

N° ordre ..... /FHC/UMBB19

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

**UNIVERSITE M'HAMED BOUGARA-BOUMERDES**



Faculté des **H**ydrocarbures et de la **C**himie

## **Thèse de Doctorat**

Présentée par

**Hocine OUAER**

Filière : Hydrocarbures

Option : Génie Pétrolier et Gazier

---

### **Modélisation du comportement rhéologique des fluides complexes : Application aux fluides pétroliers.**

---

Soutenue publiquement le 10 Mars 2019

**Devant le jury composé de :**

M <sup>r</sup> ZERAIBI N.	Professeur (UMBB)	Président
M <sup>r</sup> GARECHE M.	Maitre de Conférences A (UMBB)	Directeur de thèse
M <sup>r</sup> BENZAOUI A.	Professeur (USTHB)	Examineur
M <sup>r</sup> MAHFOUD M.	Professeur (USTHB)	Examineur
M <sup>r</sup> MELLAK A.	Professeur (UMBB)	Examineur

Année Universitaire : 2018/2019

---

## Résumé

La rhéologie des fluides de forage a toujours été considérée comme un aspect essentiel pour assurer le succès des opérations de forage. Par conséquent, le contrôle de leur comportement est d'une importance primordiale. Cette thèse fait l'objet de l'étude du comportement rhéologique des fluides de forage bentonitiques provenant des gisements Algériens (Mostaganem, Maghnia) seules et en présence d'additifs tels que : les polymères non ionique (Hydroxyéthylcellulose et polyéthylène glycol) et les sels (Chlorure de sodium et de potassium). Les résultats rhéologiques obtenus en régime stationnaire et dynamique sont confortés par des analyses de diffraction par rayons X. La modélisation et l'optimisation des paramètres rhéologiques a été réalisée en utilisant la méthode de régression non linéaire (Algorithme Levenberg-Marcquardt) et la méthode évolutionniste (Algorithme génétique).

Il est à noter que les propriétés rhéologiques de ces fluides augmentent en fonction de la concentration en bentonite et cette augmentation est plus significative pour la bentonite de Mostaganem que celle de Maghnia, ce qui la rend prioritaire pour les applications de forage où des quantités énormes sont injectées dans les puits de forage. Ces résultats rhéologiques sont en parfait accord avec l'analyse granulométrique qui révèle que la bentonite de Mostaganem contient moins de sable (0.13 % en volume) que la bentonite de Maghnia (30.96 % en volume). Les rhéogrammes des solutions d'hydroxyéthylcellulose ont été bien corrélés par le modèle de Cross.

Les essais rhéologiques combinés aux essais de diffraction par rayons X ont révélé que le comportement rhéologique et la stabilité du mélange bentonite-HEC sont contrôlés par la nature structurale de ce polymère et ses mécanismes d'interaction avec les particules d'argile.

L'optimisation des paramètres du modèle de Herschel-Bulkley a révélé que l'algorithme génétique qui est une méthode évolutionniste, permet d'estimer des paramètres plus réalistes par rapport à la régression non linéaire, en particulier dans le cas des fluides de forage formulés à base du chlorure de sodium, ce qui est en fait un avantage et un meilleur choix. En outre, l'essai en régime dynamique donne des valeurs de la contrainte seuil plus fiables que celles déterminées numériquement par les modèles rhéologiques en régime stationnaire. Les paramètres rhéologiques du fluide de forage écologique (bentonite-hydroxyéthylcellulose-polyéthylène glycol) sont très sensibles sous différentes conditions. La contrainte seuil et l'indice de consistance croissent avec l'augmentation de la concentration d'hydroxyéthylcellulose, pour atteindre des valeurs maximales à une température de 65 °C et décroissent avec la diminution du pH ainsi qu'avec l'ajout du chlorure de sodium au fluide de forage. Par contre, l'indice d'écoulement varie en sens inverse par rapport à la contrainte seuil et l'indice de consistance.

Une comparaison entre l'effet du NaCl et du KCl sur le comportement rhéologique du fluide de forage écologique (bentonite-HEC-PEG) a révélé une dégradation des propriétés rhéologiques de ce fluide avec l'augmentation de la concentration de ces deux types du sel. Il est à noter aussi que la réduction de la viscosité apparente est plus importante dans le cas de l'ajout du KCl.

**Mots clés :** Comportement rhéologique, Bentonite Algériennes, Hydroxyéthylcellulose, Polyéthylène glycol, Fluide de forage, Viscoélasticité, Algorithme génétique.

## ملخص

يعتبر السلوك الريولوجي لسوائل الحفر من أهم الخصائص التي يجب معرفتها والتحكم فيها لنجاح عملية الحفر. هذه الأطروحة تهدف إلى دراسة السلوك الريولوجي لسوائل الحفر القائمة على البنتونيت الاتي من الحقول الجزائرية (مستغانم، مغنية) بدون أو مع إضافات مثل: البوليمرات غير الأيونية (هيدروكسي إيثيل سيليلوز والبولي إيثيلين جليكول) والأملاح (كلوريد الصوديوم وكلوريد البوتاسيوم). تم إرفاق القياسات الريولوجية بتحليل الأشعة السينية من أجل تأكيد النتائج المتحصل عليها. تم تحسين العناصر الريولوجية باستخدام تقنيات العلاقة اللاخطية والخوارزمية الجينية.

لاحظنا أن الخصائص الريولوجية تزداد مع زيادة تركيز البنتونيت وهذه الزيادة تكون أكبر في حالة بنتونيت مستغانم، مما يجعله ذو أولوية للتطبيقات في سوائل الحفر. هناك توافق تام في النتائج الريولوجية ونتائج تحليل حجم الجسيمات التي تكشف أن بنتونيت مستغانم يحتوي على نسبة أقل من الرمل (0.13% بالحجم) مقارنة ببنتونيت مغنية (30.96% بالحجم). تمت نمذجة السلوك الريولوجي للهيدروكسي إيثيل سيليلوز بشكل جيد باستخدام نموذج كروس.

أظهرت الاختبارات الريولوجية مقترنة بتحليل الأشعة السينية أنه يتم التحكم في السلوك الريولوجي والثبات للخليط ببنتونيت- هيدروكسي إيثيل سيليلوز من خلال الطبيعة الهيكلية لهذا البوليمر وآليات تفاعله مع جسيمات الطين.

لقد أوضحت التحسينات لعناصر نموذج هرشل-بالكلي أن الخوارزمية الجينية تحدد العناصر الأكثر واقعية مقارنة بالعلاقة اللاخطية خاصة في حالة سوائل الحفر المشكلة بإضافة كلوريد الصوديوم، مما يجعلها تقنية أنسب. بالإضافة إلى ذلك يعطي الاختبار الديناميكي قيم عتبة تدفق أكثر موثوقية. وجدنا أن العناصر الريولوجية لسائل الحفر البيئي (بنتونيت- هيدروكسي إيثيل سيليلوز-بولي إيثيلين جليكول) شديدة الحساسية للظروف المختلفة. تزداد عتبة التدفق ومؤشر الاتساق مع زيادة تركيز الهيدروكسي إيثيل سيليلوز، لتصل إلى أقصى درجة عند درجة حرارة 65 درجة مئوية وتنخفض مع انخفاض الرقم الهيدروجيني وكذلك عند إضافة كلوريد الصوديوم لسائل الحفر. يتغير مؤشر التدفق عكس تغيرات عتبة التدفق ومؤشر الاتساق.

أظهرت المقارنة بين تأثير كلوريد الصوديوم والبوتاسيوم على السلوك الريولوجي لسائل الحفر البيئي حدوث تدهور في الخصائص الريولوجية لهذا السائل مع الزيادة في تركيز كلا نوعي الملح. يلاحظ أيضا أن انخفاض اللزوجة يكون أكبر في حالة إضافة كلوريد البوتاسيوم.

**الكلمات المفتاحية:** السلوك الريولوجي، البنتونيت الجزائري، هيدروكسي إيثيل سيليلوز، بولي إيثيلين جليكول، سائل الحفر، اللزوجة المطاطية، الخوارزمية الجينية.

---

## Abstract

The rheological behavior of drilling fluids has been always considered as a critical aspect to the success of drilling operations, in this fact the control of this behavior was of paramount importance. The aim of this thesis is to study the rheological behavior of bentonite-based drilling fluids with and without additives, such as, nonionic polymers (Hydroxyethyl cellulose and polyethylene glycol) and salts (sodium chloride and potassium chloride). To better understand and reinforce the results obtained in this work, physicochemical composition of bentonite was studied by X-ray diffraction (XRD). The optimization of rheological parameters was carried out using nonlinear regression (Levenberg-Marcquardt algorithm) and genetic algorithm techniques.

