comment celle-ci varie en conséquence de la variation de la distance entre les sphères. Il s'agit donc de caractériser la variation de la surface correspondant à correspondant à l'aire rouge sur la Figure 4.
Ceci conduit à considérer le schéma de la Figure 5.

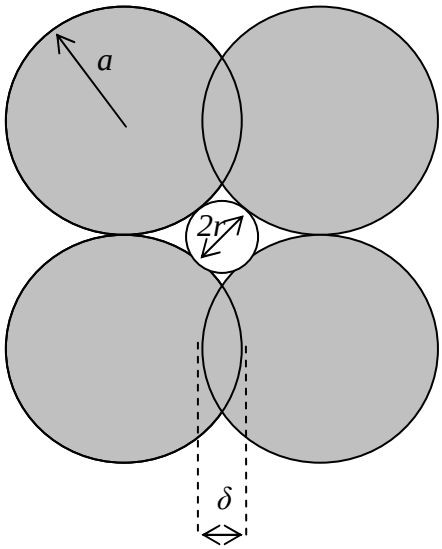


Figure 5. Géométrie de la section du lien entre les deux sphères et définition du rayon du lien.

Le lien est assimilé au cercle inscrit entre les sphères comme présenté sur la Figure 5. En absence de déformation ($\delta = 0$),

$$r = a(\sqrt{2} - 1) \tag{4.1}$$

En présence de déformation et en comptant δ positivement, une extension directe de l'équation (4.1) est d'évaluer le rayon du lien selon l'expression,

$$r = \sqrt{\left(a - \frac{\delta}{2}\right)^2 + a^2} - a \tag{4.2}$$

soit,

$$r = a\left(\sqrt{1 + \left(1 - \frac{\delta}{2a}\right)^2} - 1\right) \tag{4.3}$$

En différentiant l'équation (4.3), on obtient la variation du rayon du lien en réponse à la variation de δ (rapprochement entre les sphères),

$$\Delta r = -\frac{\Delta\delta\left(1-\frac{\delta}{2a}\right)}{2\sqrt{1+\left(1-\frac{\delta}{2a}\right)^2}} \tag{4.4}$$

Ces éléments étant établis nous pouvons passer à une présentation de l'article de Holtzman et Juanes (2010)

5. L'article de Holtzman et Juanes (2010)

Comme tous les réseaux de pores considérés dans notre travail, le réseau fluide qui a une structure classique de pores interconnectés par des liens est désordonné. Dans le modèle HJ (= Holtzman et Juanes), les tailles des particules solides varient aléatoirement, ce qui induit une variation aléatoire de la taille (= largeur) des liens. Les interactions mécaniques sont donc représentées par un réseau de ressorts interconnectés. Les ressorts sont précontraints (comprimés en partie) avec l'idée que l'on se limite à des déformations assez faibles.
Les noeuds du réseau fluide sont donc les pores tandis que les noeuds du réseau solide sont les centres des particules. Le pas du réseau (distance entre deux pores ou entre deux particules avant déformation) est $2a$ où a est donc la demi-distance entre deux pores. Le désordre du milieu poreux est modélisé en assignant initialement une section A (aire) et une perméabilité locale k différente à chaque lien du réseau fluide. Ces grandeurs varie comme le carré de l'ouverture du lien r, $A \sim r^2$ et $k \sim r^2$. La taille r est distribué aléatoirement suivant une loi de probabilité uniforme dans la gamme $[1-\lambda, 1+\lambda]\,\bar{r}$, où $\bar{r} = a$. Dans ce modèle, le coefficient λ est donc une mesure du désordre.
Le fluide déplaçant est supposé non-visqueux. La pression dans le fluide déplaçant est donc spatialement uniforme. Le fluide déplacé saturant initialement complètement le réseau est un fluide visqueux de viscosité dynamique μ.
Un aspect concerne la dynamique de réajustement des ménisques au moment où s'effectue l'invasion brusque (phénomènes connus sous le saut de Haines) d'un ou plusieurs pores. La considération des phénomènes de réajustement conduit les auteurs à introduire un paramètre de compressibilité effective $c_t = \gamma / a$ où γ est la tension de surface (l'obtention de cette relation est détaillé dans l'article).
Le fluide déplacant étant non-visqueux, l'évolution de la pression est calculée dans le fluide déplaçant. L'évolution de pression dans un pore non-drainé est écrite sous la forme discrétisée suivante de l'équation de conservation de la masse pour le pore considéré,

$$p(t+\Delta t) = p(t) + \left(\sum_j q_j \Delta t\right)/(c_t V) \tag{5.1}$$

où Δt est le pas de temps et V le volume d'un pore.
Le débit entre le pore considéré et le pore voisin j est donné par une loi de Darcy locale

$$q_j = \frac{Ak}{\mu}\frac{\left(p_j - p\right)}{\ell_j} \tag{5.2}$$

où $\ell_j = 2a$ entre deux pores non-drainés. Si le pore j est drainé (occupé par le fluide déplaçant) le ménisque entre les deux pores avance si $p_j - p > 2\gamma / r$. La longueur sur laquelle s'applique la différence de pression dans ce cas varie avec la position du ménisque,

$$\ell_j(t+\Delta t) = \ell_j(t) - (q_j / A)\Delta t \tag{5.3}$$

Le calcul de l'écoulement est donc basé ici sur une méthode a priori complètement explicite (pas de système linéaire à résoudre), l'essentiel devant être de fixer un pas de temps raisonnablement petit.
Les résultats présentés montre que ce modèle produit bien dans le cas non-déformable les résultats attendus concernant l'évolution des figures d'invasion en fonction du nombre capillaire (diagramme de Lenormand, Lenormand *et al.* (1988)).

Pour étudier, l'effet de la déformabilité le modèle d'écoulement doit être couplé au réseau solide. Concernant ce dernier, la contraction d'un ressort est noté *h(t) (h(t)* est donc l'équivalent de la distance δ des sections 3 et 4, nous gardons ici la notation *h(t)* plutôt que *δ(t)* par conformité avec l'article de HJ*)* . A l'instant initial, la compression de tous les ressorts est identique et égale à une contraction h_0 . Ce qui correspond à une déformation $\varepsilon_0 = h_0 / 2a$. Chaque particule est soumise à deux types de forces : des forces de contact et des forces de pression. La force f_p exercée par le fluide occupant un pore adjacent sur une particule est orientée à 45° et vaut $f_p = p\, A_p$, où $A_p \sim a^2$ est l'aire sur laquelle s'applique la pression p. Les forces de contact entre les particules évoluent selon la formule,

$$f_c(t+\Delta t) = f_c(t) + K\Delta h \tag{5.4}$$

où K est la raideur du ressort et $\Delta h = h(t+\Delta t) - h(t)$ est la variation de la contraction du ressort considéré.

La position des particules est déterminée en faisant le bilan des forces sur chaque particule. Soit,

$$\sum (\vec{f}_p + \vec{f}_c) = 0. \tag{5.5}$$

ce qui conduit à un système linéaire dont la résolution donne la variation de contraction Δh de chaque ressort.
Le changement de taille des liens et de la force entre les particules induit par le déplacement des particules est évalué par analogie avec un empilement cubique de particules subissant un contact Hertzien sans frottement comme décrit §3 et §4 ,

$$\Delta r = -\left[\frac{\Delta h(1-\varepsilon)}{2\sqrt{1+(1-\varepsilon)^2}}\right] \tag{5.6}$$

où $\varepsilon = h / 2a$. . On retrouve donc ici l'equ. (4.4).
La raideur d'un ressort est calculée par l'expression suivante qui correspond à l'equ. (3.4),

$$K = 2E^*\sqrt{R^* h} \tag{5.7}$$

où $R^* = a/2$ et E^* est le module d'Young effectif (cf. Eq.(3.2)). On peut noter que le préfacteur numérique 2 de l'eq.(5.7) est légèrement différent du préfacteur $2\sqrt{2}$ / 3 de

l'équation (3.4). Ce détail n'est pas important pour la suite de ce chapitre. Nous avons adopté l'équation (5.7) pour nos simulations.
Le matériau est supposé ne pas pouvoir subir de tension, si bien qu'un ressort est enlevé lorsqu'il s'allonge par rapport à sa longueur au repos ($\Delta h \leq 0$). Dans ce cas une petite force cohésive est en fait appliquée (pour des raisons numériques). Cette force est de plusieurs ordres de grandeur plus faible que la force de pression typique.
La mise en œuvre de ce modèle conduit notamment aux résultats présentés sur la Fig.6.

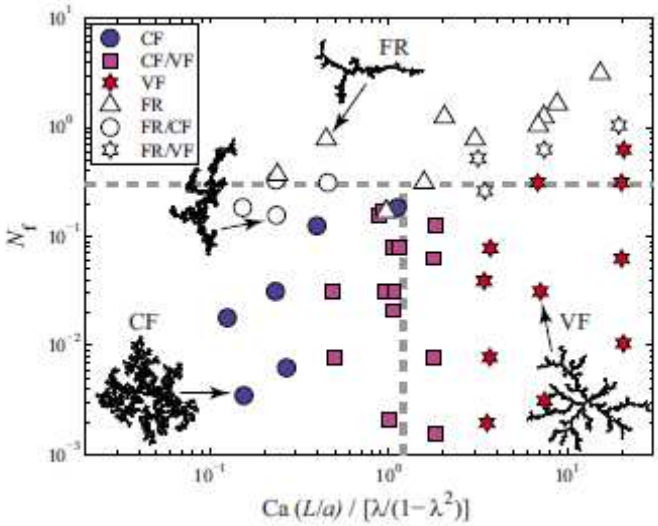


Figure 6. (correspond à la Figure 3 de l'article HJ). Diagramme de phase du drainage en milieu déformable d'après Holtzman et Juanes (2010).

Cette figure montre les différentes figures d'invasion obtenues dans un réseau 2D avec injection du fluide non-mouillant au centre du réseau. Le paramètre N_f est une mesure de la déformabilité du réseau (il est explicité un plus bas). L est la taille du réseau. Ca le nombre capillaire suivant sa définition habituelle (Ca = $\mu v / \gamma$). Lorsque N_f est suffisamment faible, on retrouve le comportement des milieux rigides (diagramme de Lenormand) : régime de digitations capillaires (CF) aux faibles valeurs de Ca et régime de digitations visqueuses (VF) aux forts Ca. En revanche, on constate un nouveau régime, baptisé régime de fracturation (FR) lorsque le milieu est suffisant déformable. Ce régime est observé lorsque les variations d'ouverture des liens dues à la déformation sont suffisamment importantes. La figure 7, toujours tirée de l'article de Holtzman et Juanes (2010) montre de façon plus détaillée la transition VF - FR

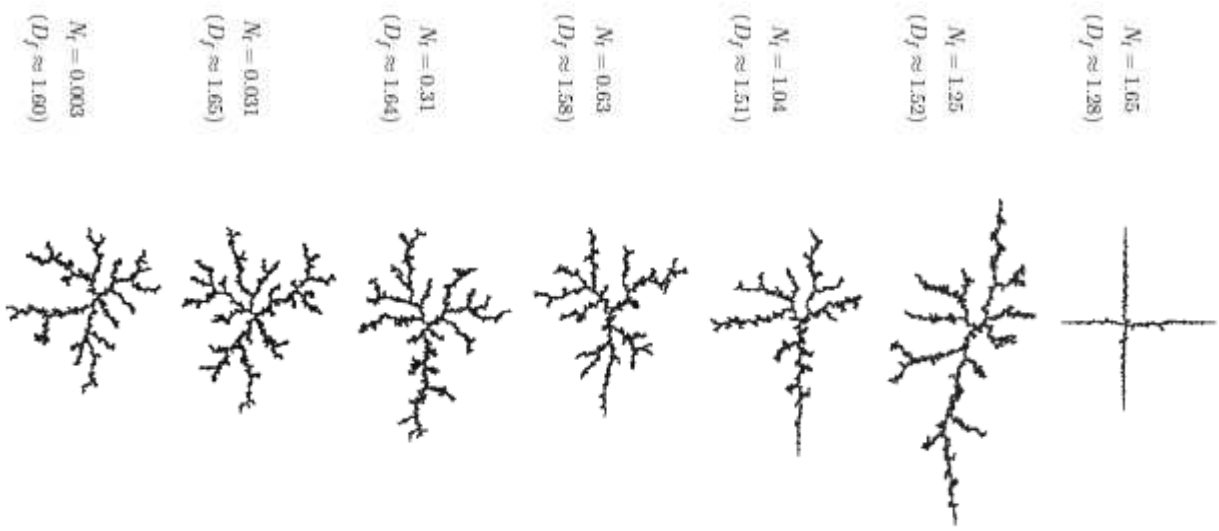


Figure 7 (correspond à la Figure 5 de l'article HJ). Transition VF – FR quand on augmente le paramètre N_f . D_f est la dimension fractale de la figure d'invasion obtenue.

Le réseau étant carré, on peut voir que le fluide envahissant tend à suivre les directions principales du réseau en régime FR.

Le paramètre N_f , qui contrôle la transition vers le régime fracturant (FR) est un paramètre sans dimension donné par l'expression suivante,

$$N_f = \frac{\gamma}{\lambda a E^* \varepsilon_0^{1/2}} \tag{5.8}$$

où ε_0 est la déformation initiale des ressorts.

N_f s'interprète comme le rapport entre l'incrément de la force pression nécessaire à l'envahissement d'un pore $\Delta f_p \sim \gamma a$ et l'incrément de force résultant de la déformation des particules $\Delta f_c \sim \lambda E^* a^2 \varepsilon_0^{1/2}$. Cette dernière expression est obtenue en appliquant les Eq.(3.4) et (3.5) pour un variation de la distance entre particules de l'ordre de la variation des ouvertures des liens dans le réseau, soit $\Delta h \sim \lambda a$. En d'autres termes, quand N_f est d'ordre 1, la liaison initialement de plus faible ouverture dans le réseau peut devenir d'ouverture comparable à la liaison de plus grande ouverture sous l'effet de la déformation.

Comme on peut le constater N_f varie de façon inversement proportionnelle avec a, c'est-à-dire la taille des pores. En d'autres termes, pour des propriétés mécaniques données, le régime de fracturation est attendu en dessous d'une taille critique de particules. En clair, ceci est cohérent avec l'idée que le couplage fluide – structure peut devenir un phénomène essentiel dans les milieux nanoporeux.

Dans ce qui suit nous exploitons le modèle proposé par Holtzman et Juanes (2010) pour des configurations plus proches de celles des expériences effectuées dans le cadre du GL « gaz ». Nous nous intéressons notamment à l'impact de la fracturation sur la pression de percée.

6. Modification de la figure d'invasion et de la pression de percée dans le régime de fracturation

Les simulations sont effectuées sur des réseaux carrés dont les tailles de liens (rayons équivalents) sont tirées aléatoirement suivant une loi de probabilité uniforme dans la gamme [2.5 μm – 7.5 μm]. Le pas de réseau a est de 100 μm. La gamme de taille de liens choisie peut surprendre puisqu'on s'intéresse en priorité à des systèmes nanoporeux. En réalité cela ne change pas les conclusions obtenues même si il aurait été évidemment plus cohérent de considérer des liens plus petits. La seule différence est que l'effet de la déformation apparait pour des modules d'Young d'autant plus faible que les liens sont petits mais cela ne change les valeurs de N_f marquant les transitions entre différentes figures d'invasion (voir ci-dessous)..

6.1 Domaine carré avec 3 bords rigides et injection latérale (bord d'entrée entièrement accessible)

La configuration étudiée est schématisée sur la Figure 8. Le fluide non-mouillant est injecté par le bord gauche du domaine. Le fluide déplacé quitte le système par le bord droit. Les bords latéraux haut et bas sont imperméables. Les bords latéraux et le bord d'injection sont rigides. Le bord de sortie est libre. Pour imposer une condition de bord libre il suffit d'imposer une constante de ressort nulle aux ressorts situés en périphérie du bord concerné. Pour imposer une condition de bord rigide, on impose la position des nœuds du réseau de ressorts situés sur ce bord.

Les simulations présentées dans cette section sont effectuées en négligeant complètement les effets visqueux (limite quasi-statique). La pression est spatialement uniforme dans chaque phase. Elle est évidemment différente dans chacune des phases du fait des effets capillaires. C'est bien sur cette différence de pression due à la capillarité qui est responsable de la déformation et de la modification de l'ouverture des liens quand le milieu est suffisamment mou.

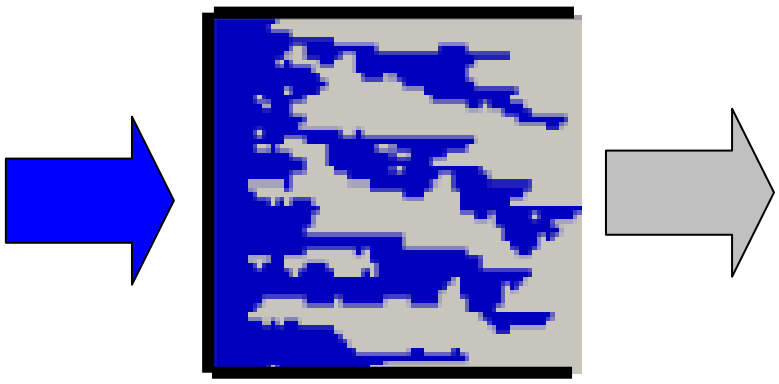


Figure 8. Injection quasi-statique dans un domaine carré avec 3 bords rigides (traits noirs épais). Liquide mouillant en gris, liquide non mouillant en gris.