It was noticed that the rheological properties increase with increasing in bentonite concentration and this increase is significant in the case of Mostaganem bentonite, consequently Mostaganem bentonite sample is the most suitable sample for water-based fluids applications. These results are further supported by particle size analysis, which reveals that Mostaganem bentonite contains less sand 0.13%vol than Maghnia bentonite 30.96 %vol. The flow curves of hydroxyethyl cellulose solutions were successfully fitted using the Cross model.

The combined rheological and X-ray diffraction tests showed that the changes in the rheological behavior and the stability of the mixture bentonite–HEC are conducted by the structural nature of this polymer and its interaction mechanisms with clay particles.

The optimization of Herschel-Bulkley parameters showed that the genetic algorithm technique provided improved rheological parameters characterization compared to the nonlinear regression, especially in the case of drilling fluids formulated with sodium chloride making it a better choice. Furthermore, the oscillatory test offered more reliable yield stress values. The Rheological parameters of the environmentally friendly drilling fluid (bentonite-hydroxyethyl cellulose-polyethylene glycol) were found to be very sensitive to different conditions. Yield stress and consistency index increased with increasing the hydroxyethyl cellulose concentration, reaching a maximum at a temperature of 65°C and decreased with decreasing pH and also when adding sodium chloride to the drilling fluid. The flow index changed inversely to yield stress and consistency index.

The comparison of the effect of NaCl and KCl on the rheological behavior of the environmentally friendly drilling fluid revealed the degradation of the rheological parameters with increasing salt concentration. It was also noticed that the decrease in viscosity was more important in the case of KCl addition.

**Keywords:** Rheological behavior, Algerian bentonite, Hydroxyethyl cellulose, Polyethylene glycol, Drilling fluid, Viscoelasticity, Genetic algorithm.

## Dédicaces

À mes chers parents

À ma famille

À mes amis.

## Remerciements

Les remerciements contiennent beaucoup de choses qui ne sont dites dans le manuscrit mais qui, pourtant, contribuent énormément au travail de thèse. La liste des personnes que je tiens à remercier à présent est longue, tant du point de vue professionnel que personnel et j'espère donc n'avoir oublié personne. Que ceux qui ne sont pas cités ne m'en veuillent pas...

Ce travail de thèse a été réalisé au Laboratoire Génie Physique des Hydrocarbures (LGPH) de la Faculté des Hydrocarbures et de la Chimie à l'Université M'Hamed Bouguara de Boumerdès.

Tout d'abord, je remercie ALLAH, qui me donne la force et la patience pour réaliser ce travail de thèse.

Je remercie Dr. Mourad GARECHE, mon directeur de thèse, pour son soutien, son aide, ses conseils et pour tout ce que j'ai appris avec lui pendant les trois années de thèse. Merci.

Je dois également remercier le président de jury, Mr Nouredine ZERAIBI, Professeur à l'UMBB, d'avoir participé à la reconnaissance de mon travail. Je remercie aussi les autres membres du Jury Mr Ahmed BENZAOUI, Professeur à l'USTHB, Mr Mohamed MAHFOUD, Professeur à l'USTHB et Mr Abderrahmane MELLAK, Professeur à l'UMBB, pour leurs implications dans mon travail et l'intérêt qu'ils y ont porté. Qu'ils trouvent ici ma gratitude pour la gentillesse d'accepter leurs rôles respectifs.

Je suis profondément reconnaissant à Dr. Reza ROOKI pour sa collaboration afin de réaliser une partie de ma thèse de recherche.

Je tiens à remercier l'ensemble du personnel de l'ENOF et Mr. Khalid DRIS de MI-Swaco Drilling Fluid pour leurs aides afin d'obtenir les matériaux sur lesquels j'ai effectué mes travaux de recherche. Mes remerciements vont aussi à l'équipe de l'Unité de Recherche Matériaux, Procédés et Environnement de l'Université M'Hamed Bouguara de Boumerdès, où j'ai effectué mes analyses de DRX et de granulométrie ; sans oublier de remercier Mr. KHADRAOUI qui m'a aidé à réaliser l'essai FRX.

Mes remerciements vont aussi à M<sup>elle</sup> Nadjat AZRIL, membre de l'équipe de recherche du Laboratoire Génie Physique des Hydrocarbures pour m'avoir consacré un peu de son temps pour les manipulations ; ainsi que le Département Gisements Miniers et Pétroliers pour avoir mis à ma disposition les équipements pour mener à terme mon travail de recherche.

J'aimerais également remercier tous mes collègues (Mohamed El Amine BEN SEGHIER ; Mohamed Abd Elfatah GHRIGA, Abdelkader GUILAL, Menad NAIT AMAR et Yassine FAUDHAILI) pour leur coopération, leur aide et leurs commentaires positifs dans le cadre de mes recherches.

Pour finir, je tiens à exprimer mes remerciements en particulier à mes beaux-parents, à toute ma famille et à mes proches amis (Mohamed CHAKOUR et Youcef CHAKOUR) pour leurs soutiens et leurs encouragements au cours de ce travail.

Merci à tous ceux qui m'ont fait l'honneur d'être à ma soutenance. Je pense en particulier à ma famille, bien sûr, mais également à mes amis qui se sont déplacés.

## Table des matières

<b>Introduction générale</b> .....	1
<b>Chapitre I : Fond et revue de littérature</b>	
I.1. Structure de la bentonite et ses propriétés colloïdales en suspension .....	3
I.1.1. Structure multi-échelle de la bentonite.....	3
I.1.1.1. Le feuillet .....	4
I.1.1.2. La particule primaire .....	5
I.1.1.3. L'agrégat .....	5
I.1.2. Dispersions de bentonite .....	6
I.1.2.1. Hydratation, gonflement et dispersion des feuillets .....	7
I.1.2.2. Rôle des cations interfeuillet.....	8
I.1.3. Interface bentonite-solution aqueuse.....	9
I.1.3.1. Origine des charges de surface de la bentonite .....	9
I.1.3.2. Double couche électrique .....	9
I.1.4. Stabilité des suspensions de bentonite .....	12
I.1.4.1. Théorie de DLVO .....	12
I.1.4.2. Amélioration de la théorie DLVO.....	14
I.1.4.3. Modes d'organisation des particules .....	15
I.2. Polymères et leurs applications dans les fluides de forage .....	17
I.2.1. Hydroxyéthylcellulose .....	17
I.2.2. Application de l'hydroxyéthylcellulose dans les fluides de forage.....	18
I.2.3. Polyéthylène glycol.....	19
I.2.4. Application du polyéthylène glycol dans les fluides de forage.....	19
I.2.5. Polysaccharides et polymères non ioniques en solution aqueuse .....	20
I.3. Interactions dans le système eau-bentonite-polymère .....	23
I.3.1. Mécanisme d'adsorption des polymères sur la surface d'une argile.....	23
I.3.2. Adsorption d'un polymère cationique sur la surface d'une bentonite .....	25
I.3.3. Adsorption d'un polymère anionique sur la surface d'une bentonite .....	25
I.3.4. Systèmes eau-bentonite-polymère non ionique.....	26
I.3.4.1. Cinétique d'adsorption de HEC .....	26
I.3.4.2. Paramètres influençant l'isotherme d'adsorption.....	26
I.3.4.2.1. Effet du poids moléculaire .....	26
I.3.4.2.2. Effet de la concentration en argile.....	27
I.3.4.2.3. Effet du sel.....	28
Références bibliographiques .....	28
<b>Chapitre II : Notions et revue sur la rhéologie des fluides complexes</b>	
II.1. Modèles rhéologiques.....	35

II.1.1. Modèles indépendants du temps .....	35
II.1.2. Modèles dépendants du temps .....	36
II.1.3. Modèles dépendants du temps avec une contrainte seuil.....	37
II.2. Rhéologie des suspensions de bentonite.....	39
II.2.1. Comportement d'écoulement.....	39
II.2.2. Phénomènes de viscoélasticité des suspensions de bentonite.....	40
II.2.2.1. Essai de fluage .....	40
II.2.2.2. Essai oscillatoire .....	43
II.3. Rhéologie de HEC .....	48
II.4. Rhéologie des suspensions bentonite-polymère non ionique .....	49
Références bibliographiques .....	50