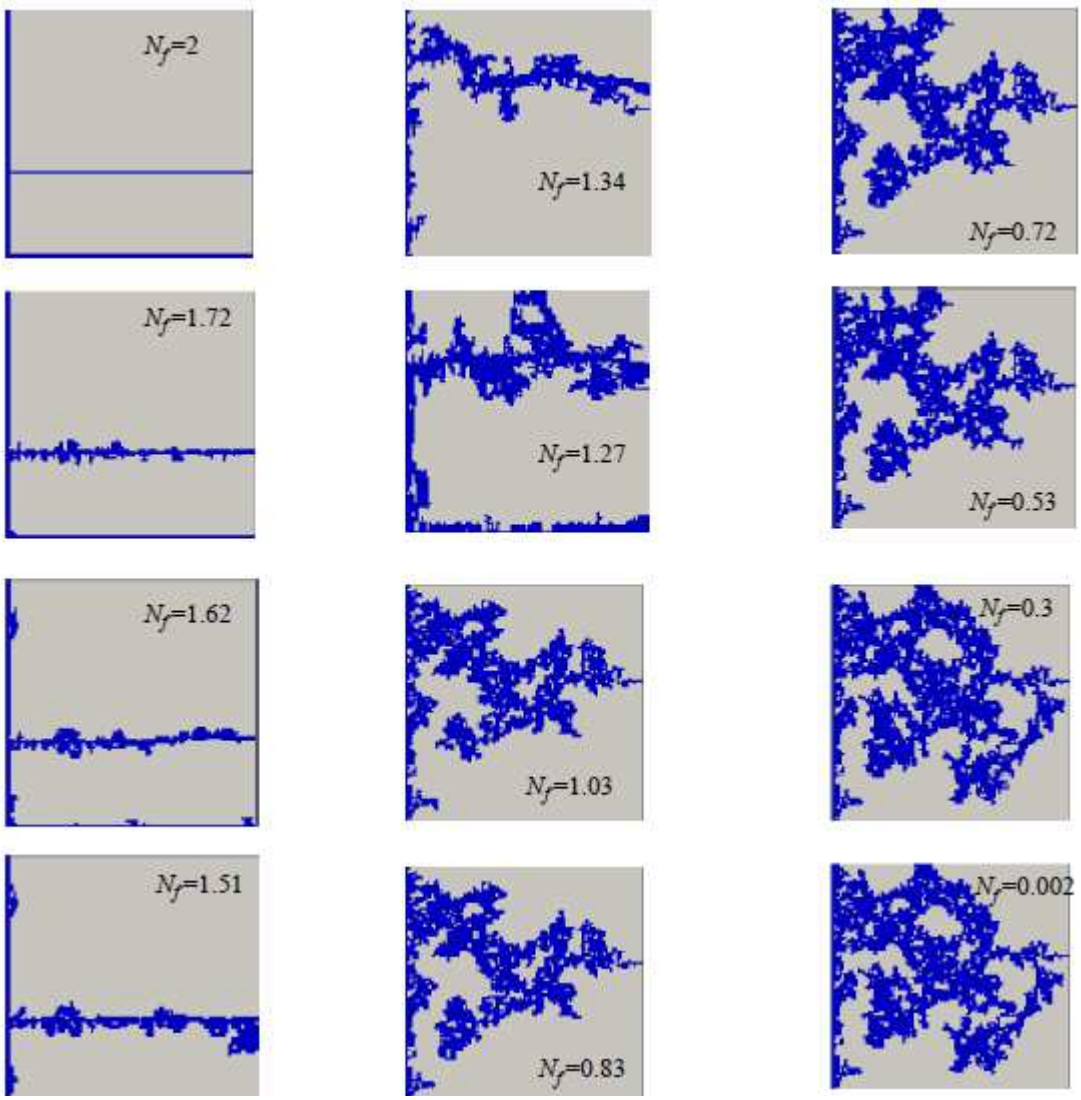


Figure 9. Transition FR – CF obtenue pour la configuration de la Figure 8 quand on fait varier paramètre N_f . Simulation sur un réseau 100×100.

La Figure 9 montre une évolution typique de la figure d'invasion en fonction du nombre de fracturation N_f (Equ.5.8). Lorsque les effets de la déformation sont négligeables (faibles N_f), on obtient une classique figure de percolation d'invasion. En revanche, l'effet de la déformation, ou plus exactement du couplage fluide structure, quand on augmente suffisamment N_f conduit à un changement très significatif de la figure d'invasion avec l'apparition de chemins préférentiels. Les chemins préférentiels suivent ici les directions principales du réseau.

Le fluide envahissant ayant tendance à ouvrir les liaisons qu'il emprunte lorsque la déformation n'est pas négligeable, on s'attend à une diminution de la pression de percée par rapport à la situation où le milieu est rigide. Ceci est illustré sur la Figure 10. Dans le cas de la simulation réseau la pression P_g à chaque instant dans la phase déplaçante est donnée par

$$P_g = \frac{2\gamma}{r_t} + P_\ell \qquad (6.1)$$

où P_ℓ est la pression dans la phase déplacée (cette pression est prise à zéro) et r_t est la taille du lien (rayon équivalent) contrôlant l'invasion dans l'étape considérée. La pression P_g fluctue donc au cours de l'invasion (dans la gamme [P_{cnin}, P_{cBTth}] pour un milieu rigide où $P_{cnin} = \frac{2\gamma}{r_{t\max}}$ et P_{cBTth} est la pression de percée théorique correspondant au seuil de percolation du réseau considéré). La pression de percée calculée avec la simulation sur réseau est la pression P_g au moment où la percée atteinte. Elle correspond donc directement à l'ouverture du dernier lien qu'il faut envahir pour percer.

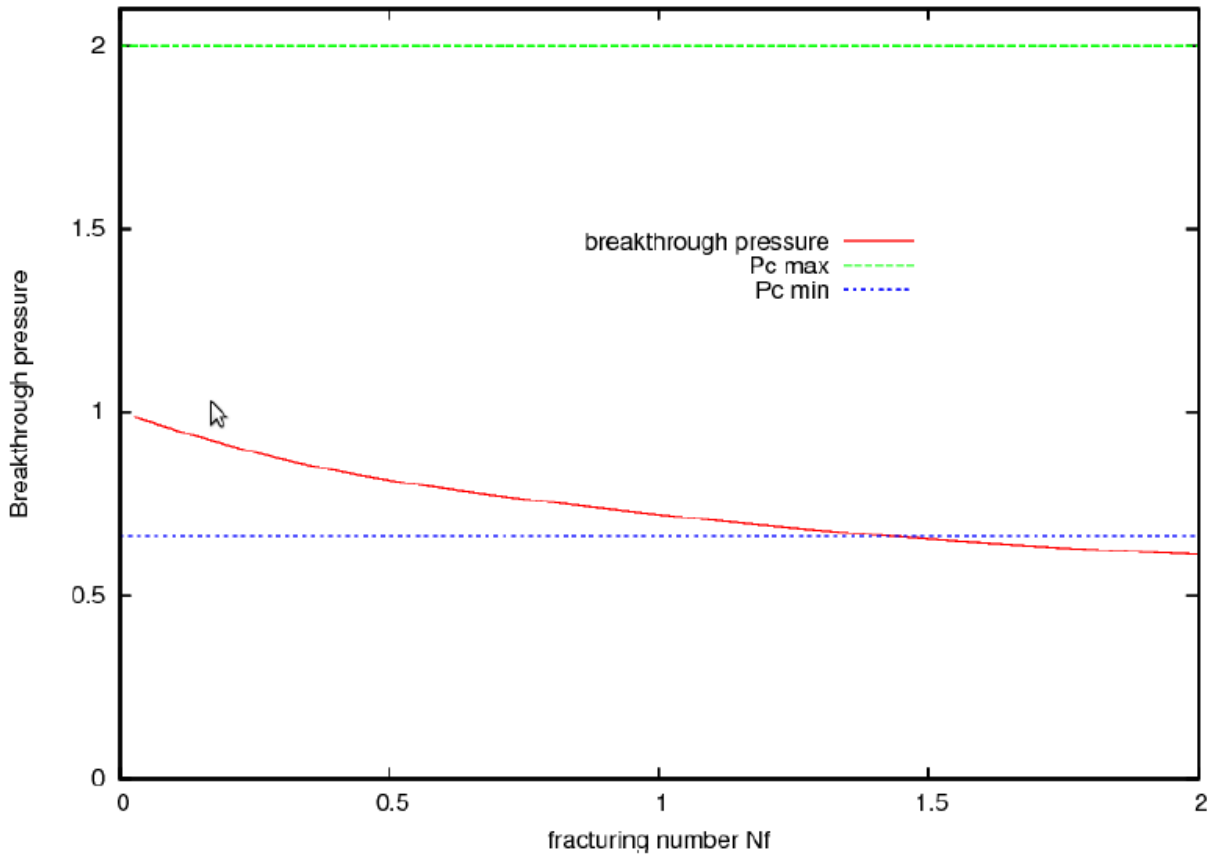


Figure 10**.** Evolution de la pression de percée en fonction du nombre de fracturation N_f. Moyenne d'ensemble sur 150 réalisations d'un réseau 100×100. Les pressions sont rendues adimensionnelles en prenant comme référence la pression de percée pour le réseau rigide. $P_{cmax} = \frac{2\gamma}{r_{t\min}}$ est la pression capillaire correspondant au seuil d'invasion des liens les plus étroits. $P_{cmin} = \frac{2\gamma}{r_{t\max}}$ est la pression capillaire correspondant au seuil d'invasion des liens les plus larges.

Un autre fait observé par le BGS, à savoir la déformation transversale de l'échantillon (il se dilate), est retrouvé qualitativement avec nos simulations. Les bords latéraux étant rigides dans nos simulations, nous nous intéressons à la contrainte exercée sur ces bords plutôt qu'à leur déformation. Si cette contrainte est positive, cela signifie que le milieu a tendance à se

dilater. Dans notre modèle la force exercée sur les nœuds du réseau de ressorts positionnés sur les bords latéraux est donné par,

$$F = K\,h \tag{6.1}$$

où h est la contraction du ressort à l'instant considéré (la contrainte correspondante est $\sigma \sim F/a^2$). La Figure 11 montre l'évolution de la force le long du bord latéral supérieur (le comportement est similaire le long du bord inférieur) à la percée pour $N_f = 1$

.

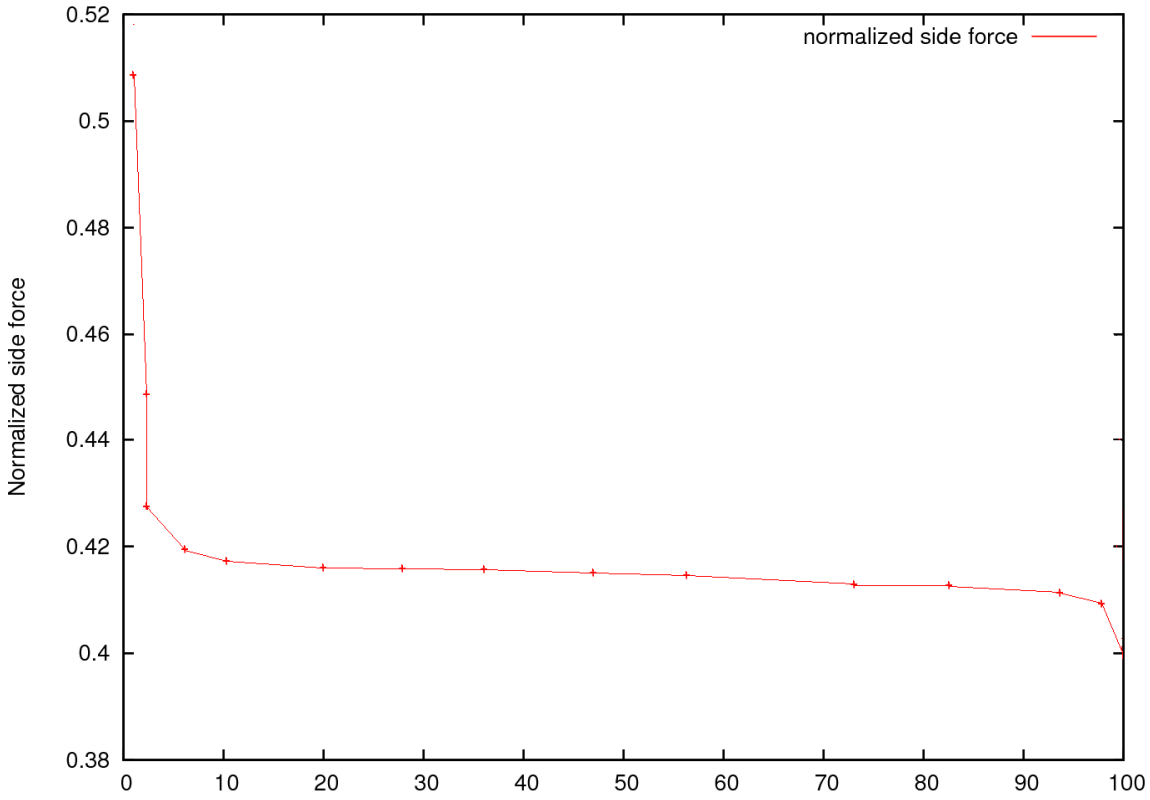


Figure 11. Variation de la force exercée le long du bord latéral supérieure à la percée pour $N_f = 1$. La force est normalisée par $K\,a$ où K est la constante des ressorts et a le pas du réseau. Calcul sur réseau 100 × 100. Moyenne sur 500 réalisations.

On trouve bien un effet dilatant (les ressorts attachés au bord considéré tendent à le pousser vers l'extérieur du domaine). Ceci va être illustré également dans la section qui suit.

6.2 Domaine carré avec bords latéraux libres et injection latérale et sortie localisées

Dans cette sous section, nous présentons des résultats de même nature que dans la sous-section précédente pour une configuration qui reprend certaines caractéristiques des manipes du BGS ; à savoir le fluide déplaçant n'est injecté qu'à travers la partie centrale de la face d'injection tandis que le fluide déplacé ne peut s'échapper que par la partie centrale de la face de sortie. Les bords correspondant du domaine sont supposés rigides. Contrairement à la

section précédente, on suppose en revanche que les bords latéraux sont libres. Comme pour la section précédente le déplacement est quasi-statique (pas d'effets visqueux pris en compte).

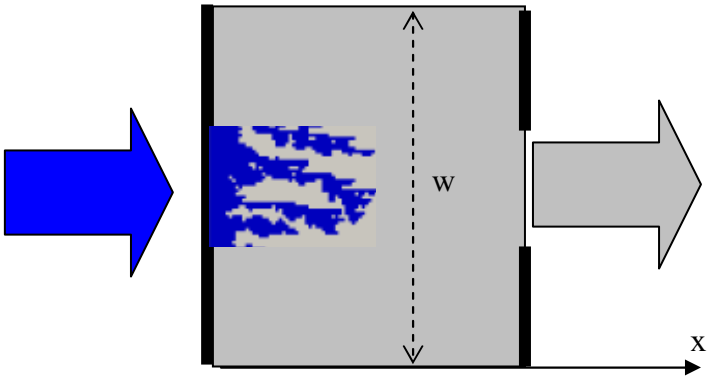


Figure 12. Injection quasi-statique dans un domaine carré avec bords d'entrée et de sortie rigides (trait noir épais), bords latéraux libres et injection et sortie localisées.

La Figure 13 montre l'évolution de la figure d'invasion obtenue lorsque on augmente le nombre de fracturation N_f . Comme précédemment, on observe une transition depuis la figure d'invasion correspondant à la percolation d'invasion en milieu rigide (faibles N_f) vers le régime de fracturation où les chemins préférentiels auto-générés tendent à s'aligner le long des directions principales du réseau (N_f voisins de 1 et au delà).

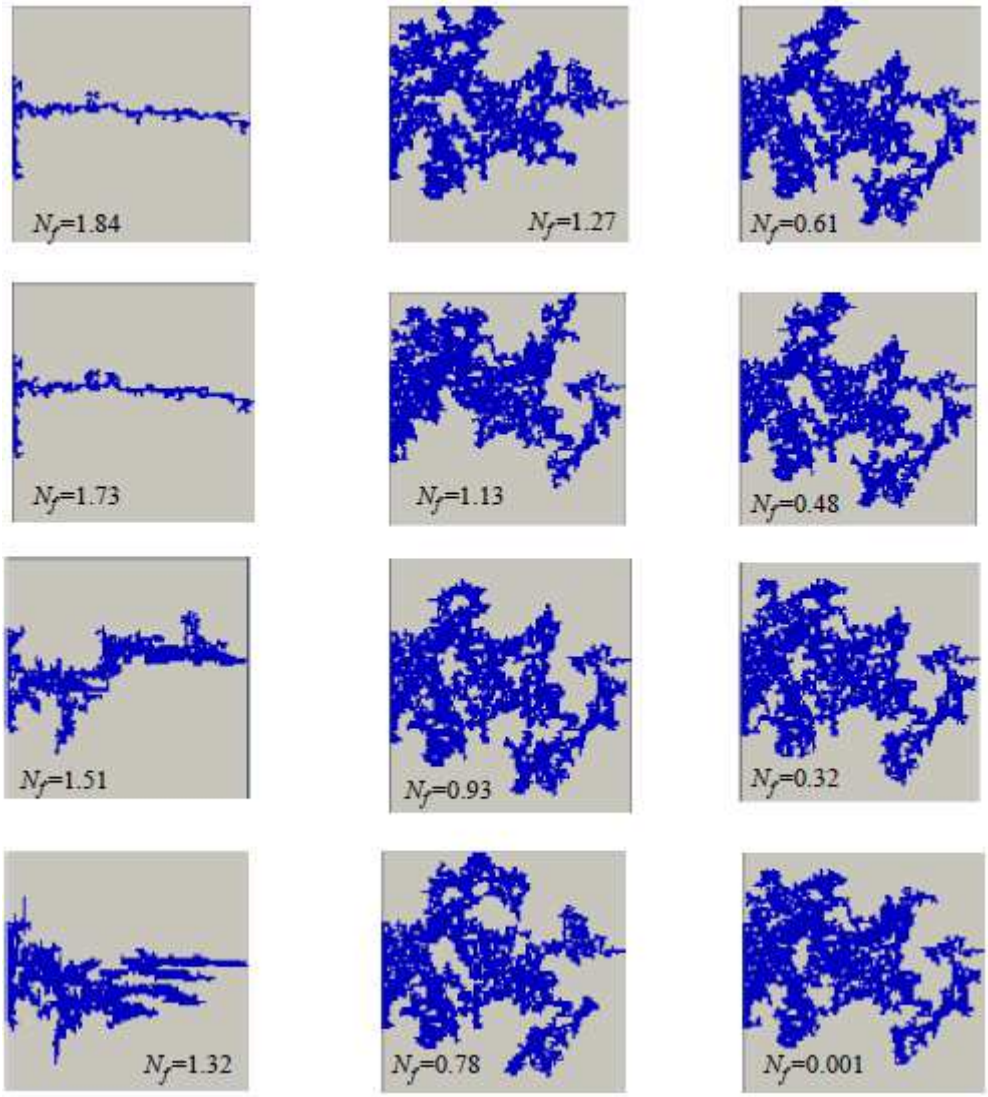


Figure 13. Transition FR – CF obtenue pour la configuration de la Figure 12 quand on fait varier le paramètre N_f . Simulation sur un réseau 100×100.

Comme montré sur la Figure 14, la pression de percée suit une évolution comparable à celle déjà observée. Elle tend à diminuer dans le régime de fracturation avec l'ouverture accrue des liens empruntés par la phase déplaçante. Le fait que les figures 10 et 14 soient pratiquement identiques n'est pas surprenant. Les conditions aux limites différentes entre la situation représentée sur la Figure 12 et celle de la Figure 8 ne changent pas en moyenne l'évolution des ouvertures des constrictions avec la variation du paramètre N_f.