### Chapitre III : Matériaux et méthodes expérimentales

III.1. Matériaux .....	54
III.1.1. Bentonite.....	54
III.1.1.1. Composition chimique des deux bentonites .....	55
III.1.1.2. Caractéristique minéralogique des deux bentonites .....	55
III.1.1.3. Analyse granulométrique.....	56
III.1.2. Hydroxyéthylcellulose.....	56
III.1.3. Polyéthylène glycol .....	57
III.1.4. Formulation des fluides de forage .....	57
III.1.4.1. Formulation des suspensions de bentonite .....	57
III.1.4.2. Formulation des solutions aqueuses de HEC .....	59
III.1.4.3. Formulation des suspensions du mélange bentonite-HEC .....	59
III.1.4.3.1. Analyse par diffraction des rayons X des suspensions du mélange bentonite-HEC .....	60
III.1.4.3.2. Variation du pH des suspensions du mélange bentonite-HEC avec la concentration de HEC.....	61
III.1.4.4. Formulation des suspensions du mélange bentonite-HEC-PEG .....	61
III.2. Méthodes de mesures expérimentales .....	64
III.2.1. Mesure au FRX.....	64
III.2.2. Technique de mesure au DRX.....	64
III.2.3. Technique de mesure par granulométrie laser.....	65
III.2.4. Mesure de pH.....	65
III.2.5. Technique de mesure rhéologique .....	65
III.2.5.1. Description de l'appareil de mesure Anton Paar Physica MCR301.....	66
III.2.5.1.1. Viscosité d'un fluide Newtonien dans une géométrie de cylindres coaxiaux.....	67
III.2.5.1.2. Viscosité d'un fluide non-Newtonien dans une géométrie de cylindres coaxiaux .....	68
III.2.5.1.3. Module complexe de cisaillement en déformation imposée.....	69

III.2.5.2. Instabilités pendant les mesures rhéologiques.....	69
III.2.5.2.1. Problème d'évaporation.....	69
III.2.5.2.2. Hétérogénéité du fluide.....	70
III.2.5.2.3. Glissement aux parois.....	70
III.2.5.3. Protocoles expérimentaux .....	70
III.2.5.3.1. Courbes d'écoulement .....	71
III.2.5.3.2. Essais dynamiques .....	71
Références bibliographiques .....	73

## **Chapitre IV : Comportement rhéologique des fluides de forage à base d'eau**

IV.1. Introduction .....	75
IV.2. Etude rhéologique comparative des suspensions de bentonite Algériennes .....	76
IV.2.1. Modélisation rhéologique en régime stationnaire .....	76
IV.2.1.1. Modèle de Papanastasiou .....	77
IV.2.1.2. Comparaison entre les deux modèles (H-B) et (Pap).....	79
IV.2.2. Modélisation rhéologique en régime dynamique .....	81
IV.2.2.1. Balayage en fréquence .....	81
IV.2.2.2. Balayage en temps (suivi cinétique) .....	84
IV.3. Comportement rhéologique des solutions aqueuses de HEC.....	86
IV.3.1. Description des courbes d'écoulement.....	86
IV.3.1.1. Détermination de la viscosité intrinsèque .....	87
IV.3.1.2. Relation entre la viscosité intrinsèque et le poids moléculaire ( $[\eta]-M_w$ ) .....	88
IV.3.1.3. Concentration critique ( $C^*$ ).....	89
IV.3.2. Mesures rhéologiques en régime oscillatoire .....	91
IV.4. Modification de la rhéologie des suspensions de bentonite Algérienne par l'ajout de HEC .....	93
IV.4.1. Effet du HEC sur la contrainte seuil et la viscosité apparente des suspensions de bentonite .....	93
IV.4.2. Effet du HEC sur le module complexe du cisaillement des suspensions de bentonite .....	95
IV.4.3. Effet du HEC sur la structure cinétique des suspensions de bentonite .....	96
IV.4.4. Effet du HEC sur l'espace basal des suspensions de bentonite (essai de DRX) ....	97
IV.5. Conclusion .....	98
Références bibliographiques .....	99

## **Chapitre V : Estimation et amélioration des paramètres rhéologiques d'un fluide de forage écologique en utilisant des méthodes d'optimisation**

V.1. Introduction .....	104
V.2. Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H-B) en utilisant l'AG .....	105
V.2.1. Description de la technique d'AG .....	105
V.2.2. Analyse des données.....	106

---

V.2.3. Résultats et discussion .....	107
V.2.3.1. Effet de la concentration en HEC sur les paramètres rhéologiques de (H-B) estimés en utilisant l'AG .....	107
V.2.3.2. Effet de la température sur les paramètres rhéologiques de (H-B) estimés en utilisant l'AG .....	109
V.2.3.3. Effet du pH sur les paramètres rhéologiques de (H-B) estimés en utilisant l'AG .....	110
V.2.3.4. Effet du NaCl sur les paramètres rhéologiques de (H-B) estimés en utilisant l'AG .....	112
V.2.3.5. Estimation des contraintes seuils des fluides contenant du NaCl utilisant des essais de balayage en contrainte .....	114
V.2.3.6. Comparaison entre les contraintes seuils obtenues à partir des courbes ajustées au modèle de (H-B) utilisant la régression NL et l'AG et à partir des essais oscillatoires .....	116
V.3. Comparaison entre l'effet du NaCl et du KCl sur le comportement rhéologique du fluide de forage écologique .....	118
V.3.1. Effet du KCl sur les paramètres rhéologiques de (H-B).....	118
V.3.2 Effet du NaCl et du KCl sur la viscosité du fluide de forage écologique.....	119
V.4. Conclusion.....	119
Références bibliographiques .....	121
<b>Conclusion générale</b> .....	<b>124</b>
<b>Liste des travaux scientifiques</b> .....	<b>127</b>

---

## Liste des symboles

$A$	Constante de Hamaker
AG	Algorithme génétique
B–Mag	Bentonite de Maghnia
B–Mos	Bentonite de Mostaganem
$C$	Couple imposé sur le cylindre intérieur (Nm)
$C$	Concentration de l'électrolyte (mol/l)
$C_e$	Concentration en polymère du surnageant (mg/l)
$c^*$	Concentration de recouvrement géométrique
$c^{**}$	Deuxième concentration critique
$c^*.[\eta]$	Paramètre de recouvrement critique
CHC	Critical Hydration Concentration
CMC	Carboxyméthyl cellulose
$d$	Distance entre les plaques
$d_{ij}$	Tenseur du taux de déformation
$d_{001}$	Espace interlamellaire (Å)
DLVO	Derjaguin, Landau, Verwey et Overbeek
DRX	Diffraction des rayons X
DS	Degré de substitution
$e$	Charge électrique élémentaire
$E_c$	Energie de cohésion (J.m <sup>-3</sup> )
ENOF	Entreprise Nationale des Substances Utiles et Matériaux non Ferreux
FRX	Fluorescence aux rayons X
$g$	Fonction arbitraire de $d_{ij}$
$G$	Module élastique de rigidité (Pa)
$G'$	Module de conservation (Pa)
$G''$	Module de perte (Pa)
$G_1$	Fonction arbitraire de $d_{ij}$
$G_2$	Fonction arbitraire de $d_{ij}$
$h$	Hauteur du cylindre (m)
H–B	Herschel-Bulkley
HEC	Hydroxyéthylcellulose
hmHEC	Hydroxyéthylcellulose modifié hydrophobiquement
$I$	Force ionique de la solution (mol/l)
$J$	Complaisance élastique (Pa <sup>-1</sup> )
$J_0$	Complaisance instantanée (Pa <sup>-1</sup> )
$J_1$	Complaisance du premier élément (Pa <sup>-1</sup> )
$\Delta J$	Taux de recouvrance
$k$	Constante de Boltzmann
$k$	Indice de consistance (Pa.s <sup>n</sup> )
$k'$	Constante de Huggins
$k^{-1}$	Longueur de Debye (m)
$K$	Inverse de la longueur de Debye (m <sup>-1</sup> )
LP	Loi de puissance
$m$	Exposant de la contrainte (s)
$M$	Masse moléculaire (g/mol)
$n$	Indice d'écoulement
$N$	Nombre de données
$N_A$	Nombre d'Avogadro (mol <sup>-1</sup> )
NL	Régression non linéaire
$p$	Fraction des trains adsorbés
Pap	Papanastasiou
PEG	Polyéthylène glycol
PV	Viscosité plastique (Pa.s)
$R_e$	Rayon extérieur (m)
$R_i$	Rayon intérieur (m)