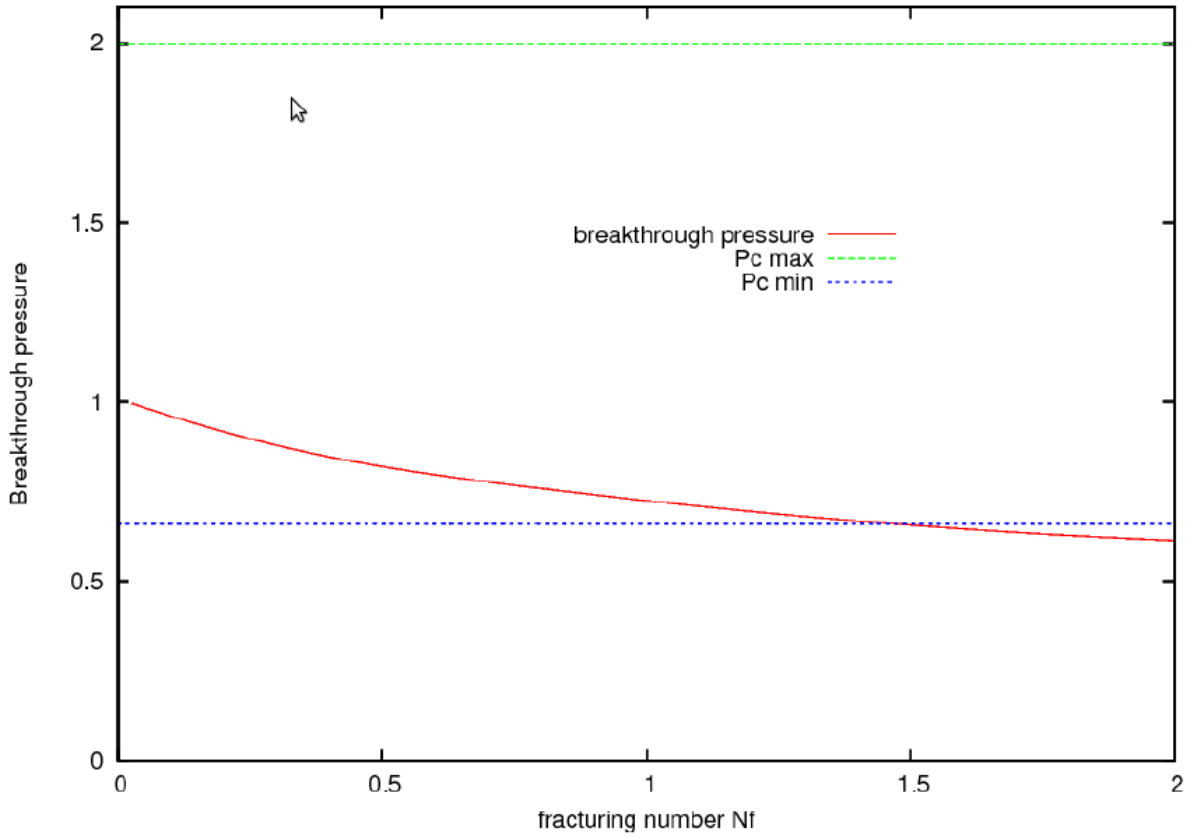


Figure 14**.** Evolution de la pression de percée en fonction du nombre de fracturation N_f. Moyenne d'ensemble sur 150 réalisations d'un réseau 100×100.. Les pressions sont rendues adimensionnelles en prenant comme référence la pression de percée pour le réseau rigide. Evolution de la pression de percée en fonction du nombre de fracturation N_f. $P_{cmax} = \frac{2\gamma}{r_{t\,\min}}$ est la pression capillaire correspondant au seuil d'invasion des liens les plus étroits. $P_{cmin} = \frac{2\gamma}{r_{t\,\max}}$ est la pression capillaire correspondant au seuil d'invasion des liens les plus larges.

La Figure 15 montre la variation de la distance $\Delta w = w(x)-w_0$ entre les bords le long du réseau (voir la Figure 12 pour la définition de *w)* à la percée (plus exactement juste avant la percée) ; w_0 est la largeur du réseau en absence de déformation. Comme discuté précédemment, cette figure illustre l'effet dilatant induit par le drainage en régime de fracturation.
De façon intéressante on note que l'effet de dilatance décroit en moyenne avec la distance depuis le bord d'injection, en accord qualitatif avec certains résultats du BGS (cf. Chapitre 8).

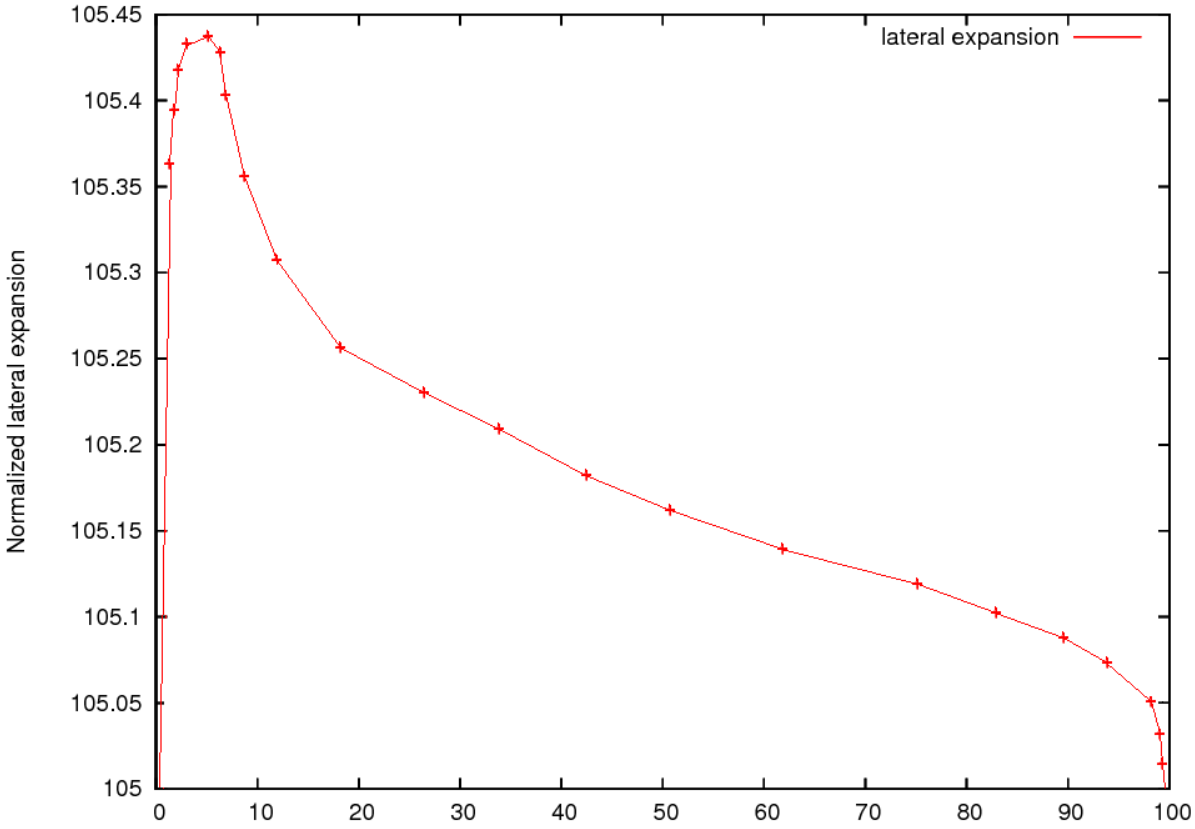
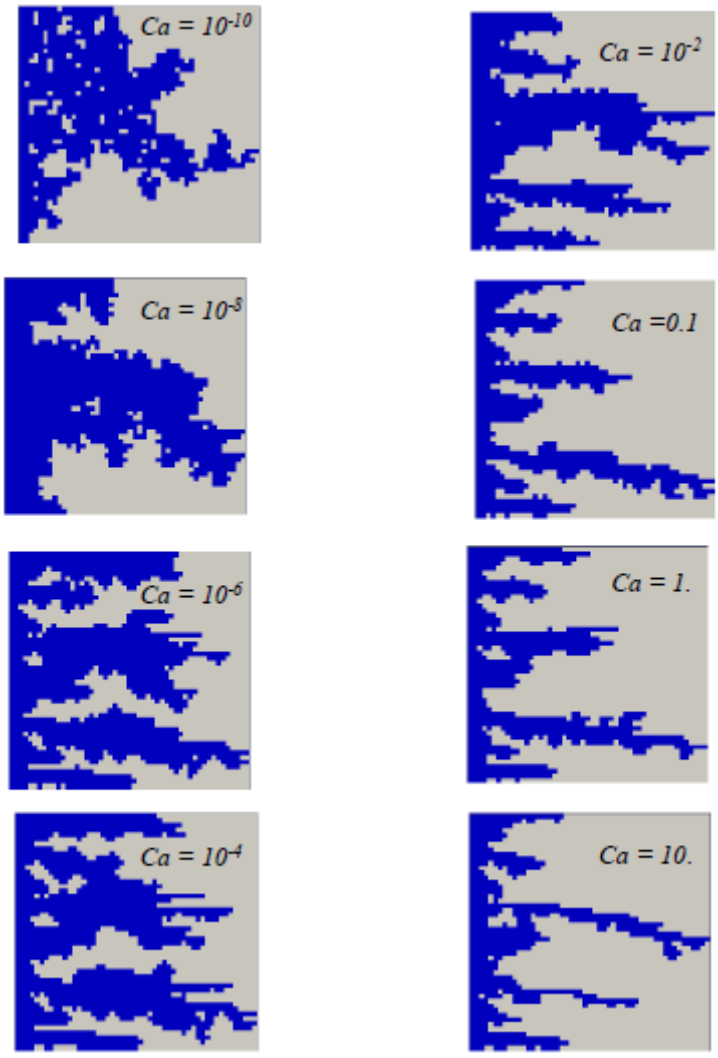


Figure 15. Variation de $\Delta w = w(x)-w_0$ (normalisée par a) le long du domaine poreux pour $N_f = 1$. Calcul sur réseau 100 × 100. Moyenne sur 500 réalisations.

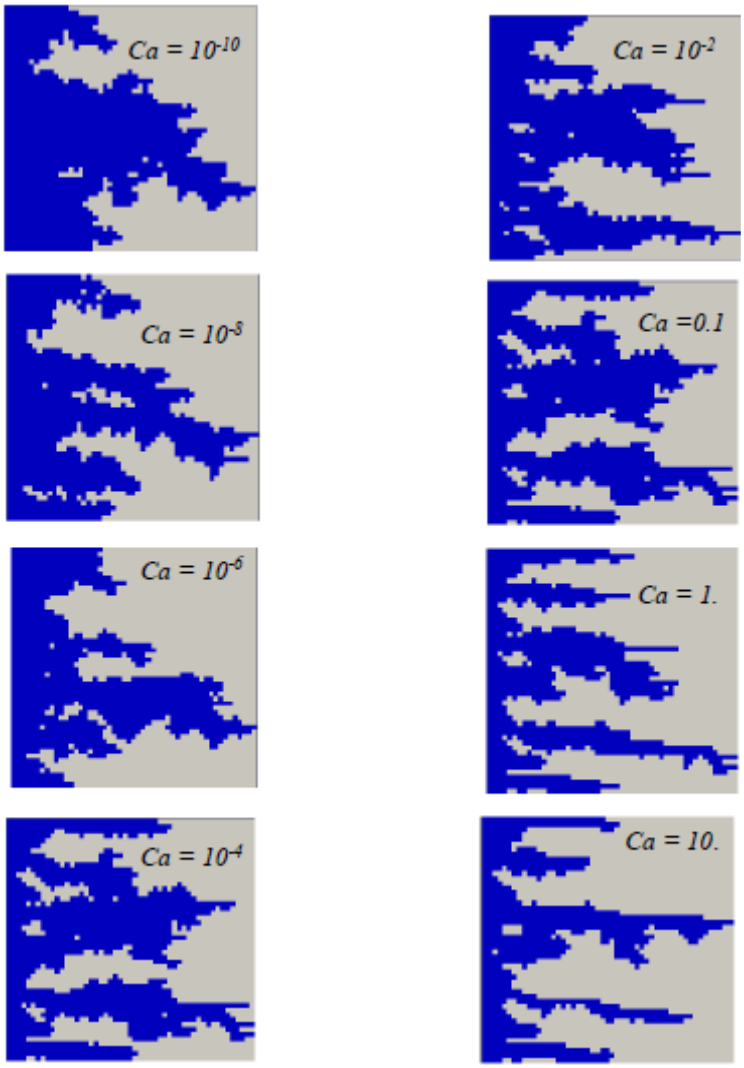
6.3 Régime de fracturation avec effets visqueux.

Comme discuté dans les chapitres précédents, le drainage hyperlent peut se voir comme un régime non complètement développé de percolation d'invasion en gradient stabilisant, c'est-à-dire un régime de transition entre le régime de digitations capillaires (CF) correspondant à de faibles nombres capillaires dans un domaine poreux pas trop grand et le régime de digitations visqueuses (VF) associés aux grands nombres capillaires. Ceci est pour le cas du milieu rigide. La transition CF – VF en milieu rigide est illustrée sur la Figure 16a pour la configuration d'écoulement de la Fig.8 tandis que les Figures 16b et 16c montrent l'évolution de la figure d'invasion pour deux cas avec déformations, $N_f = 1$ et $N_f = 2$ respectivement.



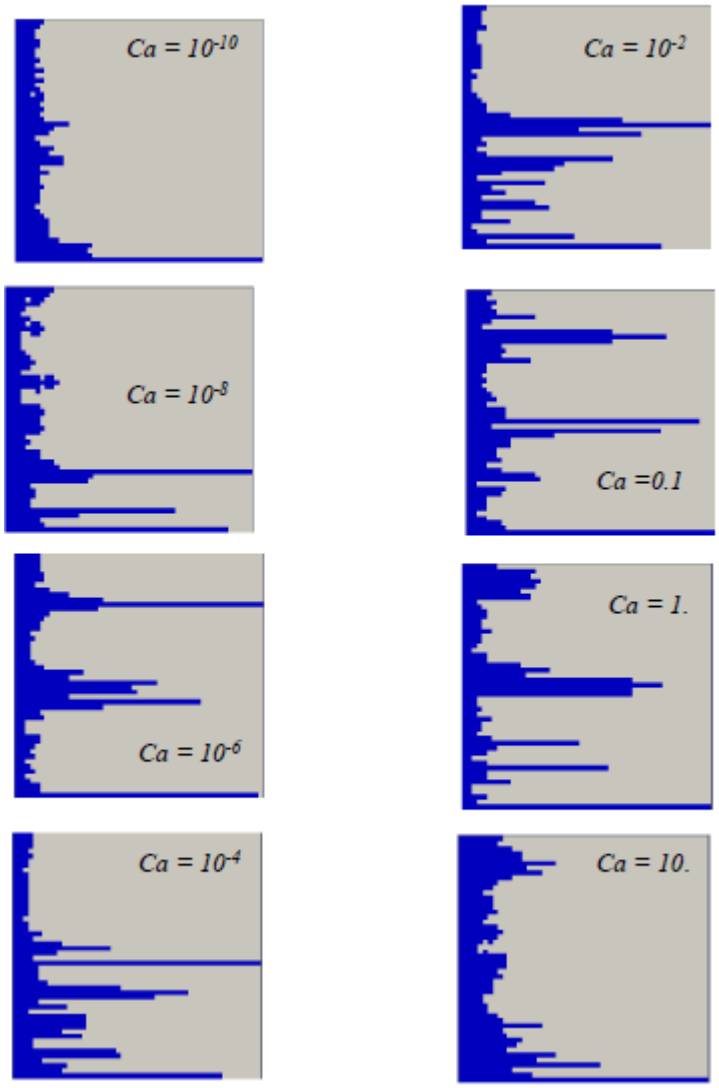
a) Milieu rigide

Figure 16a. Evolution de la figure d'invasion en fonction du nombre capillaire pour le cas du milieu rigide. Simulation sur un réseau 50 x 50. On retrouve une transition classique capillary fingering (CF) viscous fingering (VF).



b) $N_f = 1$

Figure 16b. Evolution de la figure d'invasion en fonction du nombre capillaire pour le cas du milieu déformable pour $N_f = 1$. Simulation sur un réseau 50 x 50.



c) $N_f = 2$.

Figure 16c. Evolution de la figure d'invasion en fonction du nombre capillaire pour le cas du milieu déformable pour $N_f = 2$. Simulation sur un réseau 50 x 50.

Comme le montre la Figure 16c, la figure d'invasion est profondément changée par rapport au cas du milieu rigide (cf Figure 16a) quelque soit le nombre capillaire, c'est-à-dire la compétition entre les effets visqueux et les effets capillaires, lorsque la déformation locale des liens est suffisamment marquée. En conclusion, les effets de couplage fluide structure deviennent dominants sur la figure d'invasion indépendamment du nombre capillaire pour des nombres de fracturation approchant 2.

7. Discussions - Conclusions

Le fait que les écoulements en milieu nanoporeux (compris comme toute cette thèse comme des milieux faisant intervenir des pores dans la gamme [1-100nm]), ne peuvent réellement s'étudier sans considération des effets de déformation de la microstructure est une idée très largement admise. Les expériences du BGS que nous avons citées apportent des indications de nature macroscopique, c'est-à-dire à l'échelle de l'échantillon, de ces effets. En revanche,

les difficultés d'observation font qu'il reste complètement à montrer ce qu'il se passe vraiment à l'échelle des pores.
Le modèle réseau que nous avons utilisé dans ce chapitre, bien que rudimentaire en ce qui concerne la mécanique de la déformation, est cohérent avec l'idée que les phénomènes de couplage fluide-structure ont d'autant plus de chance de se produire, pour des propriétés mécaniques données, que le milieu fait intervenir des pores de plus petites dimensions. Ceci est bien sur en lien direct avec les valeurs de plusieurs MPa que peut atteindre la pression capillaire dans les nanoporeux.
Les simulations présentées dans ce chapitre indiquent un changement tout à fait notable de la figure d'invasion lorsque la modification des ouvertures de lien due à la déformation n'est pas négligeable. On atteint ainsi un régime de « fracturation », qui rappelle en fait plutôt le régime avec dilatation réversible présenté dans Marshall et al. (2005), cf. Figure 17.

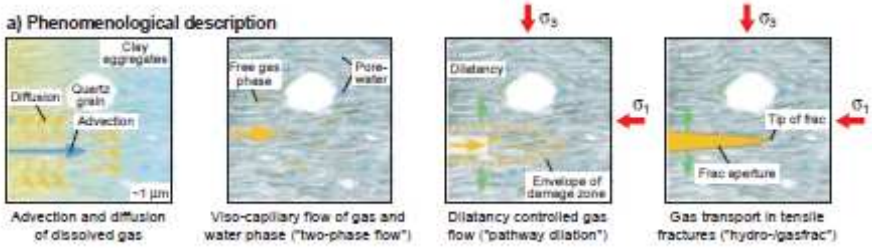


Figure 17 (tirée de Marshall et al. (2005)). Différents régimes d'écoulements dans l'opalinus, roche « voisine » de l'argilite.