---

$R^2$	Coefficient de corrélation
SSE	Somme des erreurs aux carrées
$T$	Température absolue
TOC	Total organic carbon
$V$	Volume total de l'échantillon (l)
$V_a$	Potentiel attractif
$V_b$	Potentiel répulsif de Born
$V_r$	Potentiel répulsif
$V_i$	Potentiel total d'interaction
$w$	Pulsation (rad/s).
$z$	Valence des ions de l'électrolyte symétrique
Z-M	Zener-Maxwell
$\delta$	Déphasage
$\varepsilon$	Permittivité du milieu
$[\eta]$	Viscosité intrinsèque (l/g)
$\eta_B$	Viscosité de Bingham (Pa.s)
$\eta_C$	Viscosité de Casson (Pa.s)
$\eta_{inh}$	Viscosité inhérente (Pa.s)
$\eta_m$	Viscosité marche (Pa.s)
$\eta_0$	Viscosité à cisaillement nulle (Pa.s)
$\eta_\infty$	Viscosité à cisaillement infini (Pa.s)
$\eta_r$	Viscosité relative (Pa.s)
$\eta_{red}$	Viscosité réduite (Pa.s)
$\eta_{sol}$	Viscosité du solvant (Pa.s)
$\eta_{sp}$	Viscosité spécifique (Pa.s)
$\eta_1$	Viscosité du premier élément (Pa.s)
$\gamma$	Déformation (%)
$\dot{\gamma}$	Vitesse de cisaillement ( $s^{-1}$ )
$\dot{\gamma}_{crt}$	Taux de cisaillement critique ( $s^{-1}$ )
$\lambda$	Constante caractéristique du temps
$\mathcal{L}(t)$	Paramètre scalaire
$\Omega$	Vitesse angulaire de rotation
$\Psi_\beta$	Potentiel de la couche compacte (volt)
$\Psi_d$	Potentiel de la couche diffuse (volt)
$\Psi_0$	Potentiel électrique de la surface (volt)
$\sigma_\beta$	Densité de la couche compacte
$\sigma_d$	Densité de la couche diffuse
$\sigma_o$	Densité de charge de la surface
$\Gamma$	Quantité de polymère adsorbé (mg/g)
$\tau$	Contrainte de cisaillement (Pa)
$\tau_c$	Contrainte seuil (Pa)
$\tau_i$	Contrainte de cisaillement mesurée (Pa)
$\hat{\tau}_i$	Contrainte de cisaillement prévue (Pa)
$\bar{\tau}_a$	Contrainte de cisaillement moyenne prédite pour chaque formulation (Pa)
$\tau_{ij}$	Tenseur de contrainte déviatorique
$\tau_c(0)$	Contrainte seuil apparente au temps $t=0$
$\tau_c(\infty)$	Contrainte seuil apparente au temps $t \rightarrow \infty$
$\theta_0$	Angle de déformation que subit le matériau
$\theta_1$	Temps de relaxation (s)
$2\theta$	Angle de diffusion
$II$	Deuxième invariant de $d_{ij}$
$III$	Troisième invariant de $d_{ij}$

---

## Liste des tableaux

- Tableau I.1.1. Variation de la longueur de Debye en fonction de la concentration de l'électrolyte
- Tableau II.4.1. Concentrations des additives utilisées pour les tests orthogonaux (D'après Hao, 2011)
- Tableau III.1.1. Composition chimique des deux bentonites de forage utilisées
- Tableau III.1.2. Différents minéraux constituant les deux bentonites
- Tableau III.1.3. Propriétés physico-chimique de l'échantillon de HEC
- Tableau III.1.4. Formulation des fluides de forage à base de bentonite
- Tableau III.1.5. Formulation des solutions aqueuses de HEC
- Tableau III.1.6. Formulation des fluides de forage de bentonite-eau-HEC
- Tableau III.1.7. Formulation des fluides de forage bentonite-eau-PEG-HEC
- Tableau III.1.8. Formulation des fluides de forage contenant du NaCl ou du KCl
- Tableau III.2.1. Caractéristiques du rhéomètre Anton Paar Physica MCR301
- Tableau IV.2.1. Coefficients de corrélation pour les deux modèles.
- Tableau IV.2.2. Estimation des paramètres du modèle de Zenner-Maxwell pour les suspensions de B-Mos et B-Mag.
- Tableau IV.3.1. Paramètres du modèle de Cross des solutions de HEC (0.1–1.0%)
- Tableau IV.3.2. Concentration critique de HEC à différentes vitesses de cisaillement
- Tableau IV.4.1. Paramètres du modèle d'H-B pour les suspensions de mélange bentonite-HEC
- Tableau IV.4.2. Evolution du module élastique des suspensions de mélange bentonite-HEC en fonction de la concentration de HEC
- Tableau V.2.1. Paramètres rhéologiques de (H-B) dérivés à partir des techniques de l'AG et NL pour les formulations S1–S6
- Tableau V.2.2. Paramètres rhéologiques de (H-B) dérivés à partir des techniques de l'AG et NL pour les formulations S7–S10
- Tableau V.2.3. Paramètres rhéologiques de (H-B) dérivés à partir des techniques de l'AG et NL pour les formulations S11–S14
- Tableau V.2.4. Paramètres rhéologiques de (H-B) dérivés à partir des techniques de l'AG et NL pour les formulations S11–S14
- Tableau V.3.1. Paramètres du modèle de (H-B) pour les fluides de forage contenant du KCl

## Liste des figures

- Figure I.1.1. Représentation de la structure de la montmorillonite à différentes échelles (Le Pluart et al., 2004)
- Figure I.1.2. a) Illustration de l'empilement des feuillets d'argile, montrant les surfaces basales, les bordures des particules, ainsi que les espaces interfeuillets (Viallis-Terrisse, 2000). b) Représentation schématique de l'empilement des feuillets unitaires dans une smectite (Luckham et Rossi, 1999)
- Figure I.1.3. Différents types d'empilement des feuillets d'argiles : a) : ordonné ; b) : semi-ordonné ; c) : désordonné
- Figure I.1.4. Différents types d'espaces poreux (Touret et al., 1990)
- Figure I.1.5. Représentation schématique du gel (Jozja, 2003)
- Figure I.1.6. Double couche électrique, a) : Modèle de Gouy-Chapman, b) : Modèle de Stern-Grahame (D'après James et Parks, 1980)
- Figure I.1.7. Evolution de l'énergie d'interaction entre deux particules en fonction de leur distance de séparation (Hiemenz, 1977)
- Figure I.1.8. Evolution de l'énergie d'interaction en fonction de la concentration en électrolyte (Sparks, 1986)
- Figure I.1.9. Modes d'association des feuillets de montmorillonite en suspension : a) dispersion, b) agrégation face-face, c) association bord-face, d) association bord-bord (d'après Van Olphen, 1964)
- Figure I.2.1. Structure d'hydroxyéthylcellulose (Chatterji et Borchardt, 1981)
- Figure I.2.2. Illustration de la différence entre le degré de substitution et la substitution molaire selon Chatterji et Borchardt (1981)
- Figure I.2.3. Représentation schématique de la concentration critique de recouvrement ( $c^*$ ) séparant les domaines dilués ( $c < c^*$ ) et semi-dilués ( $c > c^*$ ) (De Gennes, 1979)
- Figure I.2.4. Viscosité spécifique  $\eta_{sp}$  en fonction du paramètre de recouvrement  $c \cdot [\eta]$  des solutions de HEC et hmHEC. La ligne continue représente la corrélation (I.2.5) pour les solutions de HEC (laschet et al., 2004)
- Figure I.2.5. Les cinq états de solution de polymère en fonction de la masse moléculaire et la concentration de polymère (Bouldin et al., 1988)
- Figure I.3.1. Schéma des différentes séquences d'un polymère adsorbé sur une surface argileuse (Mongondry, 2003)
- Figure I.3.2. Modes de fixation et de configuration des chaînes de polymère sur une surface solide
- Figure I.3.3. Représentation schématique d'un isotherme d'adsorption (Mongondry, 2003)
- Figure I.3.4. Cinétique d'adsorption des systèmes HEC et hmHEC /montmorillonite dans l'eau pure (Simon et al., 2002)
- Figure I.3.5. Dépendance de l'adsorption de l'HEC ( $MS = 2.0$ ) à la masse moléculaire et la salinité de la solution aqueuse (Shah et al., 1985)
- Figure I.3.6. Influence du rapport S/L pour le système hmHEC/montmorillonite dans l'eau et dans 2% NaCl (Simon et al., 2002)
- Figure I.3.7. Influence du sel (NaCl) sur l'isotherme d'adsorption de HEC et hmHEC sur la montmorillonite, (Simon et al., 2002)
- Figure II.2.1. Essai de fluage (contrainte imposée) suivi de recouvrance pour a) solide élastique, b) fluide newtonien, c) matériau viscoélastique
- Figure II.2.2. Schéma illustrant les modèles de : a) Zener-Voigt, b) Zener-Maxwell
- Figure II.2.3. a) La fonction complaisance  $J(t)$  en fonction du temps et pH, b) Taux de recouvrance  $\Delta J$  en fonction du pH calculés en utilisant les données présentées en (a) (D'après Durán et al., 2000)
- Figure II.2.4. Essai oscillatoire pour : a) matériau élastique idéal, b) fluide visqueux idéal (Ferguson et Kembrowski, 1991)
- Figure II.2.5. Essais d'oscillation effectués sur des suspensions de Na-montmorillonite (5%), a) module  $G'$  en fonction de la contrainte appliquée, pour différentes valeurs de pH et fréquence fixée à 1Hz. b) Energie de cohésion en fonction du pH (d'après Durán et al., 2000)
- Figure II.2.6. Essais dynamiques de balayage en déformation pour 6% de bentonite traitée avec  $Na_2CO_3$  à différentes concentrations (2%, 4% et 12%) (D'après Magzoub et al., 2017)

- Figure II.2.7. Essais dynamiques de balayage en déformation pour 3 et 6% de bentonite traitée avec  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  avec un chauffage et une agitation d'une durée de 24h (D'après Magzoub et al., 2017)
- Figure II.2.8. Essais de balayage en fréquence pour 3% de bentonite traitée avec un chauffage et une agitation d'une durée de 24h (D'après Magzoub et al., 2017)
- Figure II.3.1. Viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les solutions de HEC (D'après Oppong et de Bruyn, 2010)
- Figure II.4.1. Les facteurs affectant les paramètres rhéologiques du fluide de forage : (a) variation de PV en fonction de la concentration des additifs, (b) variation de YP en fonction de la concentration des additifs, (c) variation de  $\eta_m$  en fonction de la concentration des additifs (D'après Hao, 2011)
- Figure III.1.1. Echantillons de bentonite Algériennes : a) de Mostaganem (B-Mos), b) de Maghnia (B-Mag)
- Figure III.1.2. Diffraction des rayons X (DRX) de : a) B-Mos, b) B-Mag
- Figure III.1.3. Distribution granulométrique des particules de B-Mos et B-Mag.
- Figure III.1.4. Poudre du polymère HEC utilisé
- Figure III.1.5. Polyéthylène glycol
- Figure III.1.6. Fluide de forage formulé en utilisant des suspensions de B-Mag, 3 et 4 wt% présentant le phénomène de sédimentation après un temps de repos
- Figure III.1.7. a) Suspension de B-Mos à 2 wt% présentant une sédimentation de particules vers le fond du flacon.  
b) Suspension de B-Mos à 8 wt% formant un gel consistant
- Figure III.1.8. Concentrations des suspensions de B-Mos étudiées de gauche à droite : 3, 4, 5, 6 et 7 wt%
- Figure III.1.9. Solutions aqueuses de HEC avec des concentrations de 0.1, 0.5 et 1.0 wt%
- Figure III.1.10. Suspensions de mélange bentonite-HEC avec des concentrations de HEC de gauche à droite : 0.05, 0.15 et 0.2 wt%
- Figure III.1.11. Suspensions du mélange bentonite-HEC étudiées après séchage de concentrations de HEC de gauche à droite : 0.02, 0.05, 0.10, 0.15 et 0.20 wt%
- Figure III.1.12. Variation du pH des suspensions de bentonite-HEC en fonction de la concentration de HEC
- Figure III.1.13. Suspension du fluide de forage écologique la plus utilisée (3% B-Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC)
- Figure III.1.14. Fluide de forage écologique (3% B-Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC) contenant de 1.5% du NaCl après séchage
- Figure III.2.1. DRX Phillips-Xpert Pro-
- Figure III.2.2. Mastersizer-2000-, Malvern Instrument-Ltd UK-
- Figure III.2.3. pH mètre HANNA instruments, HI 2211
- Figure III.2.4. a) Rhéomètre Anton Paar Physica MCR301, b) Géométrie de cylindres coaxiaux
- Figure III.2.5. Géométrie de cylindres coaxiaux
- Figure III.2.6. Courbes de viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement des solutions de HEC établies à l'aide de deux protocoles expérimentaux différents
- Figure III.2.7. Courbes de viscosité en fonction de la contrainte de cisaillement des solutions de HEC montrant les deux régimes linéaires et non linéaires
- Figure IV.2.1. Ajustement des courbes d'écoulement par le modèle de (H-B) : a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag
- Figure IV.2.2. Ajustement des courbes d'écoulement par le modèle de (Pap): a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag
- Figure IV.2.3. Evolution de la déformation en fonction de la contrainte de cisaillement : a) pour les suspensions B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag
- Figure IV.2.4. Evolution des paramètres des deux modèles en fonction de la concentration en bentonite : a) paramètres du modèle (H-B), b) paramètres du modèle (Pap)
- Figure IV.2.5. Comparaison des contraintes seuils obtenues expérimentalement et à partir des deux modèles des suspensions de B-Mos et B-Mag
- Figure IV.2.6. Décomposition schématique de l'écoulement des suspensions de B-Mos et B-Mag
- Figure IV.2.7. Balayage en contrainte pour différentes concentrations : a) suspensions de B-Mos, b) suspensions de B-Mag
- Figure IV.2.8 : Balayage en fréquence pour différentes concentrations : a) suspensions de B-Mos, b) suspensions de B-Mag
- Figure IV.2.9. Ajustement des courbes de balayage en fréquence par le modèle de (Z-M) : a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag

- Figure IV.2.10. Suivi cinétique des suspensions de B–Mos : a) 3%, b) 4–7%
- Figure IV.2.11. Suivi cinétique des suspensions de B–Mag (3 à 7%)
- Figure IV.3.1. Courbes de viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour les solutions de HEC (0.1 – 1.0%) corrélées par le modèle de Cross
- Figure IV.3.2. Détermination de la viscosité intrinsèque de l'échantillon de HEC utilisant les viscosités réduite et inhérente
- Figure IV.3.3. Viscosité spécifique en fonction du paramètre de recouvrement pour différentes concentrations de HEC
- Figure IV.3.4. Concentration critique de HEC à une vitesse de cisaillement de  $215 \text{ s}^{-1}$
- Figure IV.3.5. a) Courbes de balayage en fréquence des solutions de HEC pour différentes concentrations, b) Evolution des modules de conservation et de perte en fonction de la concentration de HEC à différentes fréquences
- Figure IV.4.1. Courbes d'écoulement du mélange bentonite–HEC ajustées par le modèle de (H–B)
- Figure IV.4.2. Evolution de la viscosité apparente du mélange bentonite–HEC en fonction de la concentration de HEC
- Figure IV.4.3. Evolution du module complexe de cisaillement en fonction de la fréquence du système bentonite–HEC
- Figure IV.4.4. Cinétique de structuration pour les suspensions de mélange bentonite–HEC
- Figure V.2.1. Organigramme de l'algorithme génétique
- Figure V.2.2. Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l'aide de la méthode de régression NL et l'AG pour les formulations S1–S6
- Figure V.2.3. Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l'aide de la méthode de régression NL et l'AG pour les formulations S7–S10
- Figure V.2.4. Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l'aide de la méthode de régression NL et l'AG pour les formulations S11–S14
- Figure V.2.5. Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l'aide de la méthode de régression NL et l'AG pour les formulations S15–S18
- Figure V.2.6. Estimation de la contrainte seuil en utilisant des essais oscillatoires pour les formulations S5 et S15–S18 à une fréquence de  $10 \text{ rad/s}$
- Figure V.2.7. Comparaison des contraintes seuils obtenues à partir la régression NL et l'AG pour le premier groupe (S1–S14)
- Figure V.3.1. Effet de la concentration du NaCl et du KCl sur la viscosité du fluide de forage écologique (B–Mos + HEC + PEG)

## Introduction générale

L'exploitation des hydrocarbures à partir des gisements conventionnels et non conventionnels nécessite une opération de forage du puits, qui représente un processus technique difficile. La difficulté de ce processus se manifeste généralement dans les divers problèmes rencontrés, dont la résolution présente un défi technique et économique.

La technique de forage la plus utilisée dans l'industrie pétrolière est le forage rotary. Ce dernier exige l'utilisation d'un fluide de forage. La sélection d'un fluide de forage adéquat et qui répond aux différentes exigences est l'un des déficits que peut rencontrer l'ingénieur de boue et également le superviseur de forage. Pour réaliser le meilleur choix possible, des considérations économiques et environnementales doivent être prises en compte. Le souci de la prise en compte des aspects environnementaux dans la formulation du fluide de forage pour éliminer le risque de contamination du milieu naturel est sans conteste un élément novateur dans le domaine de recherche.

Le fluide de forage utilisé dans les champs pétroliers et gaziers est souvent un fluide non-Newtonien, possédant des propriétés rhéologiques qui peuvent être varier selon les interactions entre ce fluide et les différentes formations géologiques traversées. Le contrôle de ces propriétés rhéologiques est d'une grande importance, par conséquent, la contribution fiable que doit disposer un chef de forage, doit répondre non seulement aux exigences économiques et environnementales, mais aussi à l'obtention d'un fluide de forage plus performant d'un point de vue rhéologique.