En conformité avec le vocabulaire utilisé par Marshall et al. (2005), il semble ainsi plus approprié d'appeler régime dilatant (ou de dilatance), le régime que nous avons appelé jusqu'ici régime de fracturation (FR) à la suite de Holtzman et Juanes (2010). Le phénomène de dilatance est donc défini comme la conséquence du développement d'une microfissuration pénétrante dans la roche, avec une augmentation concomitante d'espace vide. D'après notre modèle, on la comprend comme l'augmentation du volume relative aux changements élastiques dus à l'augmentation du volume des pores (des liens) pendant la déformation.
Compte tenu de l'impact majeur de la dilatance sur la figure d'invasion (cf. Fig.16), ce phénomène est de nature, suivant son importance, à remettre en question les résultats des chapitres précédents sur le drainage hyperlent. En d'autres termes, tout le travail visant à montrer que la figure d'invasion est compatible avec le modèle continu classique décrivant les écoulements diphasiques à l'échelle de Darcy est en principe à refaire pour la situation où le paramètre de dilatance N_f est O(1) ou plus grand !
Avant de se lancer dans une opération de cette envergure, il est évidemment intéressant mais certainement très naïf d'évaluer N_f pour l'argilite. Les propriétés mécaniques pour l'argilite sont données dans Armand et al. (2013) avec E (module d'Young) $\approx$ 4000 MPa, ν (coefficient de Poisson) =0.29. La contrainte de confinement σ_0 est de l'ordre de 10 MPa, ce qui permet d'évaluer ε_0 via la formule $\sigma_0 \approx E^* \varepsilon_0^{3/2}$). En prenant λ =1. et a = 10 nm, l'application de l'Eq.(5.8) conduit à $N_f \approx 0.02$. L'application brutale de l'Eq. (5.8) ne va donc pas dans le sens d'un effet significatif de la déformation sur la figure d'invasion. Il est clair cependant, comme cela est discuté un peu plus en détail au chapitre 9, que la microstructure de l'argilite est difficilement assimilable à un réseau de grains faiblement désordonné. Le fait qu'un effet de dilatance notable lors de l'injection soit observée dans les expériences du BGS parait une indication plus pertinente que l'application brutale de l'Eq.(5.8).

A la suite d'autres travaux (BGS, Marschall et al. (2005),..), les simulations présentées dans ce chapitre suggère ainsi qu'il est important de poursuivre les investigations sur les possibles

couplages entre écoulements et déformations mécaniques dans l'argilite. En prolongement immédiat à notre travail, il serait intéressant de développer une version 3D du code de calcul utilisé dans ce chapitre. Il n'est en effet pas complètement évident que la valeur de N_f marquant la transition vers le régime dilatant soit identique au cas 2D.
A plus long terme, une option serait de développer un modèle plus représentatif de l'argilite comme cela est brièvement discuté au chapitre 9.

Références

G. Armand, F. Leveau, C. Nussbaum, R. de La Vaissiere, A. Noiret, D. Jaeggi, P. Landrein , C. Righini, Geometry and Properties of the Excavation-Induced Fractures at the Meuse/Haute-Marne URL Drifts, Rock Mech Rock Eng. DOI 10.1007/s00603-012-0339-6 (2013)

J.E. Bolander, S. Saito, Fracture analyses using spring networks with random geometry, Engineering Fracture Mechanics 61 (1998) 569-591

Gerard P., J. Harrington, R. Charlier, F. Collin, Modelling of localised gas preferential pathways in claystone, International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences, 67, 104–114, (2014).

Hamrock, B.J. and Dowson, D. Ball bearing lubrification – The elastohydrodynamics of elliptical contacts, Wiley –Interscience, New-York, (1981).

Holtzman R. and R. Juanes (2010) Crossover from fingering to fracturing in deformable disordered media, Phys. Rev. E 82, 046305.

Lenormand R., Touboul E., Zarcone C. (1988) Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J.Fluid Mech.* 189: 165-187.

Marschall, P., Horseman, S.,Gimmi, T. (2005). Characterisation of gas transport properties of the Opalinus Clay, a potential host rock formation for radioactive waste disposal. *Oil &Gas Sci. Technol. – Rev. IFP* 60 (1) : 121-139.

M. Ostoja-Starzewski, P.Y. Sheng, K. Alzebdeh, Spring network models in elasticity and fracture of composites and polycrystals, Computational Materials Science 7 (1996) 82-93

R.Villey, E. Martinot, C.Cottin-Bizonne, M. Phaner-Goutorbe, L. Léger, F. Restagno and E.Charlaix, Effect of Surface Elasticity on the Rheology of Nanometric Liquid , Physical Review Letters 111, 215701 (2013)

PARTIE III : DRAINAGE HYPERLENT ET ARGILITE

CHAPITRE 8

DRAINAGE HYPERLENT ET ARGILITE

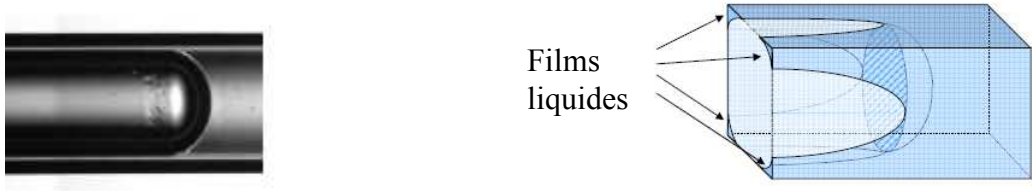
1.Introduction

Une question essentielle est évidemment de savoir si les résultats des chapitres précédents peuvent s'appliquer au cas de l'argilite. On peut distinguer au moins deux aspects. Le premier concerne la physique du déplacement à l'échelle des pores. Le second concerne la représentation de l'argilite par des modèles de réseau de pores. Comme on va le voir ces deux aspects peuvent être considérés en réalité comme des domaines de recherche très largement ouverts.

2. Physique du déplacement à l'échelle des pores

2.1 Eléments bibliographiques

La physique du déplacement à l'échelle du pore considérée dans les chapitres précédents correspond à celle classiquement observée dans des micromodèles, e.g. Lenormand et al. (1988). Dans le cas du drainage, le mécanisme de déplacement à l'échelle des pores est essentiellement le déplacement piston correspondant à l'envahissement d'une constriction et du pore auquel elle donne accès lorsque le seuil d'invasion capillaire du lien est atteint. Un élément additionnel jouant un rôle généralement secondaire en drainage est la possible présence de films liquides de coins dans le cas de pores ou passages (constrictions) de section polygonale (cf Figure 1).



a) déplacement piston dans un tube cylindrique b) films liquides de coin

Figure 1. Déplacement piston en tube cylindrique et films de coin dans les canaux de section polygonale.

Ainsi dans ce dernier cas, le fluide non-mouillant occupe après le déplacement la partie centrale des pores alors que le fluide mouillant reste présent dans les coins et rugosités de l'espace des pores. Il s'agit ici de films capillaires que l'on peut distinguer des films d'épaisseurs nanométriques (films adsorbés) que l'on peut analyser à partir du concept de pression de disjonction.

Dans les expériences typiques de drainage en milieux modèles, Lenormand et al. (1988), la phase liquide mouillante peut se fragmenter (en restant éventuellement interconnectée par les films liquides) et former de nombreux amas (Figure 2). En revanche la phase non-mouillante forme typiquement un seul amas (phase en blanc sur la Figure 2). Dans les expériences de Lenormand et al. (1988), l'amas de fluide non-mouillant ne se fragmente pas au cours de du déplacement.

La fragmentation peut cependant se produire dans certaines circonstances et à diverses échelles. Des éléments sur ce point sont présentés dans la section qui suit.

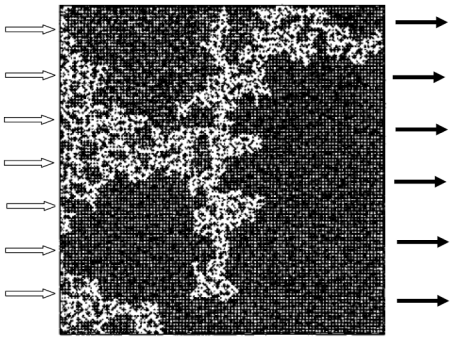


Figure 2. Drainage quasi-statique dans un milieu poreux modèle bidimensionnel.

2.2 Fragmentation de la phase gazeuse lors du drainage

2.2.1 Fragmentation à l'échelle des pores

Comme illustré sur la Figure 3, l'envahissement d'un pore par le gaz peut se faire par fragmentation, et éventuellement même via une série de fragmentations successives de la phase gazeuse. Deux ingrédients sont nécessaires : 1) la présence de films liquides capillaires dans les coins (cf Figure 1b), 2) un contraste suffisamment marqué entre la taille du pore et la taille de la constriction lui donnant accès. Comme illustré sur la figure 3, la différence de pression à travers le film entre l'intérieur du pore et la constriction (2ème schéma en partant de la gauche sur la Figure 3) est alors suffisant pour faire grossir le film au niveau de la constriction jusqu'à former un pont liquide, ce qui conduit à la fragmentation de la phase gazeuse au niveau de la constriction.

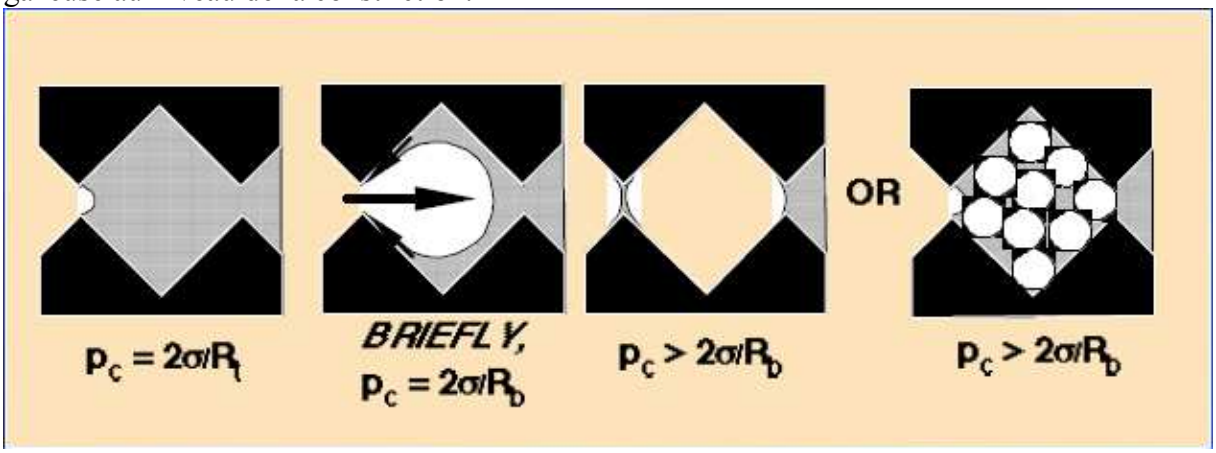


Figure 3. Mécanisme de fragmentation à l'échelle des pores (d'après Rossen (2000))

Ce mécanisme de fragmentation très local ne change toutefois pas a priori fondamentalement le scénario d'invasion (la figure d'invasion) et ses conséquences macroscopiques sont a priori assez faibles. Les situations de fragmentation à plus grande échelle sont donc potentiellement plus intéressantes.

2.2.2 Fragmentation à l'échelle du réseau de pores

La fragmentation de la phase gazeuse lors du drainage a été observée à l'échelle du réseau de pores, Frette et al. (1992) ainsi qu'en situation de séchage Laurindo et Prat (1996). On notera qu'ici encore la présence de films liquides, si elle n'est pas totalement indispensable facilite la fragmentation (mécanisme de grossissement des films lors des variations de pression)

Une autre situation de fragmentation peut-être plus intéressante dans le cadre du présent chapitre est tirée du travail de Ouerfelli (2013). L'expérience est schématisée sur la Figure 4.

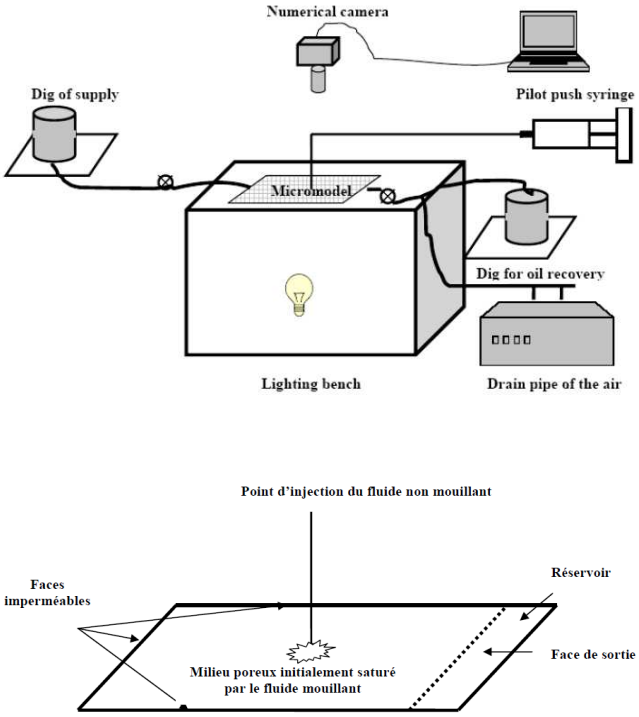


Figure 4. Schéma du dispositif expérimental utilisé par Ouerfelli (2013).

Un micromodèle transparent bidimensionnel avec des tailles de canaux de quelques centaines de microns est initialement saturé par un liquide mouillant. De l'air est injecté au centre du micromodèle et déplace le liquide. Sur les quatre cotés du micromodèle, trois sont fermés et un est ouvert sur un réservoir de liquide. Il est important de noter que ce réservoir est un canal dont la largeur et la profondeur sont nettement plus grandes (quelques millimètres) que le diamètre hydraulique des canaux du micromodèle.

Comme illustré sur la Figure 5, il n'y a pas, pour un débit d'injection de 10 ml/h, de fragmentation de la phase gazeuse avant la percée. En revanche, une fois la percée atteinte, la poursuite de l'invasion se fait par succession périodique de fragmentations de la phase gazeuse au point de percée.

Ici encore on se trouve dans une situation où la pression capillaire dans le réservoir de sortie est plus faible (grosse bulle visible sur la gauche des images de la Figure 5) que la pression capillaire moyenne nécessaire pour envahir les canaux du micromodèle. En d'autres termes, l'équivalent de la constriction de la figure 3 est ici l'interface entre le poreux grossier (= le canal-réservoir de sortie) et le poreux fin (le micromodèle). La pression dans le liquide est approximativement constante et uniforme dans l'expérience et égale à la pression atmosphèrique. Si on considère par simplicité le cas d'un débit d'injection très faible la pression dans le gaz est avant la percée de l'ordre de

$$P_{gav} \approx \frac{4\gamma}{d} \quad (1)$$

où γ est la tension de surface et *d* le diamètre hydraulique moyen des canaux dans le réseau. On notera que le liquide est parfaitement mouillant et que par simplicité la pression dans le liquide est prise égale à zéro.
A la percée, la pression dans le gaz décroit brutalement pour atteindre une valeur de l'ordre de

$$P_{gap} \approx \gamma\left(\frac{2}{d_{sortie}} + \frac{1}{R_{bulle}}\right) \quad (2)$$

où d_{sortie} est l'épaisseur du canal de sortie et R_{bulle} le rayon dans le plan de la bulle visible dans le canal de sortie sur les photos de la Figure 5. Il est clair que

$$P_{gap} << P_{gav} \quad (3)$$

Cette chute de pression provoque par imbibition locale la reinvasion de certains canaux du milieu fin par le liquide, ce qui entraine la fragmentation de la poche de gaz au voisinage de la sortie du milieu fin. On a donc ici un mécanisme de snap-off non plus à l'échelle d'un pore comme illustré sur la Figure 3 mais à l'échelle cette fois d'un système poreux fin / poreux grossier en série, le milieu grossier étant réduit ici à un canal de diamètre hydraulique plus grand que les diamètres hydrauliques des canaux formant le milieu poreux dans lequel est injecté l'air.
Comme on peut le voir sur la Figure 5, la figure d'invasion est peu affectée par cette succession de fragmentation à l'interface poreux fin / poreux grossier. A noter que ce scénario est très répétitif avec plusieurs percée / fragmentation successives sans modification notable de la figure d'invasion. En d'autres termes, un modèle de réseau classique (= ne prenant pas en compte la fragmentation) prédirait ici très convenablement la figure d'invasion.

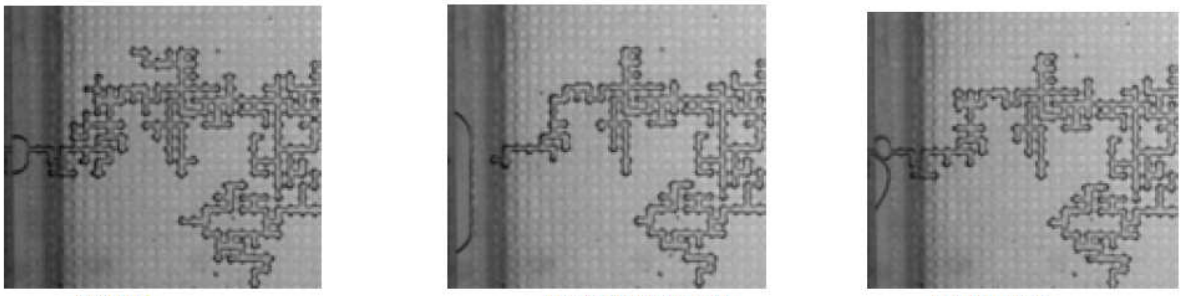


Figure 5. Figures d'invasion successives à la percée (débit d'injection de 10 ml/h). La phase gazeuse est en gris plus foncé. (zoom près de l'interface milieu fin – milieu grossier). Contrairement au schéma de la Figure 4, le réservoir de sortie est à gauche (bulle bien visible). Il s'agit ici d'un zoom de la figure d'invasion au voisinage du canal de sortie. Bthi désigne la ième percée.

En revanche, si on considère l'évolution sur un plus grand nombre de cycles percée-fragmentation, on peut observer des changements dans la figure d'invasion (Figure 6).
On peut noter par exemple sur la Figure 6, un déplacement du point de percée et aussi des modifications dans la figure d'invasion. Ces changements sont attribués à la modification de

la condition de sortie liée au grossissement de la bulle de gaz dans le canal de sortie. Ce point mériterait cependant d'être creusé.

Il est à noter aussi que ce phénomène de fragmentation répétitive est observé pour des débits suffisamment faibles. En revanche, pour des débits d'injection suffisamment élevés, le passage du gaz devient continu (l'idée est que pour un débit suffisamment élevé, on maintient le niveau de pression partout dans la phase gazeuse a des valeurs égales ou supérieures à P_{gav}, Eq.(1).

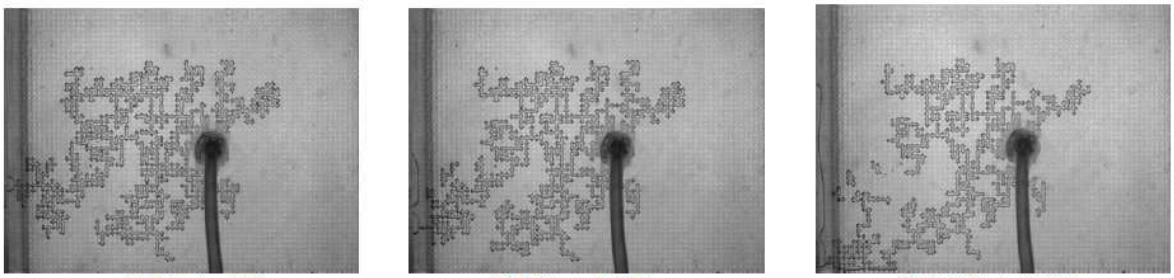


Figure 6. Figures successives d'invasion à la percée pour un grand nombre de cycles (débit d'injection de 10 ml/h). La phase gazeuse est en gris plus foncé. Bth160 par exemple désigne la 160ème percée.

En résumé sur cette expérience, le caractère intermittent du passage du gaz et la modification du chemin d'écoulement du gaz est ici entièrement dû à la présence d'un milieu plus grossier en sortie. En d'autres termes, on ne saurait en aucun cas conclure de cette expérience que l'invasion d'un milieu semi-infini par le gaz s'accompagne de phénomènes d'intermittence ou de modification du chemin d'écoulement. Ceci est d'autant plus vrai que l'observation de l'invasion avant la première percée ne montre aucunement de tels phénomènes mais un processus d'invasion tout à fait classique.

2.3 Cas de l'argilite (expériences du BGS)

Si les expériences sur micromodèle peuvent être instructives, il est bien évident que ce type d'expériences, ne serait-ce que par la taille des canaux mis en jeu, ne saurait répondre à toutes les interrogations concernant la microphysique des écoulements diphasiques dans l'argilite. Une difficulté est qu'il est à l'heure actuelle impossible d'observer in situ à l'échelle des pores le déplacement de l'eau par le gaz dans l'argilite ou encore la figure d'invasion comme on peut le faire avec les micromodèles. Néanmoins des informations intéressantes ou à tout le moins stimulantes peuvent être obtenues à partir d'expériences macroscopiques en laboratoire avec le matériau « réel » (les guillemets signifient qu'il est réalité très difficile d'extraire des échantillons d'argilite du milieu naturel et de les manipuler au laboratoire sans les modifier).

Nous présentons ici et discutons brièvement quelques résultats obtenus par le British Geological Survey (BGS) (Harrington et al. 2013).

Le principe de l'expérience est schématisé sur la Figure 7 et quelques détails sur le dispositif expérimental sont montrés sur la Figure 8.



Figure 7**.** Principe de l'expérience du BGS

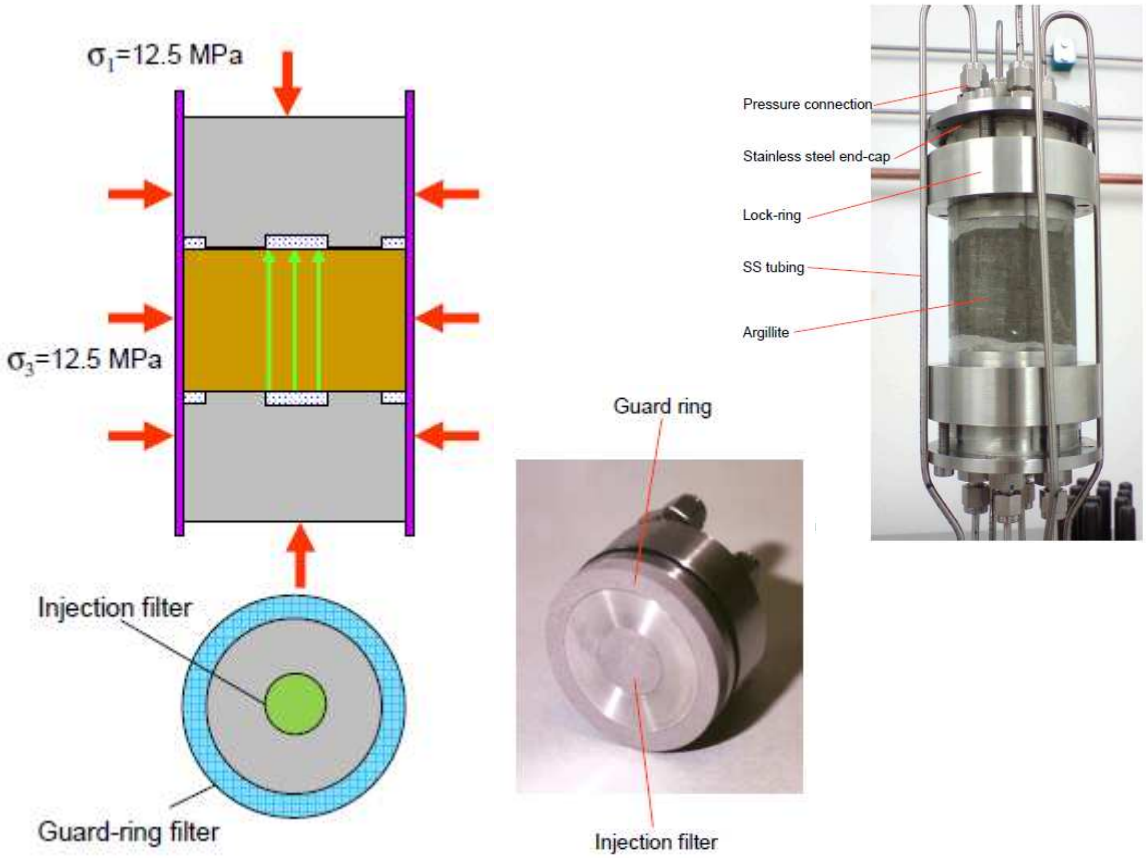


Figure 8. Schéma du dispositif expérimental du BGS.

Il s'agit d'une expérience d'injection de gaz par paliers de pression. L'injection du gaz se fait par le bas de l'échantillon à travers un filtre poreux (un milieu poreux plus grossier). L'échantillon d'argilite (h = 82.45 mm et d =55.85 mm) est placé dans une cellule puis saturé en eau. Il est à noter qu'une pression de confinement de 12.5 MPa est imposée de façon isotrope sur toutes les faces de l'échantillon. L'échantillon est en contact à l'aval avec de l'eau maintenue à une pression de 4.5 MPa pendant tout l'essai. Cette pression correspond donc à la pression d'eau imposée en sortie d'échantillon.

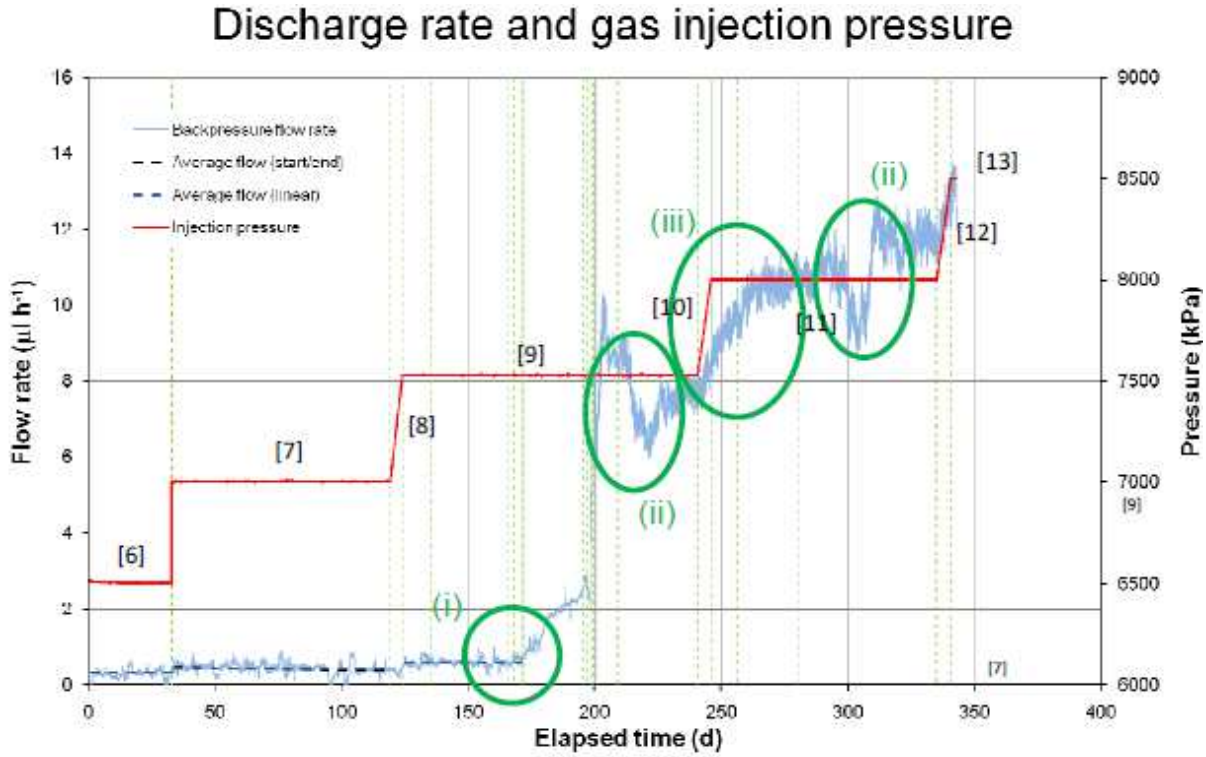


Figure 9. Exemple de résultat du BGS. Evolution du débit de gaz en sortie et évolution de la pression en entrée d'échantillon (tiré de Harrigton et al. (2013))

Un exemple de résultat de cette expérimentation est montré sur la Figure 9. On peut noter tout d'abord la durée de l'expérience sur plus d'une année. Plusieurs points peuvent être notés en faisant référence aux zones (i), (ii), (iii) entourées en vert sur la figure

(i) On remarque que l'augmentation du débit en sortie est décalée de plusieurs dizaines de jours par rapport à la dernière augmentation de pression. Cette augmentation du débit est interprétée comme le début du passage du gaz à travers l'échantillon.
(ii) On note que bien que la pression soit maintenue constante en aval et en amont de l'échantillon, le débit de gaz chute pendant plusieurs jours avant de remonter.
(iii) Ici encore, on note un décalage entre l'augmentation de pression et l'augmentation du débit.

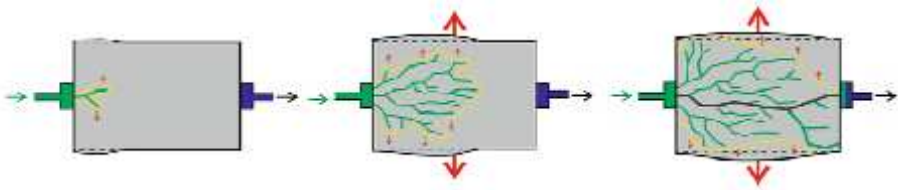


Figure 10. L'injection s'accompagne de variation de volume de l'échantillon d'argilite (tiré de (Harrigton et al. 2013))

Comme schématisé sur la Figure 10, l'injection de gaz s'accompagne d'un changement de volume de l'échantillon, celui-ci ayant tendance à augmenter (l'expérience est instrumentée de façon à mesurer le déplacement latéral des parois limitant l'échantillon).

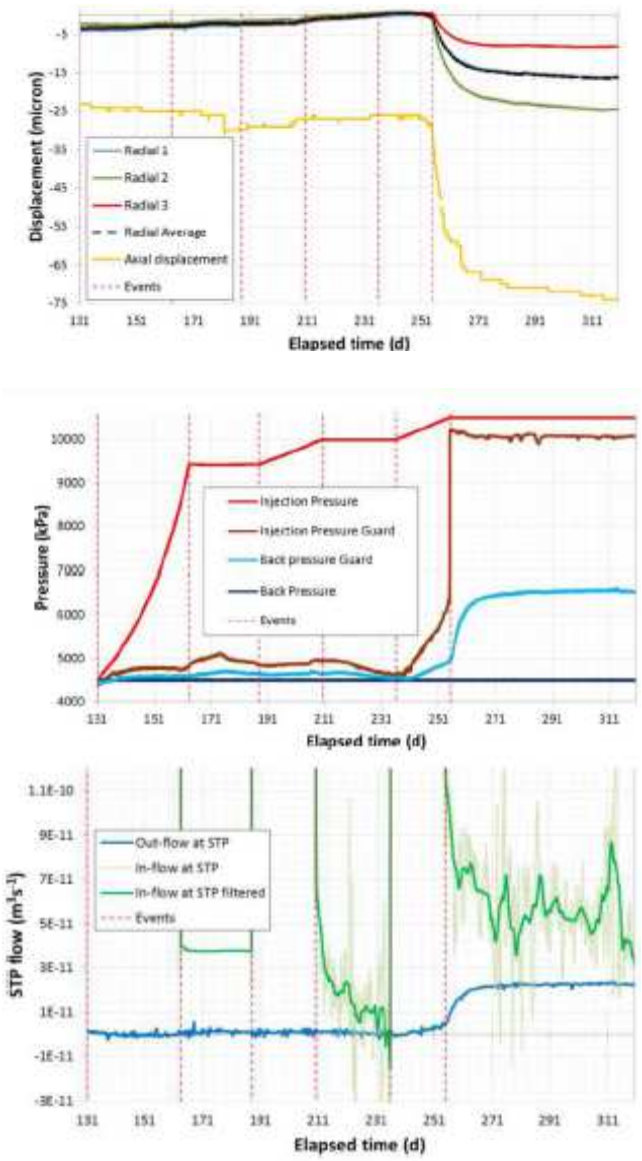


Figure 11. Détails sur la variation de volume (figure du haut) et de l'évolution des pressions (figure du milieu) et des débits (figure du bas) lors d'une expérience du BGS avec mesure du changement de volume de l'échantillon. (Données du BGS)

Des détails sur l'expérience où le changement de volume est mesuré sont présentés sur la Figure 11. Il est intéressant de noter que la variation la plus notable du volume (caractérisé par la mesure des déplacements montrés sur la Figure 11 (figure du haut) se produit au bout de 251 jours, ce qui coïncide fort bien avec la percée (voir par exemple courbe bleue de la figure du bas sur la Figure 11).

Les auteurs interprètent ces résultats comme le signe d'une instabilité, spatiale et temporelle, des chemins préférentiels de passage de gaz. Ainsi on aurait une réorganisation répétitive ? fréquente ? des chemins d'écoulement du gaz à travers l'échantillon. Des expériences d'injection de gaz par paliers de pression à travers des échantillons d'argilite ont été également développées au laboratoire LML de l'Ecole Centrale de Lilles, Davy et Skoczylas (2013). D'après ces auteurs, on peut distinguer deux scenarios pour le passage de gaz. Tout d'abord un scénario avec passage discontinu du gaz à travers l'échantillon puis un passage continu lorsqu'on augmente suffisamment la pression.

Si on met ces observations en relation avec les expériences sur micromodèle de la section précédente, il n'est pas évident de conclure que l'instabilité présumée des chemins d'écoulement du gaz soit intrinsèque à la physique des déplacements au sein de l'argilite. Il n'est en effet pas à exclure que ces instabilités (passage intermittent, chute du débit en sortie, etc) soit une conséquence du montage expérimental (milieu fin débouchant sur un milieu grossier ou un domaine liquide). En d'autres termes, on ne peut pas conclure de ce type d'expérimentation qu'une phénoménologie similaire à celle observée dans ces expériences existe lors d'une injection dans un massif d'argilite semi-infini.

La mise en évidence du changement de volume de l'échantillon (expérience du BGS) est cependant à noter. Cependant là encore le changement de volume est surtout spectaculaire à partir de la percée (cf Figure 11) si bien qu'il est ici aussi difficile de conclure qu'un changement de volume aussi marqué se produit également dans un massif semi-infini. Néanmoins, ceci suggère un possible couplage « fluide-structure » à l'échelle du réseau de pores. Comme discuté précédemment dans ce manuscrit (cf. Chapitre 7), la déformation de la microstructure due à l'écoulement peut modifier complètement la figure d'invasion si cette déformation est suffisante. En revanche, rien n'indique dans la littérature qu'un tel couplage peut favoriser l'instabilité (au sens du BGS) des chemins d'écoulements du gaz. De ce point de vue, il serait intéressant d'effectuer des expériences sur micromodèle analogues à celles présentées § 2.2.2 mais avec un micromodèle déformable.

Enfin en relation avec la problématique du drainage hyperlent, il est intéressant d'estimer un ordre de grandeur du nombre capillaire dans l'expérience du BGS. D'après la Figure 8, le débit est de l'ordre de 10 µl /h à la percée. En prenant comme viscosité la viscosité dynamique de l'air ($\mu \approx 1.8\ 10^{-5}$ Pl), en supposant l'eau parfaitement mouillante et en prenant comme section de passage la section de l'échantillon, on obtient $Ca \approx 30\ 10^{-14}$, suffisamment petit donc pour être dans la situation du drainage hyperlent.

2.3 Deux résultats de nanofluidique

La nanofluidique est l'étude des écoulements dans des systèmes modèles dont au moins une dimension caractéristique est dans la gamme [1nm – 100nm]. L'intérêt des dispositifs nanofluidique est double. Ils permettent d'observer directement (sous microscope) les phases en écoulement et ils font intervenir au moins une dimension « nanométrique », ce qui est évidemment intéressant en lien avec les poreux faisant intervenir des tailles de pores dans la gamme [1nm – 100nm]. Pour l'instant, seuls des dispositifs très simples formés par des séries de fentes en parallèle ont été utilisés pour l'étude des écoulements diphasiques.
Les caractéristiques géométriques de telles fentes sont données sur la Figure 12.



Figure 12. Fente élémentaire des dispositifs microfluidiques

Imbibition spontanée (invasion capillaire)
Des expériences d'imbibition spontanée ont été effectuées avec ce type de dispositif, Chauvet et al. (2012). Le principe de l'expérience est schématisé sur la Figure 13.

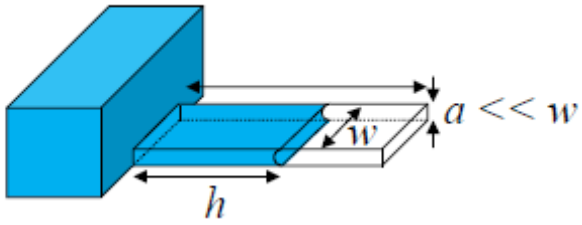


Figure 13.Schéma de l'expérience d'imbibition spontanée en nanofente.

L'expérience montre que l'invasion est plus lente que ce l'on peut prédire à partir de la loi classique de Washburn et que, comme cela est illustré sur la Figure 14, le confinement a pour conséquence la formation de bulles.