Pour répondre aux différentes exigences citées ci-dessus, les ingénieurs de boue utilisent généralement un fluide de forage à base d'eau du fait qu'un fluide de forage à base d'huile est néfaste pour l'environnement. Les fluides de forage à base d'eau peuvent contenir comme composantes, la bentonite, les polymères, les sels et autres additifs selon la nécessité. Le mélange de ces composantes forme une suspension colloïdale. La mise en œuvre de ces dernières nécessite le contrôle de leur métastabilité et leur écoulement, ce qui fait appel à l'étude des différents comportements rhéologiques. Dès que les propriétés rhéologiques classiques (propriétés dans le domaine où les gradients de vitesse sont assez élevés) des fluides de forage sont bien décrits, le développement de forages complexes (forage en offshore, forage dévié et horizontal) rend nécessaire la compréhension et le contrôle de ces propriétés aux bas gradients de vitesse.

À cet égard, mon travail de thèse a pour objectif de contribuer à la connaissance de la structure de ces systèmes (suspensions de bentonite) au travers de l'investigation de l'influence de différents paramètres (concentration, force ionique, temps...etc.) mais également de la modulation des interactions entre particules par l'introduction des polymères. La caractérisation de ces systèmes passe avant tout par une étude expérimentale suivie de la modélisation au moyen d'outils mathématiques qui repose sur l'optimisation utilisant la régression non linéaire

et les méthodes évolutionnistes en vue de prédire et de déterminer les lois régissant le comportement physico-chimique de tels systèmes. Pour ce faire, le manuscrit est divisé en cinq chapitres :

Les deux premiers chapitres présentent un état de connaissance d'un point de vue théorique et expérimental : sur la microstructure de la bentonite et leurs propriétés en suspension colloïdale, sur les polymères utilisés dans les fluides de forage, sur les interactions dans le système argile-eau-polymère et sur la rhéologie de ces fluides complexes.

Le troisième chapitre décrit en détail les différents matériels qu'on a utilisé dans le cadre de cette thèse ainsi que les méthodes et les protocoles expérimentaux au cours des formulations de fluide de forage et les campagnes de mesures rhéologiques menées en régime stationnaire et dynamique.

Le chapitre 4 aborde la partie expérimentale de notre travail. Il consiste à étudier : la rhéologie des suspensions de bentonite Algériennes (bentonite de Mostaganem et de Maghnia), la rhéologie des solutions aqueuses d'hydroxyéthylcellulose (HEC) puis l'effet de l'ajout de ce dernier polymère sur le comportement rhéologique des suspensions de bentonite. Les résultats de la rhéométrie sont couplés à des analyses par diffraction des rayons X en vue de mieux comprendre le comportement de ces suspensions.

La partie expérimentale est achevée par le cinquième chapitre qui fait l'objet d'une optimisation en vue d'améliorer les propriétés rhéologiques du fluide de forage formulé à partir de la bentonite de Mostaganem (B-Mos) et le polymère HEC, en présence du polyéthylène glycol (PEG) qui sert à contrecarrer des phénomènes perturbateurs de la rhéologie. L'optimisation des paramètres rhéologiques est faite en utilisant les techniques de régression non linéaire et de l'algorithme génétique. Ces deux techniques sont aussi utilisées pour déterminer l'évolution des paramètres du modèle d'Herschel-Bulkley quand le fluide formulé est subit à différentes températures, différentes valeurs du pH et quand celui-ci est contaminé par le sel. Le chapitre se compose aussi d'une étude comparative entre l'effet des deux types du sel (chlorure de sodium et de potassium) sur les paramètres rhéologiques du fluide de forage qu'on appelle fluide écologique et qui se compose de la B-Mos, du HEC et du PEG.

Enfin, l'étude se termine par une conclusion qui synthétise les résultats obtenus et discute l'adaptation de la formulation proposée pour des applications pratiques sous les différentes contraintes rencontrées dans le domaine du forage.

## Chapitre I

### Fond et revue de la littérature

#### I.1. Structure de la bentonite et ses propriétés colloïdales en suspension

La bentonite qui fait l'objet de notre travail est un type d'argile, constituée de plusieurs minéraux dont le principal est la montmorillonite (familles des smectites). A la montmorillonite, peuvent y être associés d'autres minéraux tels que l'illite et/ou la kaolinite.

Grace à sa grande capacité de gonflement et ses excellentes propriétés physicochimiques et rhéologiques, la bentonite est utilisée dans plusieurs secteurs industriels tels que l'industrie pétrolière ou elle représente le composant principal des fluides de forage à base d'eau. Ces propriétés de gonflement dépendent étroitement de la nature du cation compensateur ([Gridi-Bennadji et al., 2012](#)).

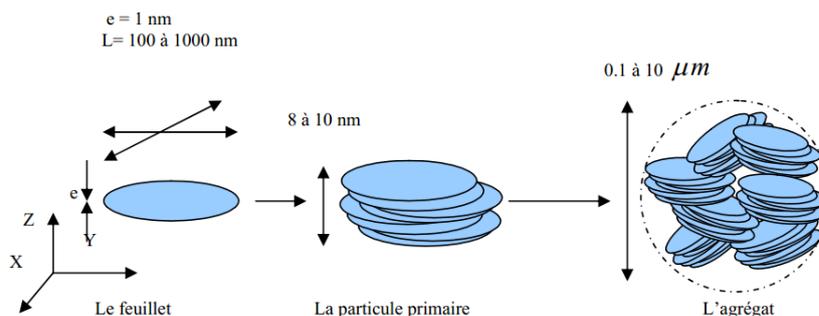
En géologie, la bentonite représente une roche volcanique. Il y a des millions d'années que cette roche s'est déposée dans des eaux douces ou salées sous forme de cendres volcaniques qui se sont modifiées chimiquement en bentonite. A partir de la nature d'eau dans laquelle se dépose la roche volcanique, on distingue la bentonite sodique qui résulte à partir des cendres déposées dans l'eau de mer et la bentonite calcique qui est formée par des cendres déposées dans l'eau douce. Il peut y avoir aussi, une bentonite qui dérive de l'altération des roches siliceuses comme le basalte et le granite ([Duchet et al., 2004](#)).

Les gisements de bentonite les très importants en Algérie se trouvent dans la partie ouest (l'oranie). Particulièrement, on relève la carrière de Maghnia (Hammam Boughrara) dont les réserves actuelles sont estimées à 8,2 millions de tonnes ([Bakhti, 2005](#)) et celle de Mostaganem (M'zila) avec des réserves de deux millions de tonnes ([Abdelouhab et al., 1988](#)).

##### I.1.1 Structure multi-échelle de la bentonite

Pour décrire la structure de la bentonite à différentes échelles, nous adressons dans ce paragraphe à une étude bibliographique globale sur cette structure. Etant donné que la montmorillonite est le composant majeur dans une bentonite, notre bibliographie est accentuée sur ce minéral.

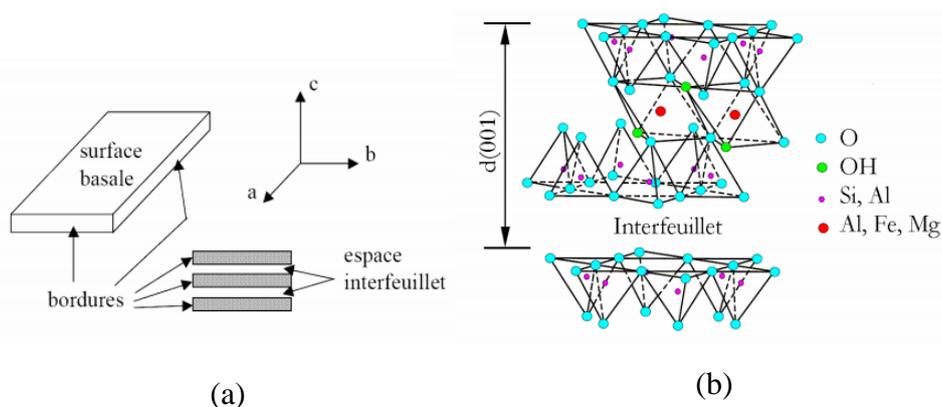
La description de la structure de la montmorillonite à différentes échelles est rendue possible par l'utilisation de techniques expérimentales telles que la Diffusion aux Petits Angles des Rayons X (DPAX) ([Pons, 1980](#)), la Microscopie Electronique à Transmission et à Balayage (MET, MEB). Selon plusieurs auteurs, trois unités structurales composent la phase solide des systèmes argileux et en particulier les montmorillonites. [Le Pluart et al., \(2004\)](#) ont proposé une échelle d'observation des trois niveaux d'organisation ce qu'on a repris sur la **figure I.1.1**.