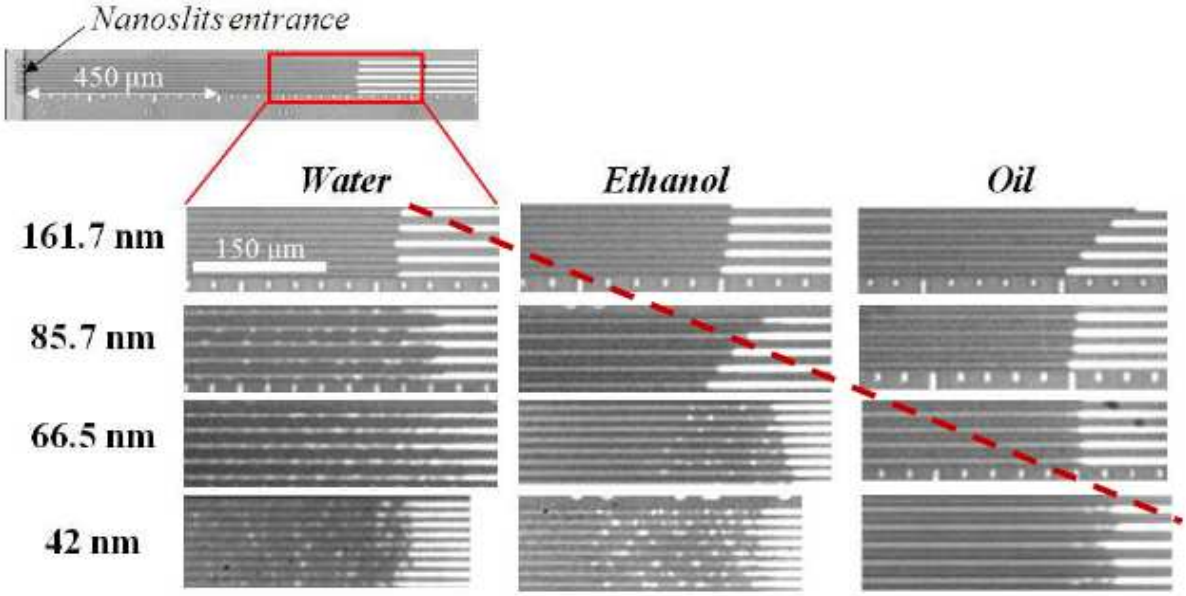
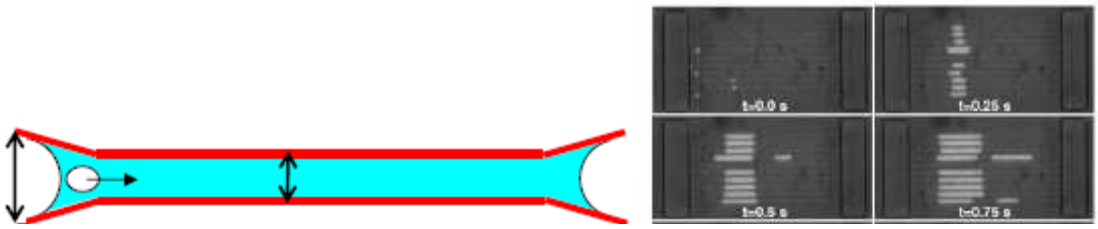


Figure 14. Imbibition en nanofentes avec trois liquides différents. Pour un confinement suffisant qui dépend du liquide, l'invasion est caractérisée par la formation de bulles de gaz.

Expliquer la formation de ces bulles, qui est donc une conséquence du confinement puisqu'elle n'est pas observée pour des systèmes microniques, est un sujet de recherche.

Quoiqu'il en soit, il est intéressant de noter que le confinement conduit à une physique du déplacement différente de celle qui est observée dans les systèmes microniques.

Des observations similaires ont été faites par Duan et al. (2012) lors d'expériences d'évaporation en nanofentes. Comme cela est illustré sur la Figure 15, l'évaporation ne se fait pas du tout comme dans une fente micrométrique, où les ménisques se formant de chaque coté de la fente reculent tous les deux à l'intérieur de la fente. Dans le cas des nanofentes considérées par Duan et al. (2012), l'évaporation est caractérisée par la formation d'une bulle à l'entrée de la nanofente (cf. Figure 15a). Cette bulle migre vers le centre de la nanofente où elle grossit au fur et à mesure de l'évaporation. Outre une phénoménologie différente, le résultat est une évaporation beaucoup plus rapide, étant donné que les ménisques restent très longtemps en entrée des nanofentes. Il est important de noter la forme différente de la nanofente à ses extrémités (présence d'un convergent). Il semble que la variation de section en entrée de fente joue ici un rôle décisif dans la formation de la bulle, formation qui, comme dans le cas de l'imbibition spontanée, n'a pas reçu d'explication satisfaisante à ce jour.



a) b)

Figure 15. a) Nanofente vue en coupe, b) vues de dessus d'une série de nanofentes lors de l'évaporation. La zone clair correspond à la bulle de gaz se formant et grossissant lors de l'évaporation.

Ces deux expériences indiquent donc que la physique des écoulements diphasiques dans un système nanofluidique peut être différente de celle qui prévaut dans des systèmes microfluidiques. En d'autres termes, ceci pourrait être une indication que des phénomènes spécifiques, tels que formation de bulles par exemple, peuvent se produire dans des pores de dimension submicronique d'un matériau poreux. Si l'on note que, comme cela est présenté plus loin dans ce chapitre, que la majorité des pores de l'argilite sont précisément submicronique, ces expériences suggèrent qu'il est sans doute souhaitable de revisiter la théorie des écoulements diphasiques dans les systèmes nanoporeux. Cela parait possible grâce aux dispositifs nanofluidiques en considérant des systèmes plus représentatifs que de simples nanofentes. Ceci constitue en fait le programme de la thèse d'Antoine Naillon qui vient de démarrer à l'IMFT avec le LAAS, laboratoire qui maitrise les technologies de fabrication des systèmes nanofluidiques.
Il est à noter que le drainage n'a pas encore été étudié à l'aide de dispositifs nanofluidiques

3. Argilite et modèle de réseau de pores

Comme cela a été illustré dans les chapitres précédents, les modèles de réseau de pores peuvent être un outil complémentaire utile pour analyser les écoulements, en particulier diphasiques, dans les milieux poreux. Une problématique assez naturelle serait donc de généraliser les résultats des chapitres précédents en développant des modèles de réseau de pores représentatif de l'argilite. Par exemple, il est très difficile de caractériser finement la courbe de rétention ou la perméabilité relative au gaz expérimentalement dans la gamme de très fortes saturations en eau qui sont d'intérêt primordial pour la problématique du stockage. On peut penser qu'un modèle réseau permettrait de caractériser ces propriétés dans la gamme inaccessible à la mesure.

Réaliser un tel modèle constitue toutefois un projet difficile largement ouvert. Dans le cadre de cette thèse, nous tentons d'expliquer pourquoi il en est ainsi. Nous tentons également de proposer quelques pistes pour les travaux futurs dans ce contexte.

3.1 Microstructures de l'argilite : quelques données disponibles

Les données ainsi que les illustrations présentées dans cette section nous ont été fournies, sauf mention contraire, par J.C. Robinet, Ingénieur Andra et auteur d'une thèse sur cette roche argileuse, Robinet (2008). Il est à noter que nous considérons uniquement l'argilite supposée « saine ». Ainsi on ne s'intéresse pas à l'existence de possibles fissures. De telles fissures sont fréquemment observées dans les expériences de laboratoire avec l'argilite, voir par exemple M'Jahad (2012). Par simplicité, on supposera que ces fissures résultent de la manipulation des échantillons et ne sont pas présentes dans l'argilite in situ.

3.1.1 Minéralogie

Comme cela est illustré sur la Figure 16, l'argilite est une roche argileuse composée de minéraux argileux (illite, mica, I/S, kaolinite, chlorite), de tectosilicates (quartz et feldspaths), de carbonates (calcite, dolomite) et de minéraux lourds (pyrite). La composition varie en fonction de l'horizon considéré dans la couche du callovo-oxfordien.

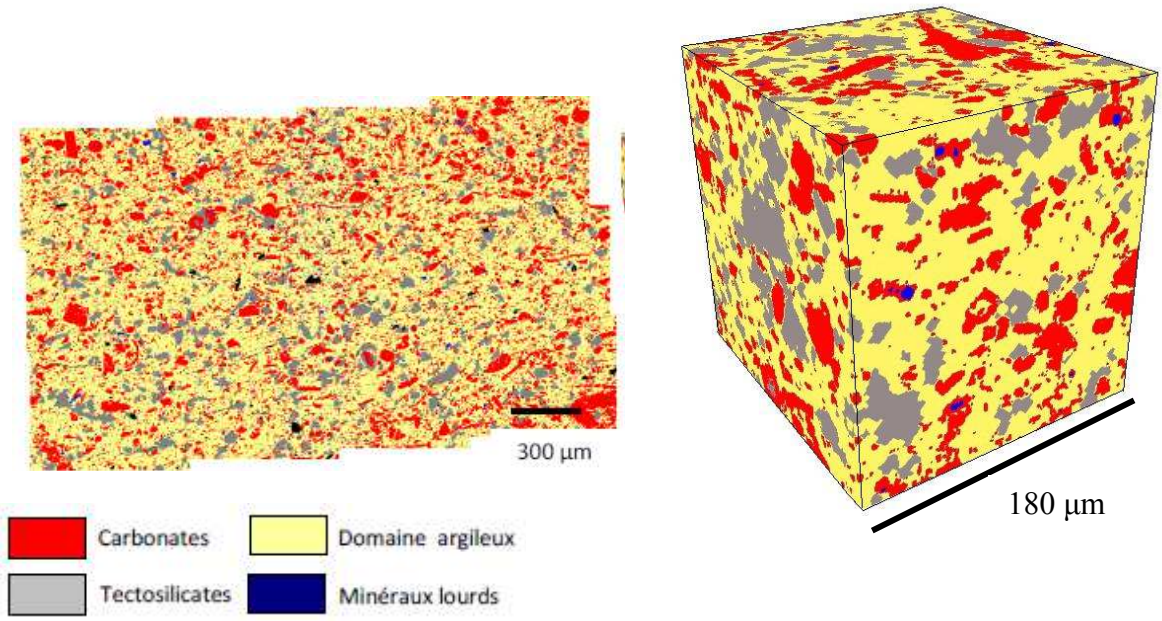


Figure 16. Distribution des minéraux au sein de l'argile, Robinet et al. (2012).

Plusieurs niveaux d'organisation sont considérés au sein de la matrice argileuse : les feuillets, la particule argileuse, le niveau des amas de particules argileuses avec des inclusions de matériaux non-argileux.

Du point de vue des transferts de gaz, les particules argileuses peuvent être sans doute vues comme des particules élémentaires, étant données que l'eau fixée au sein de ces particules à une probabilité nulle d'être déplacée par le gaz au cours d'une situation de drainage. Une particule argileuse est en effet constituée d'un ensemble de quelques feuillets, de l'ordre de la dizaine, dont l'épaisseur d'un feuillet comme la distance entre deux feuillets sont de l'ordre du nanomètre. L'eau est donc fortement adsorbée dans l'espace interfoliaire. On peut noter un facteur d'anisotropie d'environ 5 entre la longueur d'une particule argileuse et son épaisseur.

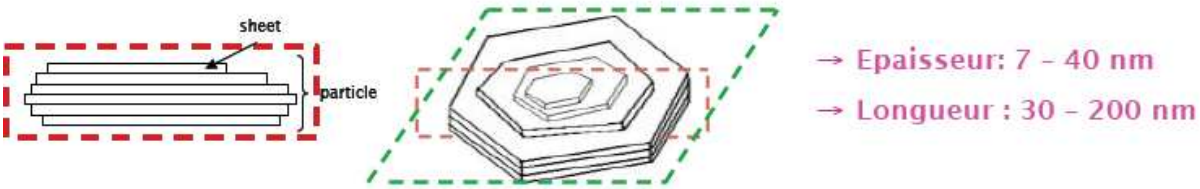


Figure 17. Exemple de particule argileuse, Rajec et al. (1999)

La Figure 18 propose un schéma conceptuel de l'organisation de la matrice argileuse à l'échelle d'un ensemble de particules argileuses. Noter en particulier la présence d'un espace poral entre les particules argileuses. Les pores y sont de l'ordre de la taille des particules argileuses et donc d'un à deux ordres de grandeurs plus grands que les pores au sein des particules argileuses. C'est donc a priori dans l'espace poral interparticulaire que doit circuler le gaz.

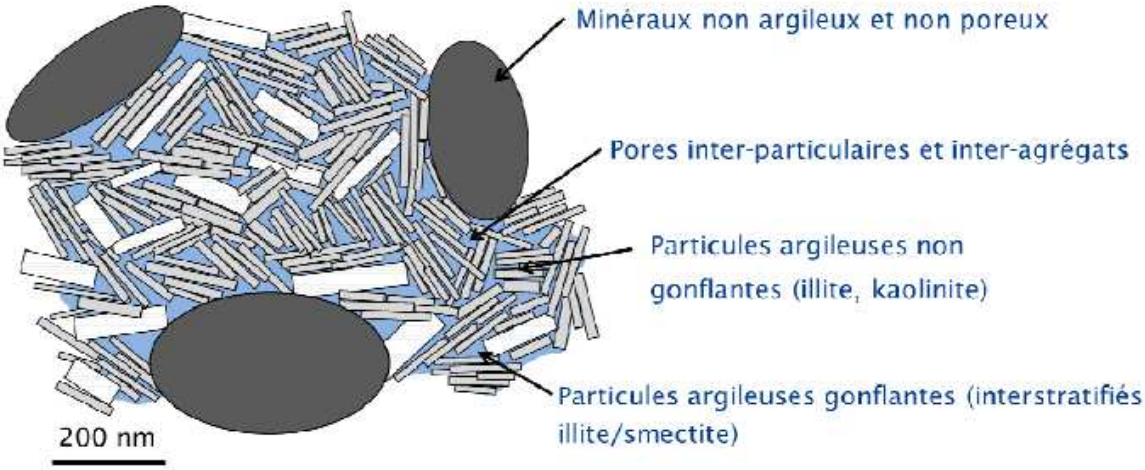


Figure 18. Schéma conceptuel de l'organisation de l'argilite à l'échelle d'un amas de particules argileuses.

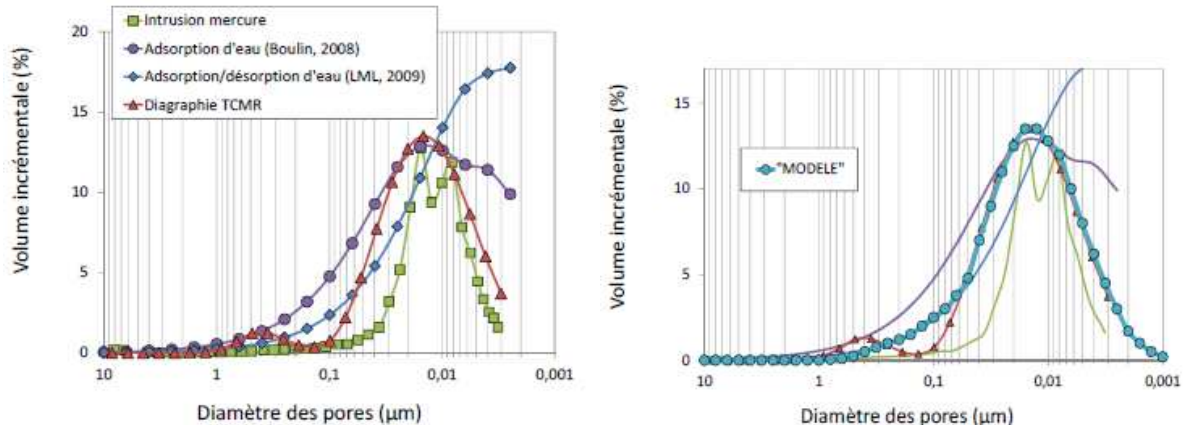
On peut noter enfin l'existence possible de macropores (non montrés sur la Figure 18) au contact matrice argileuse - grains des minéraux non-argileux. Etant donné la valeur de la

pression de percée (voir plus loin), on peut penser que ces macropores sont isolés les uns des autres par la matrice argileuse.

3.1.2 Porosité

Les carbonates et les quartz sont considérés comme non-poreux. Toute la porosité est dans la matrice argileuse. La porosité de la matrice argileuse est de l'ordre de 35 - 40 %, ce qui compte tenu de la présence des matériaux non-poreux conduit à une porosité de l'argilite de l'ordre de 18-20% (en supposant donc 50 % de minéraux non argileux).

Plusieurs méthodes classiques ont été utilisées pour caractériser la distribution porométrique de l'argilite. Ces méthodes sont discutées par exemple dans Boulin (2008) et M'Jahad (2012) ou encore dans Daïan (2012), notamment en ce qui concerne la porosimétrie au mercure. Elles ne seront pas discutées à nouveau ici. Une compilation de résultats est montrée sur la Figure 19



a) b)

Figure 19. a) Distribution des tailles de pores au sein de l'argilite suivant différentes méthodes, b) distribution modèle (« synthèse » des courbes de la figure de gauche).

On peut noter un pic au alentour de 15 nm et un « décollage » de la courbe modèle pour une taille submicronique. Ces données, interprétées sous l'hypothèse de pores sphériques (sic), conduisent aux résultats de la Figure 20, indiquant une majorité de pores nanométriques.

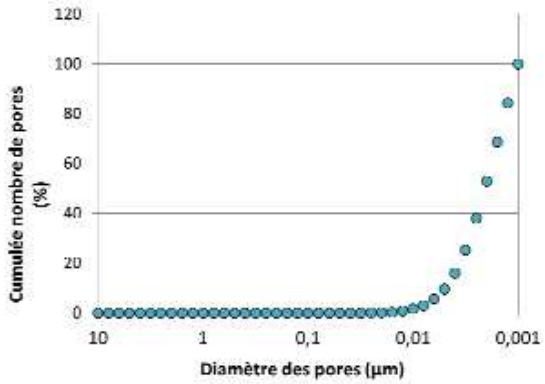


Figure 20. Distribution cumulée en nombre de pores (à partir de la Figure 19b sous l'hypothèse de pores sphériques (très discutable eu égard au modèle conceptuel de la Figure 18).

Plus intéressante pour le problème du gaz est la courbe d'intrusion au mercure montrée en volume cumulé sur la Figure 21.

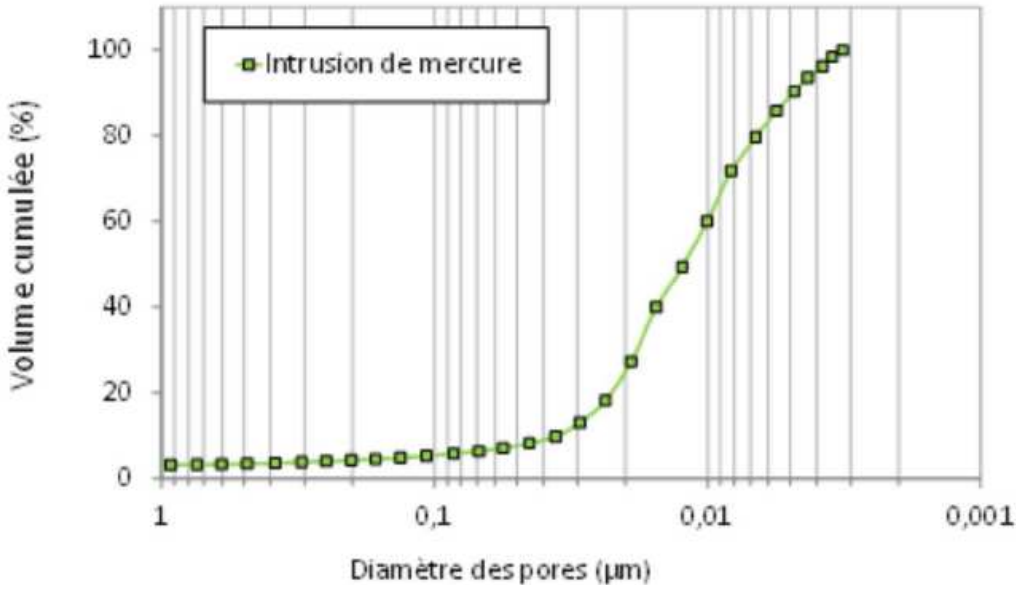


Figure 21. Courbe d'intrusion au mercure dans un échantillon d'argilite.

Cette courbe indique que la majorité des pores envahis lors de l'intrusion au mercure est dans la gamme [3nn – 100nm]. On peut noter que la courbe « décolle » pour un diamètre de pore d'environ 30 nm. Si on interprète le « décollage » de la courbe comme représentatif de la percée, cf Daïan (2012), on a donc ici une première estimation du diamètre seuil de constriction marquant la percée $d_{seuil} \approx 30$ nm.

D'après la Figure 21, ce diamètre correspond environ à 10% du volume poral (plus exactement 10 % du volume total injecté, qui est en réalité inférieur au volume poral en raison des pores trop fin pour être accessible au mercure). Comme indiqué précédemment la porosité de la matrice argileuse étant de l'ordre de 35 - 40 % et si on suppose que cette matrice n'occupe que 50 % du volume de l'échantillon, ceci correspond à un envahissement de l'ordre de 1.5 – 2% du volume de l'échantillon d'argilite par le mercure. En revanche en termes de saturation, cela correspond à une saturation de 10 %, ce qui parait (voir plus loin) trop élevée (on s'attend à ce que la saturation à la percée soit plus faible même en tenant compte du fait que dans le cas du mercure l'invasion se fait par toutes les faces de l'échantillon (comme montré dans le chapitre précédent à travers les simulations du séchage avec deux faces ouvertes ou six faces ouvertes, la saturation à la percée est d'autant plus grande que le nombre de faces d'entrée est grand).

3.1.3 Pression de percée

Une compilation de données expérimentales concernant la pression (capillaire) de percée de l'argilite est présentée sur la Figure 22. Pour l'argilite saine, la valeur considérée la plus probable à ce jour (points entourés en rouge sur la figure) est de 6 MPa. L'application de la loi de Laplace $P_c = \frac{4\gamma\cos\theta}{d}$ avec une hypothèse de pore cylindrique et un angle de contact nul conduit pour cette valeur de la pression de percée à $d_{seuil} \approx 50$ nm ($\gamma \approx 72\ 10^{-3}$ N/m). D'après la courbe d'intrusion au mercure de la figure 21, cela correspond environ à une saturation de 5-6%

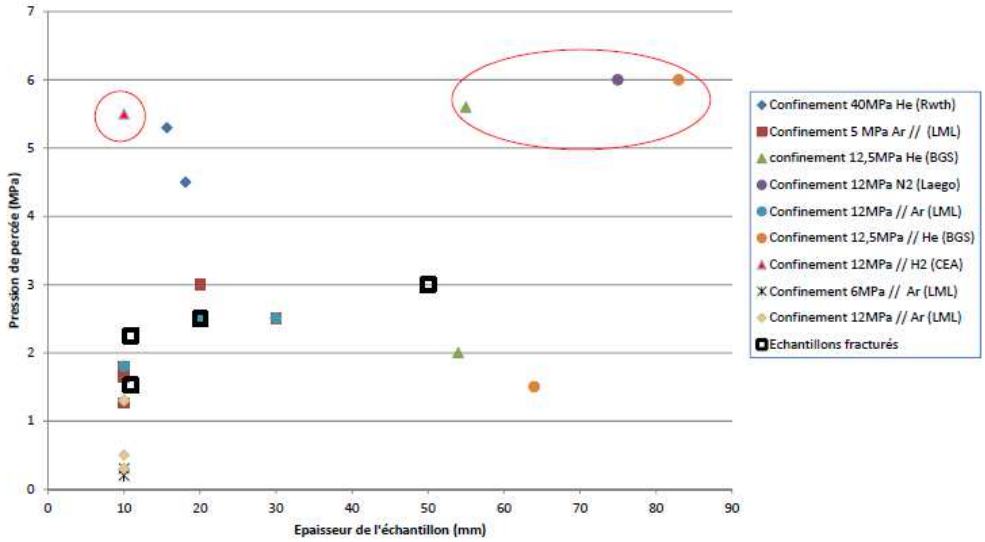


Figure 22. Pression de percée de l'argilite déterminée expérimentalement, Talandier (2013). Les valeurs entourées en rouge correspondent à l'argilite « saine ». Les autres valeurs correspondent à des échantillons fracturés ou endommagés.

Il est intéressant de noter que l'application du modèle XDQ (voir plus loin), qui est un modèle de réseau de pores multiéchelles qui se paramètrisent à partir de le courbe d'intrusion au mercure , conduit également à une estimation de la pression (capillaire) de percée de l'ordre de 6 MPA Boulin (2008).

3.2 Courbe de rétention

Des données concernant la courbe de rétention sont présentées sur la Figure 23. La pression capillaire varie principalement dans la gamme [1 MPa -100 MPa], ce qui cohérent en valeur avec les distributions de taille de pores discutées précédemment.

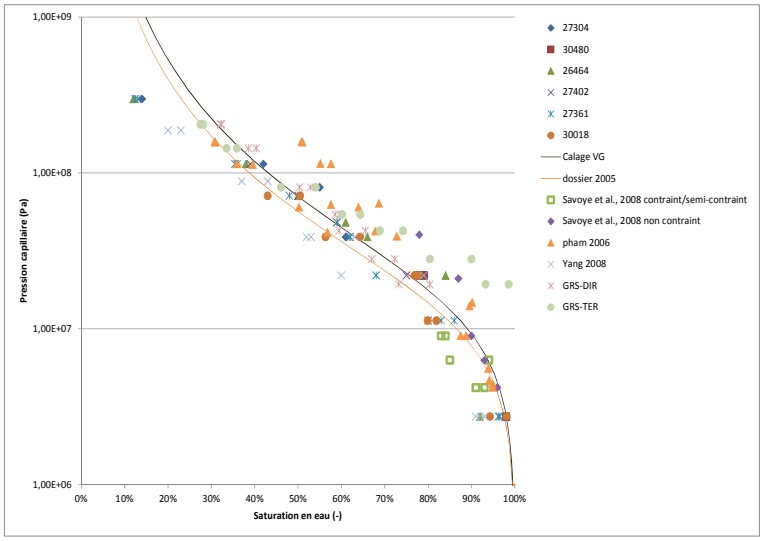


Figure 23. Courbe de rétention de l'argilite, Talandier (2012a). Les symboles correspondent à différentes mesures expérimentales. Les courbes sont obtenues en « ajustant » une expression de type van Genuchten, van Genuchten (1980).

Il est intéressant de noter l'absence de points de mesure pour les très fortes saturations .

3.3 Perméabilité - perméabilités relatives

3.3.1 Perméabilité

L'argilite est un matériau peu perméable. Un élément qui illustre les difficultés avec ce type de matériau est que la perméabilité au gaz pour un échantillon « sain » sec (après correction d'un éventuel effet Klinkenberg) est plus grande (elle est de l'ordre de 5 10^{-19} m^2) que la perméabilité « liquide » pour un échantillon complètement saturé d'eau (qui est de l'ordre de 5 10^{-21} m^2).

3.3.2 Perméabilités relatives

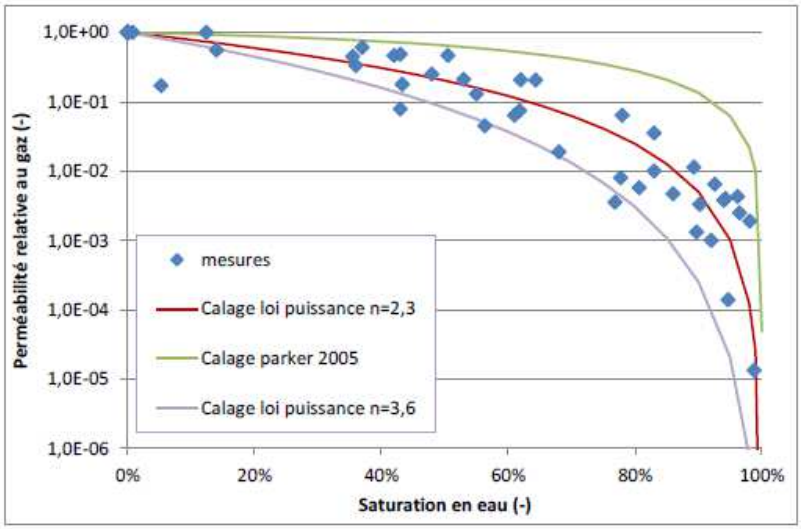


Figure 24. Perméabilite relative de la phase gazeuse, Talandier (2012b)**.**

3.4 Construction de réseaux de pores non-structurés à partir d'images numériques de la microstructure.

De très nombreux travaux ont été consacrés à la construction de modèles de réseau de pores à partir d'images binarisées de la microstructure d'un milieu poreux donné, voir par exemple parmi beaucoup d'autres Dong et Blunt (2009).

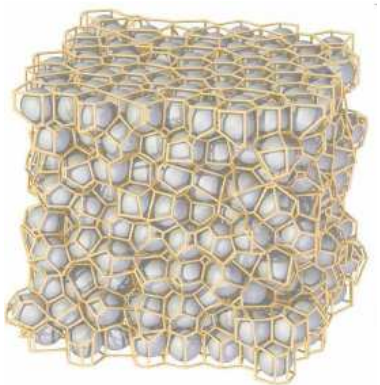


Figure 25. Construction d'un réseau de pores non-structuré à partir d'une image de microstructure. (ref : web.mit.edu/.../www/images/physics/voronoi3.jpg). Exemple illustratif pour le cas d'un empilement aléatoire de sphères monodisperses.

Les images numériques de départ peuvent être obtenues en générant numériquement des microstructures (comme l'empilement aléatoire de grains montrés sur la Figure 16) ou le plus souvent à partir de techniques de microtomographie aux rayons X. La solution la plus performante de ce type fait appel à une source synchrotron et permet des tailles de voxel minimales de l'ordre de 700 nanomètres. Dans sa forme la plus courante, cette technique ne permet donc pas d'imager un échantillon d'argilite, la grande majorité des pores étant plus petits que cette taille caractéristique.
Pour des matériaux comme l'argilite faisant intervenir des tailles de pores majoritairement submicroniques, une technique plus adaptée est la FIB (focused ion beam) qui permet de reconstituer la microstructure à partir d'une série de découpes très fines (de l'ordre de la dizaine de nanomètres d'épaisseur, voire moins) du matériau, e.g. Keller et al., (2011), (2013). Cette technique est actuellement exploitée par le LML /ECL et également au BRGM. Elle ne permet pas pour l'instant de « voir » les pores de taille inférieure à environ 30-40 nanomètres.
Il s'agit d'un domaine de recherche très actif et il est clair que des images binarisées tridimensionnelles de la microstructure de l'argilite, même filtrée à 30 – 40 nanométres, voire à 10 nm, vont être obtenues, ou le sont déjà.
L'extraction d'un réseau de pores 3D à partir de telles images représentera en réalité une question très largement ouverte. En effet la construction de modèles de réseaux pores à partir d'images binarisées en utilisant des techniques de morphologie mathématiques n'a, sauf erreur, été effectuée que pour des images « simples » correspondant à des milieux ayant une distribution de tailles de pores relativement étroite (s'étalant sur une décade au plus typiquement). Des échantillons de grès ou des empilements de billes monodisperses sont des exemples de milieux typiquement considérés, cf. (Blunt et al. 2002). On est donc loin d'un milieu comme l'argilite avec des tailles de pores s'étalant sur plusieurs décades.
Les techniques d'extraction du réseau de pores sont donc peut-être à revoir dans le cas d'un milieu comme l'argilite.
Un élément favorable cependant dans le cas de l'étude du drainage hyperlent est qu'il n'est nécessaire que de s'intéresser à une sous-classe des pores, celle permettant la circulation de la phase non-mouillante au voisinage du point de percée. Si on considère comme fiable la mesure de la pression de percée pour la roche saine présentée sur la Figure 22, soit 6 MPA, on obtient à partir de la loi de Laplace une taille minimum seuil de constriction $\approx$ 50 nm (diamètre d'une constriction cylindrique en supposant l'eau parfaitement mouillante, ce qui reste à démontrer). Par ailleurs, l'examen de la courbe d'intrusion au mercure (Figure 21), suggère qu'il est sans doute suffisant de se restreindre aux pores (constrictions) de tailles supérieures à environ 20-30 nm si l'on est intéressé uniquement par la gamme des saturations en fluide non-mouillant inférieures à quelques pourcents.

4. Application des résultats du drainage hyperlent à l'argilite.

Nous avons vu au Chapitre 6 comment on pouvait construite la courbe de rétention et la courbe de la perméabilité relative au gaz en corrigeant ces courbes dans la gamme des très fortes saturations par les comportements prévus par la théorie de la percolation pour un milieu infini. Appliquées aux données des Figures 23 et 24 ceci conduit aux résultats présentés sur les Figures 26 et 27.

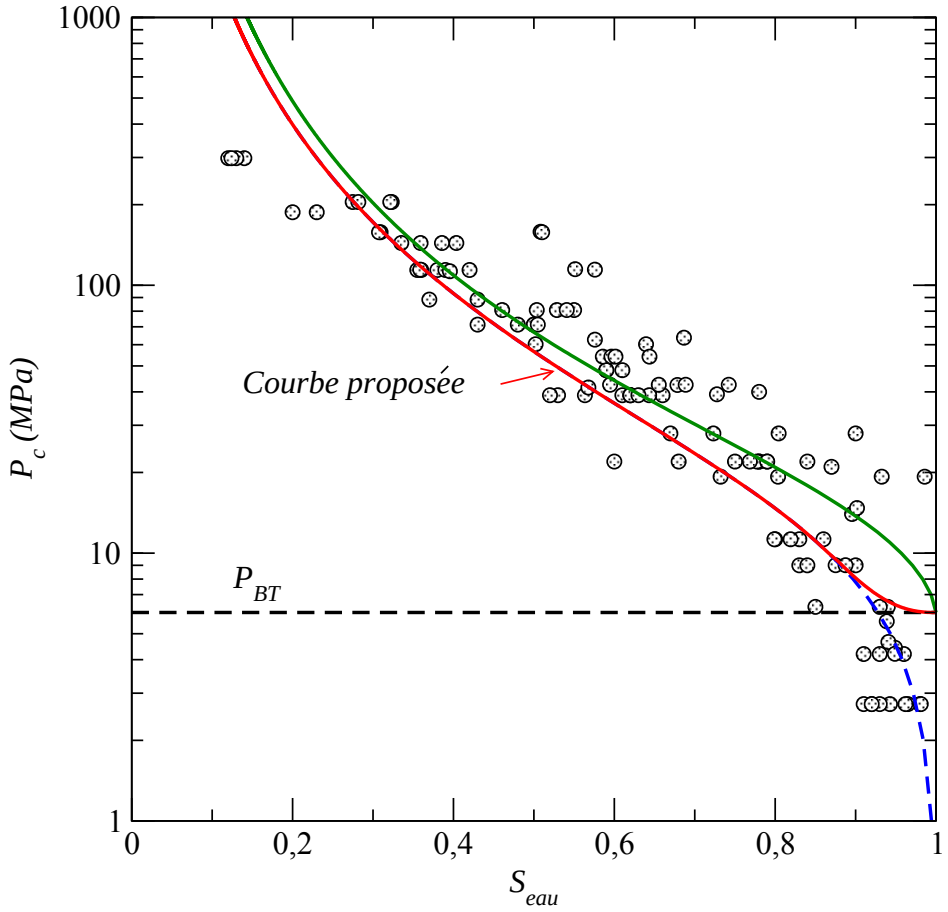


Figure 26. Courbe de rétention proposée pour l'argilite (en rouge) en imposant le comportement prévu par la théorie de la percolation dans la gamme des fortes saturations en eau. Les cercles correspondent à des données expérimentales (Talandier (2012b))

Pour obtenir la courbe de rétention proposée (courbe en rouge sur la Figure 26), on part d'un ajustement de la relation de van Genuchten proposé dans Talandier (2012b) pour représenter les données expérimentales disponibles (cette courbe correspond sur la Figure 26 à la courbe en tirets bleus pour les saturations supérieures à 0.9 et à la courbe rouge pour les saturations inférieures à 0.9),

$$S_{eau} = \left[1 + \left(\frac{P_c}{P_r}\right)^n\right]^{-m} \tag{4}$$

avec $m = 1.-1/n$, $n = 1.49$, $P_r = 15.$ (MPa).

Cette courbe est corrigée dans la gamme des fortes saturations par en imposant le comportement prévu par la théorie de la percolation (cf Chapitre 6),

$$P_c = P_{cBT} + \lambda_p (1. - S_{eau})^{1/\beta} \tag{5}$$

et en prenant comme pression de percée P_{cBT} = 6 MPa d'après les données expérimentales présentées sur la Figure 22 (Talandier (2012b)). Avec cette valeur de la pression de percée et

en imposant que les équations (4) et (5) conduisent à la même valeur de la pression capillaire pour $S_{eau} \approx 0.9$, on obtient $\lambda_p = 500$ MPa, ce qui finit de spécifier la courbe de rétention.

On peut noter que notre résultat est notablement différent dans la gamme des très fortes saturations en eau de la courbe proposée dans la référence Talandier (2012b) en ajustant une relation de van Genuchten à seuil (courbe verte de la Figure 26),

$$S_{eau} = \left[1 + \left(\frac{P_c - Pae}{P_r}\right)^n\right]^{-m} \text{ si } P_c > Pae \qquad S_{eau} = 1 \text{ si } P_c < Pae \tag{6}$$

avec Pae = 6 MPa, n = 1.46, m = *1.-1/n* Pr = 14.6 MPa (Talandier 2012b p. 42).