**Figure I.1.1** : Représentation de la structure de la montmorillonite à différentes échelles (Le Pluart et al., 2004).

### I.1.1.1 Le feuillet

La nature minéralogique, l'appartenance au type d'argile, les propriétés physico-chimiques et le comportement macroscopique, tout ça peuvent être définis par des unités structurales de base appelées feuillets. Le feuillet est assimilable à une plaquette ou un disque, ayant des dimensions latérales de l'ordre du micron et une épaisseur d'un nanomètre à peu près. L'une des caractéristiques de ces plaquettes est qu'elles sont souples et relativement déformables. Selon la localisation des substitutions et le taux d'occupation des couches octaédriques, la charge d'un feuillet varie de 0.2 à 0.6 électron par maille pour la famille des smectites. Une charge d'environ de 0.3 à 0.4 électron par maille est possédée par la montmorillonite (Le Pluart, 2002). La composition des feuillets englobe des atomes de silicium, oxygène, aluminium et magnésium. Des substitutions isomorphiques peuvent se produire aléatoirement dans les feuillets, ce qui entraîne un déficit de charge, qui est compensé à l'extérieur du feuillet par des cations compensateurs. Pour la montmorillonite, les cations compensateurs qui peuvent exister à la surface des feuillets sont généralement des ions de calcium ou de sodium. Les deux bentonites employées dans notre étude sont de nature de cations différente tel que la bentonite de Mostaganem est une bentonite sodique ce qui veut dire que les cations compensateurs sont de type ( $\text{Na}^+$ ) tandis que la bentonite de Maghnia est une bentonite calcique autrement dit, cette bentonite contient les deux types de cations compensateurs ( $\text{Na}^+$  et  $\text{Ca}^{2+}$ ).

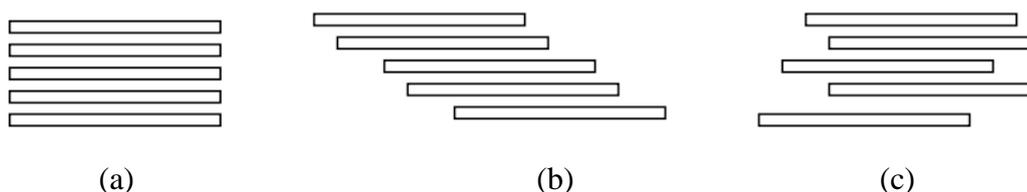


**Figure I.1.2** : (a) Illustration de l'empilement des feuillets d'argile, montrant les surfaces basales, les bordures des particules, ainsi que les espaces interfeuillets (Viallis-Terrisse, 2000). (b) Représentation schématique de l'empilement des feuillets unitaires dans une smectite (Luckham et Rossi, 1999).

### I.1.1.2 La particule primaire

La particule primaire constitue le premier niveau d'organisation et elle est composée d'une association régulière de cinq à dix feuillets, identiques et parallèles à leur plan de base. Les forces de cohésion entre feuillets sont plus faibles que celles existant au sein du feuillet. Si on considère les principales espèces minéralogiques, la structure de la particule observée dans un plan perpendiculaire au plan des feuillets montre qu'elle peut être se présenter suivant trois grands types d'empilements (**Fig. I.1.3**) :

- Empilement ordonné, c'est-à-dire que les feuillets sont empilés les uns sur les autres dans un ordre parfait.
- Empilement semi-ordonné (ou désordre translationnel), ou les feuillets sont séparés par quelque molécules d'eau et l'épaisseur de la particule est variable et dépend du degré d'hydratation.
- Empilement désordonné (ou désordre turbostratique), dans ce cas les feuillets sont séparés par un film d'eau permettant une libre rotation autour d'un axe perpendiculaire au plan de la particule (Pons, 1980 ; Pedro, 1994).



**Figure I.1.3** : Différents types d'empilement des feuillets d'argiles : (a) : ordonné ; (b) : semi-ordonné ; (c) : désordonné.

Les particules sont désignées par un nombre important de termes. Mering et Oberlin (1971) ont appelé, Le plus petit élément cristallin (le plus petit volume cohérent) qui produise des interférences dans un phénomène de diffraction X par la particule primaire. L'association de plusieurs particules primaires constitue la particule plus grossière, obtenue après une dispersion dans certaines conditions, elle a été désignée par les mêmes auteurs par le terme de "particule libre".

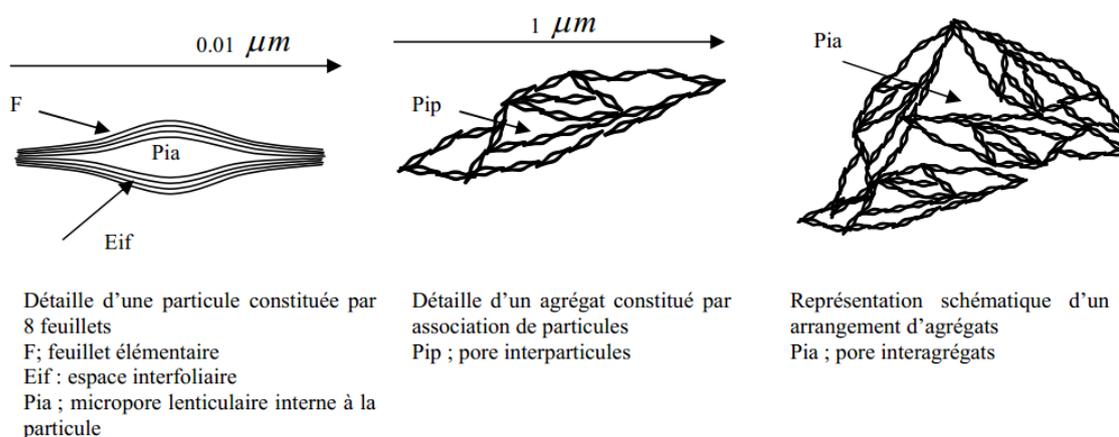
### I.1.1.3 L'agrégat

L'association des particules primaires orientées dans toutes les directions constitue ce qui est désigné sous le nom d'agrégat. Ce dernier a une taille qui varie entre 0.1 et 10 microns comme l'indique la **figure I.1.1** (Le Pluart, 2002). En outre, il s'agit d'un assemblage de particules dont l'arrangement est gouverné par le type de forces résultant des interactions entre particules (et du degré de compaction). En effet, lorsque les forces répulsives sont dominantes, les particules s'orientent parallèlement et la structure est dite dispersée. Ces particules s'assemblent au sein d'agrégats, plus au moins denses selon la texture et le nombre des particules, ainsi que les distances entre celles-ci.

On en déduit que l'organisation de la microstructure de la bentonite (du feuillet à l'assemblage d'agrégats) ne peut être interprétée que si l'organisation de l'espace poral est prise en considération. La dimension, la forme et la distribution des espaces poraux dépendent de la

granulométrie de l'argile, de son caractère gonflant et aussi du fluide interstitiel et des contraintes auxquelles la bentonite est soumise. Trois types d'espaces liés à l'organisation de la phase solide dans des argiles sont décrit par [Touret et al., \(1990\)](#), (**Fig. I.1.4**) :

- L'espace qui sépare deux feuillets dans un empilement, appelé notamment espace interfoliaire. Il a une épaisseur moyenne comprise entre 1.5 et 2.5 nm et il est généralement occupé par les couches d'eau adsorbée (1 à 4) et des cations échangeables.
- L'espace qui sépare les particules argileuses qui forment les agrégats, nommé espace interparticulaire. Pour une argile fortement compactée, cet espace est susceptible de diminuer jusqu'à atteindre la valeur de l'espace interfoliaire ([Pusch, 1982](#)).



**Figure I.1.4** : Différents types d'espaces poreux ([Touret et al., 1990](#)).

- Un espace ayant une section moyenne comprise entre 1.6 et 16 nm où l'eau circule librement (eau libre) limitant les effets électrostatiques de la double couche, appelé espace interagrégat.

### I.1.2 Dispersions de bentonite

Dans un premier temps, nous avons caractérisé le système bentonite-eau. Le groupe de smectite y compris la bentonite est susceptible d'adsorber une grande quantité d'eau. Ces molécules d'eau peuvent pénétrer dans les espaces interfoliaires grâce à la granulométrie fine des particules ainsi que la présence de charges à la surface des feuillets qui vont contribuer à accentuer les interactions bentonite-eau. Pour comprendre ce phénomène d'ordre capillaire, on s'intéresse à l'échelle des particules où les feuillets sont séparés par un nombre variable de couches d'eau (entre 0 et 4) et des pores lenticulaires de l'ordre de 30 à 50 Å ([Touret et al., 1990](#)). Les particules sont plus ou moins épaisses, selon la nature du cation compensateur et les propriétés physico-chimiques de la bentonite. Une quantité d'eau, relativement importante, sépare les particules les unes des autres, mais ces dernières ne sont cependant pas indépendantes. Du fait de la très grande étendue des feuillets dans leur plan et des forces d'attraction interfeuille, il se forme des connections entre particules par rapprochement de deux zones de feuillets extérieurs à deux particules adjacentes, ou par interaction entre feuillets ([Luckham et Rossi, 1999](#)). Comme il est mentionné précédemment, des particules ainsi connectées forment des agrégats ou des super-agrégats suivant la densité des suspensions. Cette organisation en particules est caractéristique d'un milieu granulaire.