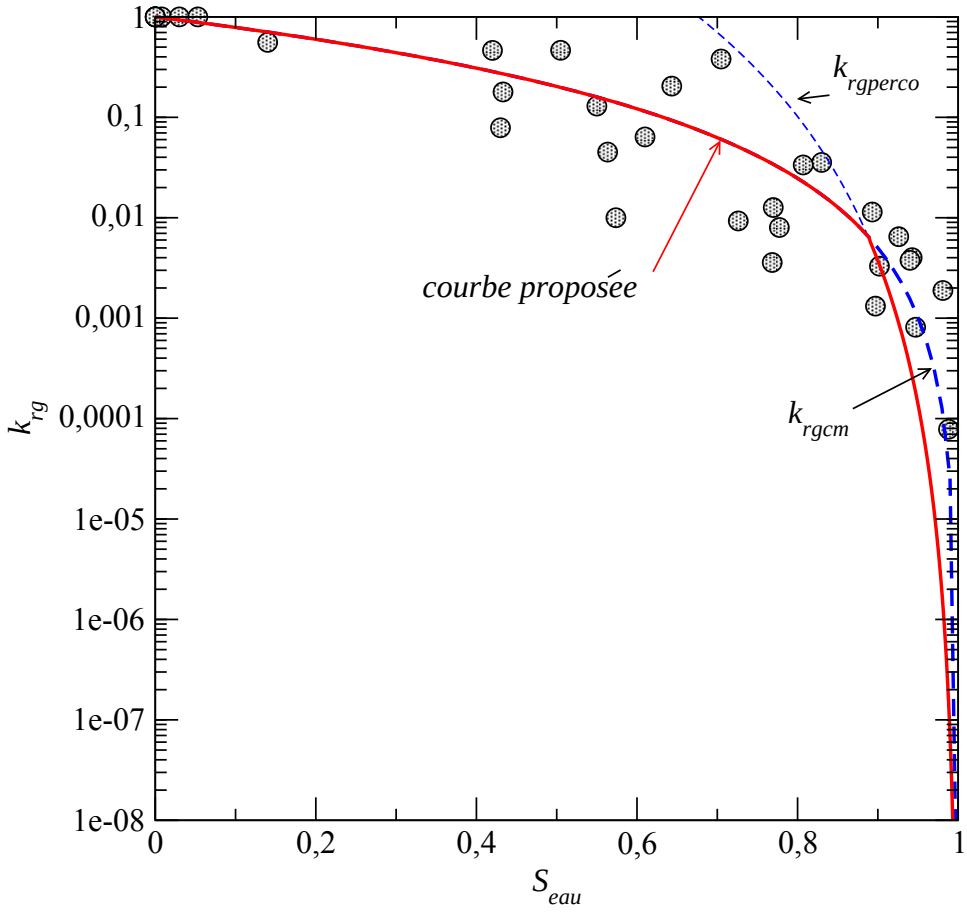


Figure 27. Courbe de perméabilité relative au gaz proposée pour l'argilite (en rouge) en imposant le comportement prévu par la théorie de la percolation dans la gamme des fortes saturations en eau. Les cercles correspondent à des données expérimentales (Talandier (2012b))

De manière similaire, pour obtenir la courbe de perméabilité relative au gaz (courbe en rouge sur la Figure 27) nous partons de l'ajustement en loi puissance proposé dans Talandier (2012b),

$$k_{rg} = S_g^{2.3} \tag{7}$$

Cet ajustement correspond sur la Figure 27 à la courbe en tirets bleus épais pour les saturations supérieures à 0.9 et à la courbe rouge pour les saturations inférieures à 0.9.

Le comportement pour les saturations supérieures à 0.9 est corrigé en utilisant la relation présentée au Chapitre 6,

$$k_{rg} = \lambda_k (1. - S_{eau})^{\tau/\beta} \tag{8}$$

En imposant que les Eqs. (7) et (8) doivent conduire à des valeurs voisines pour $S_{eau} \approx 0.9$, on trouve $\lambda_k \approx 216$.

Le choix de la saturation 0.9 comme saturation où le raccordement entre le comportement de champ moyen et le comportement prédit par la théorie de la percolation est effectué peut paraître assez arbitraire. Le principe est de choisir tout d'abord une saturation pour laquelle la pression capillaire mesurée est légèrement supérieure à la pression de percée, puisque la pression capillaire ne peut pas être inférieure à la pression de percée pour le milieu infini. Le deuxième critère est de choisir cette saturation de raccordement dans la zone où l'effet de taille finie est jugé comme visible (zone où le taux de variation de la pression capillaire avec la saturation se met à augmenter plus rapidement).

5. Conclusions

Combinés aux travaux des chapitres précédents, les éléments présentés dans ce chapitre conduisent aux conclusions principales suivantes :

1) la physique des écoulements diphasiques dans des milieux nanoporeux rigides, c'est à dire sans couplage avec d'éventuelles déformations de la microstructure, peut présenter des différences par rapport à ce qui est bien connues pour les systèmes de taille microniques. Il convient donc d'étudier plus en profondeur ces possibles différences, qui sont liées principalement au rôle du gaz (dynamique de bulles, pressurisation).

2) les expériences sur des échantillons d'argilite menées par le BGS ou le LML mettent en avant un phénomène de passage intermittent du gaz à faible débit. Il est cependant difficile de conclure à la réalité de ce phénomène dans le cas de l'injection en massif semi-infini car il peut être entièrement dû à la relaxation de la pression quand le gaz atteint le milieu grossier ou l'espace libre situé en sortie d'échantillon.

3) L'effet de dilatance mis en avant par les expériences du BGS parait plus spécifique car il est déjà notable avant la percée. Comme discuté à l'occasion du chapitre 7, il s'agit là d'un problème qui peut être essentiel, étant donné le changement profond de la figure d'invasion qui est possible lorsque cet effet de dilatance est suffisamment marqué.

4) L'ensemble des données disponibles (distribution des tailles de pores, courbe de rétention, perméabilités, etc) laisse à penser qu'il est possible de caler un modèle de

réseau de pores sur ces données. Le développement de l'imagerie FIB constitue aussi une voie très intéressante pour tenter de construire un tel réseau.

5) Dans la perspective de construire un réseau de pore pour le matériau argilite (cf point # 4), la question de la prise en compte ou non de la dilatance peut être également de nature centrale, suivant son importance. Si l'effet est majeur (changement des figures d'invasion), la considération de réseaux de pores rigides pourrait être bien peu pertinente. En d'autres termes, il est possible que dans le processus de construction du réseau il faille viser non seulement à reproduire des propriétés d'équilibre, courbe de rétention, ou de transport, perméabilité, perméabilité relatives mais également à être cohérent vis-à-vis de certaines propriétés poro-mécaniques de l'argilite, propriétés élastiques dans un premier temps. Le réseau de pores doit alors nécessairement être conçu de façon à permettre la prise en compte des couplages entre écoulement et déformations.

6) En s'appuyant sur les données disponibles l'application de la théorie du drainage hyperlent présentée au Chapitre 6 permet de proposer une courbe de rétention et une courbe de perméabilité relative au gaz corrigées dans la gamme des fortes saturations en eau pour l'argilite.

References

Boulin P., Expérimentation et Modélisation du transfert d'hydrogène à travers des argiles de centre de stockage de déchets radioactifs, Thèse de doctorat de l'Institut polytechnique de Grenoble, France, 2008

Blunt, M.J., Jackson, M.D.,Piri, M. and Valvatne, P.H. Detailed physics, predictive capabilities and macroscopic consequences for pore-network models of multiphase flow, *Adv. Water Resour.* **25**, 1069-1089, (2002)

Chauvet F., S.Geoffroy, A. Hamoumi, M. Prat, P. Joseph (2012) Role of Gas in Capillary Filling of Nanoslits, Soft Matter 8, 10738.

Daïan J.F. (2012) Transferts en milieu poreux, http://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00452876/fr/

Davy C. A., Skoczylas F., Gas migration through COx claystone and implications for self-healing. Journées Multiphasiques MoMaS 2013, IHES, Bures-sur-Yvette 7-9 Octobre 2013

Dong, H., Blunt, M.J. (2009) Pore-network extraction from micro-computerized-tomography images, *Phys. Rev. E,* Vol.80, 036307.

Duan C., R.Karnik, M.-C. Lu, A.Majumdar (2012) Evaporation-induced cavitation in nanofluidic channels, PNAS, vol. 109, no. 10, 3688–3693..

Frette, V., Feder, J., Jossang, T. and Meakin, P., 1992, Buoyancy-driven fluid migration in porous media. *Phys. Rev.Lett. 68,* 3164-3167.

Harrington J., Cuss R., Noy D. (2013) Gas flow in 'intact' Callovo-Oxfordian Claystone (COx), Journées Multiphasiques MoMaS 2013, IHES, Bures-sur-Yvette 7-9 Octobre 2013

Holtzman R. and R. Juanes (2010) Crossover from fingering to fracturing in deformable disordered media Phys. Rev. E 82, 046305.

L.M. Keller, L. Holzer, R.Wepf, P. Gasser, B. Muench and P. Marschall (2011).On the application of focused ion beam nanotomography in characterizing the 3D pore space geometry of opalinus clay. Physics and Chemistry of the Earth, 36, 1539-1544.

L.M. Keller, P. Schuetz, R. Erni, M.D. Rossell, F. Lucas, P. Gasser and L.Holzer (2013). Characterization of multi-scale microstructural features in opalinus clay. Microporous and Mesoporous Materials, 170, 83-94.

Laurindo J.B., Prat M. (1996) Numerical and experimental network study of evaporation in capillary porous media. Phase distributions. *Chem.Eng.Sci.* .Vol.51,No.23, pp.5171-5185.

Lenormand R., Touboul E., Zarcone C. (1988) Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J.Fluid Mech.* 189: 165-187.

Ouerfelli H. (2013), Etude expérimentale du déplacement d'un liquide par un gaz en milieu poreux, Thèse ENIM (Monastir), Tunisie.

P. Rajec, V. Šucha, D. D. Eberl, J. Środoń and F. Elsass (1999) Effect of Illite Particle Shape on Cesium Sorption, *Clays and Clay Minerals 47 : 755-760.*

Robinet J.C., Minéralogie, porosité et diffusion des solutés dans l'argilite du Callovo-Oxfordien de Bure (Meuse/Haute Marne, France) de l'échelle centimétrique à micrométrique, Thèse de doctorat de l'université de Poitiers, Poitier, 2008.

J.C. Robinet, P. Sardini, D. Coelho, J. C. Parneix, D. Prêt, S. Sammartino, E. Boller and S. Altmann, (2012). Effects of mineral distribution at mesoscopic scale on solute diffusion in a clay-rich rock: Example of the Callovo-Oxfordian mudstone (Bure, France) Water Resources Research , 48 (5), WR011352.

Rossen W.R. (2000) Snapp-off in constricted tube and in porous media, Colloids and Surface A: Physicochemical and Engineering aspects 166, pp.101-107,

Talandier J. (2012a), Ecoulements eau/gaz dans les argilites du Callovo-Oxfordien, Colloque Transferts 2012, Lille, 2012.

Talandier J. (2012b), Synthèse des propriétés hydro-gaz pour les argilites du Callovo-Oxfordien et pour les matériaux du stockage en interface avec les argilites, Document technique ANDRA C NT AMFS 12 0022.

Talandier J. (2013), Transfert de gaz dans le stockage de déchets radioactifs en couche géologique profonde, Séminaire LAAS-IMFT 18 Décembre 2013 Toulouse..

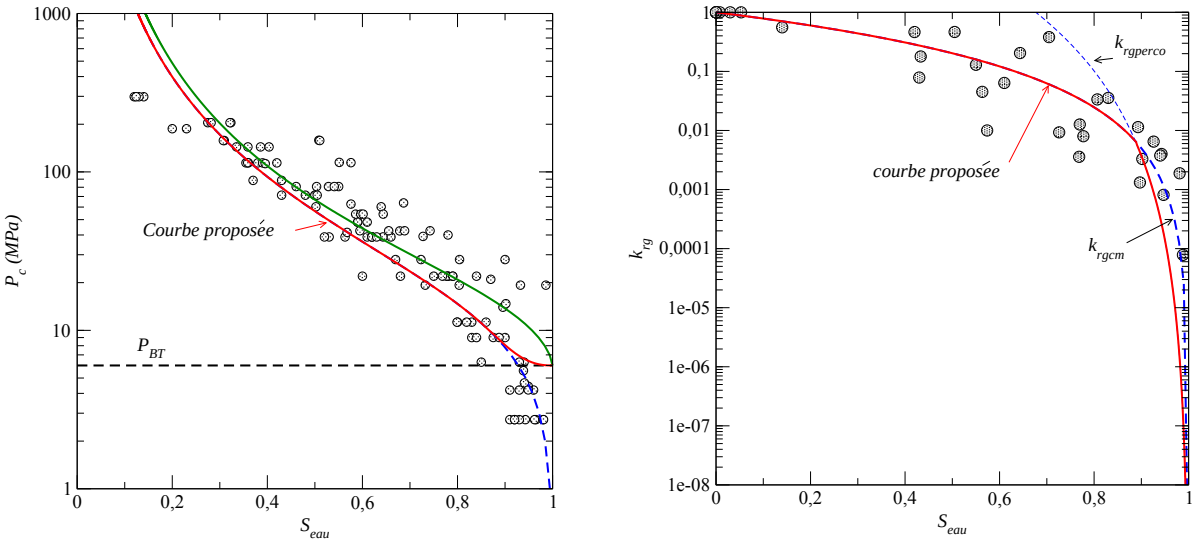
van Genuchten M.T., "A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils," Soil Sci Soc Am J. **44**, 892 (1980).

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette thèse a eu pour but principal la modélisation du drainage pour les très faibles valeurs du nombre capillaire rencontrées dans la problématique du déplacement de l'eau par l'hydrogène au sein de la roche hôte dans le contexte du stockage souterrain des déchets nucléaires. Compte tenu des très faibles nombres capillaires, ce régime de drainage a été désigné par « drainage hyperlent ».

Physiquement, il se caractérise par une très faible désaturation du milieu et un fonctionnement au voisinage de la pression de percée. Ceci a justifié de revisiter le concept de pression de percée. Si l'on accepte que l'espace des pores puisse être représenté par un réseau aléatoire de pores et de liens, la pression de percée a une définition géométrique claire. Elle peut se calculer simplement en fonction de la distribution (loi de probabilité) des tailles de constriction de l'espace des pores et du seuil de percolation du réseau.

Si l'on suppose le milieu rigide (ou ce qui revient au même les effets de dilatance négligeables), une conclusion importante est que le processus de drainage hyperlent peut se calculer à l'aide du modèle diphasique classique basé sur les lois de Darcy généralisées à condition de spécifier correctement la courbe de rétention et la perméabilité relative au gaz dans la gamme des très fortes saturations en fluide mouillant.
La conclusion concernant ce problème crucial de paramétrisation est que la perméabilité relative et la courbe de rétention à utiliser dans la perspective du calcul du drainage hyperlent sont la perméabilité relative au gaz et la courbe de rétention pour un milieu infini. Ces courbes peuvent se construire à partir des courbes expérimentales obtenues sur un échantillon de taille finie en les corrigeant dans la zone entachée par l'effet de taille finie (zone des fortes saturations en liquide). La correction consiste à imposer dans la zone des fortes saturations en fluide mouillant les comportements en loi puissance prévus par la théorie de la percolation en tenant compte aussi du fait que la pression capillaire doit converger vers la pression de percée pour la saturation 1.
Appliqué à l'argilite (cf. Chap.8), ceci conduit aux résultats pratiques rappelés sur les Figures ci-dessous.



Courbes de rétention et de perméabilité relative au gaz proposées pour l'argilite (en rouge).

Compte tenu de la grande sensibilité du modèle diphasique aux valeurs des paramètres (courbe de rétention et perméabilité relative au gaz) dans la gamme des très fortes saturations en fluide mouillant, l'utilisation directe de courbes expérimentales a de très fortes chances de conduire à des résultats très significativement différents des résultats obtenus à partir de la perméabilité relative et la courbe de rétention pour un milieu infini et ceci d'autant plus que le nombre capillaire est petit. Les courbes non corrigées peuvent ainsi conduire à sous-estimer la variation de saturation et à surestimer la distance visitée par le gaz très significativement.

Si en revanche, les effets de dilatance sont significatifs, les simulations effectuées à l'aide d'un modèle couplant un modèle de réseau de pores pour le calcul de l'écoulement et un modèle de ressorts interconnectés pour le calcul de la déformation indiquent un changement profond de la figure d'invasion si bien que l'ensemble des points acquis sous l'hypothèse de milieu rigide est à revisiter à l'exception sans doute de la pression de percée qui, devrait rester proche de sa valeur pour le milieu supposé rigide (on est ici sous des hypothèses de faibles déformations). Ceci est à relier à certains résultats expérimentaux du BGS, qui mettent en avant des déformations des échantillons macroscopiques testés lors de l'injection du gaz.
Même si nos résultats ne permettent pas de trancher en raison du caractère rudimentaire de notre modèle (poro-)mécanique, ils contribuent à poser le problème de la dilatance dans des termes peut-être plus précis et avec peut-être aussi plus d'acuité. Ainsi, cette question de la dilatance, que nous voyons comme un problème de couplage fluide – structure à l'échelle du réseau de pore, nous apparait comme un point crucial à élucider dans des travaux futurs, étant donné l'impact possible de ce couplage sur la structuration de l'écoulement diphasique. Ceci nous conduit à évoquer maintenant quelques perspectives à ce travail.

Perspectives.
Concernant la problématique du drainage hyperlent en milieu rigide, des travaux complémentaires sur le rôle de la dissolution du gaz (impact notamment sur la distribution de la pression dans le gaz qui rappelons le est à l'origine de la stabilisation du profil de saturation), phénomène totalement ignoré dans notre étude, et d'hétérogénéités à grande échelle (variations spatiales des paramètres macroscopiques) seraient souhaitables.
Plus fondamentalement, comme discuté au chapitre 8, la physique des écoulements diphasiques à l'échelle des pores ou du réseau de pores dans les milieux nanoporeux (compris comme les milieux dont des pores sont submicroniques) doit être étudiée, étant donné que la physique sur laquelle nous nous sommes appuyés est essentiellement celle des systèmes microniques. Des travaux dans ce sens sont en cours à partir de dispositifs nanofluidiques.

Comme évoqué à la fin des conclusions, la question de la dilatance apparait comme peut-être la question la plus importance à clarifier. Dans ce but, une perspective attractive, qui s'applique d'ailleurs à l'ensemble des travaux présentés dans cette thèse, est de construire des réseaux de pores représentatifs de l'argilite. L'ensemble des données disponibles (distribution des tailles de pores, courbe de rétention, perméabilités, etc) laisse à penser qu'il est possible de caler un modèle de réseau de pores sur ces données. Le développement de l'imagerie FIB constitue aussi une voie très intéressante pour tenter de construire un tel réseau. Dans cette perspective, ce modèle de réseau de pores devra alors nécessairement être conçu de façon à permettre la prise en compte quantitative des couplages entre écoulement et déformations. Ceci représente à l'évidence un projet très ambitieux. Compte tenu de ce caractère très ambitieux, la considération de modèles plus simples, comme ceux utilisés dans notre travail, est aussi souhaitable pour aider à clarifier certains points. Par exemple, une version 3D de notre modèle à ressorts permettrait d'étudier l'impact de la dilatance sur la courbe de rétention et la perméabilité relative du gaz.