Lorsque l'hydratation se poursuit par le gonflement, voire la dispersion des particules, on désigne la suspension résultante sous le nom de gel (Norrish, 1954; Ben Rhaiem et al., 1986). Ces gels sont caractérisés par des particules très lâches constituées d'un nombre faible de feuillets (en moyenne 5) voire des feuillets isolés, situés à des distances allant de 30 à quelques centaines d'Å (Fig. I.1.5). L'ensemble forme un réseau très souple, aux propriétés importantes de viscosité et de thixotropie (Glaeser, 1953; Jozja, 2003).

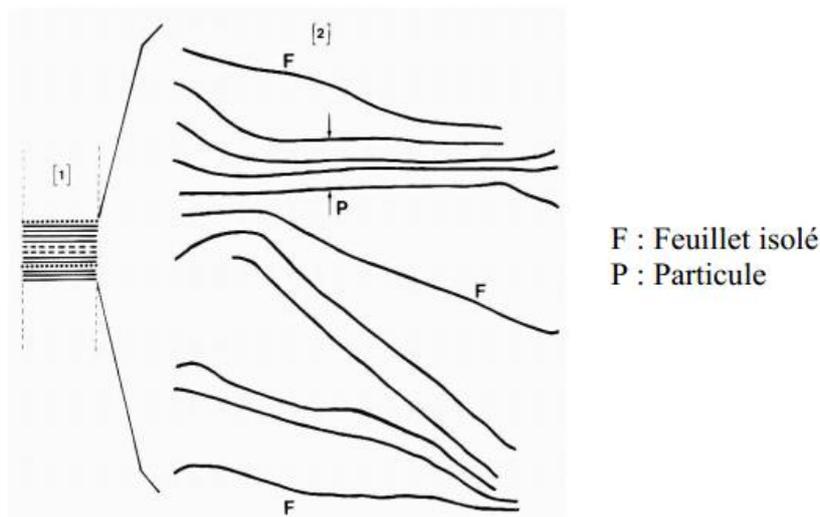


Figure I.1.5 : Représentation schématique du gel (Jozja, 2003).

### I.1.2.1 Hydratation, gonflement et dispersion des feuillets

Le caractère gonflant de la bentonite lui permet de former un solide hydraté, un gel et/ou une suspension plus ou moins stable. Différentes études ont traité en détail ce comportement (Norrish, 1954; Swartzen-Allen et Matijevic, 1974; Van Olphen, 1977; Luckham et Rossi, 1999).

La compréhension du phénomène du gonflement permet de distinguer deux échelles différentes : (i) une dispersion interparticulaire où la pénétration des molécules d'eau est localisée entre les particules élémentaires ; (ii) une hydratation interfeuillets où la pénétration des molécules d'eau est localisée entre les feuillets qui constituent une particule (Hendricks et al., 1940; Pons, 1980).

Le phénomène d'hydratation interfeuillet qui signifie la pénétration des molécules d'eau dans les espaces interfoliaires augmente le volume et par la suite, une pression de gonflement est apparue. Des études par diffraction des rayons X réalisées sur des phyllosilicates hydratés sous pression relative contrôlée ont montré que l'eau pénétrée s'y organise en couches moléculaires planes (Ben Brahim, 1985). Il peut y avoir d'une à quatre couches d'eau en fonction de la quantité d'eau entre les feuillets. La capacité d'adsorption ou de gonflement est liée à la charge du réseau cristallin, à la nature des contre-ions, aux énergies d'hydratation mises en jeu, à la force ionique du milieu environnant et à la quantité d'eau totale.

À travers une succession de travaux antérieurs effectués sur les phyllosilicates en général et la montmorillonite en particulier (Hendricks et al., 1940; Norrish, 1954; Pons, 1980; Ben Rhaiem et al., 1986; Bérend, 1991), il a été établi que les propriétés d'hydratation, de gonflement et de

dispersion n'existent que parce que l'énergie de cohésion interfoliaire est suffisamment faible pour que les molécules d'eau puissent pénétrer entre les feuillets. En conséquence, l'hydratation devrait être limitée à quelques couches d'eau lorsque la cohésion reste élevée. C'est le cas d'une montmorillonite calcique (montmorillonite-Ca), pour laquelle l'énergie attractive est inférieure à l'énergie cohésive dès l'adsorption de la deuxième couche d'eau. En revanche, lorsque la cohésion interfeuillets devient très faible devant l'énergie attractive dans un système, le nombre de couches d'eau insérées peut devenir très élevé, ce qui conduit, comme dans le cas de la montmorillonite sodique (montmorillonite-Na), à la dispersion des feuillets (Pons et al., 1981; Ben Rhaïem et al., 1986).

Dans la littérature, deux modes de gonflement d'une montmorillonite peuvent être distingués :

- (i) **Gonflement cristallin**, dans ce cas-là, on parle également du gonflement en présence d'eau vapeur. Ce type permet d'augmenter la distance interfoliaire de 9.6 à 20 Å. Il est directement lié au nombre de couches d'eau adsorbées entre les feuillets. Le phénomène de gonflement est réduit à ce mécanisme dans le cas d'une montmorillonite-Ca.
- (ii) **Gonflement osmotique**, c'est un gonflement libre qui se produit lorsque l'énergie d'hydratation est suffisante pour franchir la barrière de potentiel due aux forces électrostatiques attractives entre feuillets. Au-delà de la deuxième couche d'eau adsorbée à la surface d'un feuillet, l'eau perd ses propriétés d'eau liée et devient de l'eau libre. Ce type de gonflement est souvent rencontré dans le cas d'une montmorillonite-Na, ou il résulte de la formation d'une couche diffuse. Le gonflement osmotique est dû à la différence de concentration entre la solution interne ( $\text{Na}^+$  dans l'espace interfeuillet) et externe, avec une concentration inférieure en  $\text{Na}^+$ . Cause de la fixation électrostatique de  $\text{Na}^+$ , cette différence ne peut être compensée que par une quantité supplémentaire d'eau entrant dans l'espace interfeuillets (Egloffstein, 2001; Kozaki et al., 2005).

### I.1.2.2 Rôle des cations interfeuillet

Le gonflement n'est en fait observé que sous des conditions bien précises, dépendant du couple matériau-cation compensateur. Il ressort des études ultérieures (Méring et Glaeser, 1954; Norrish, 1954; Suquet, 1978; Ben Rhaïem et al., 1986; Touret et al., 1990; Faisandier, 1997) qu'il existe deux groupes de cations compensateurs:

- Des cations permettant une dispersion maximum pour la montmorillonite mais également pour tous les phyllosilicates présentant des propriétés d'hydratation. Ce sont les cations :  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$  et  $\text{Ag}^+$ .
- Des cations ne permettant qu'une hydratation limitée à quelques couches d'eau (2-4 suivant le type du minéral) qui sont :  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ .

L'étude faite par Norrish (1954), a relié le gonflement des particules argileuses à l'hydratation des cations en classant ces derniers par valeur décroissante de leur énergie d'hydratation réduite. Cette étude a révélé le classement suivant :  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$  et en dernier  $\text{Cs}^+$ . Il est évident que ce classement est logique mais le problème est le  $\text{K}^+$ , qui tantôt se comporte comme  $\text{Na}^+$  et tantôt comme  $\text{Ca}^{2+}$ . Une étude est faite plus tard par Faisandier (1997), a montré que le

potassium provoque la formation d'un système hétérogène où coexistent, au sein d'une même particule, des feuillets de smectite hydratés et des feuillets collapsés (distance à 10 Å). En plus, d'autres travaux ont montré que la présence de certains métaux ou cations d'un grand rayon ionique pouvaient diminuer le gonflement interfoliaire (Bereket et al., 1997; Aboiroux, 1998; Kozaki et al., 1999).

### I.1.3 Interface bentonite-solution aqueuse

#### I.1.3.1 Origine des charges de surface de la bentonite

Lorsqu'une argile, y compris la bentonite est mise en solution aqueuse, elle va présenter une charge électrique de surface, cette dernière résulte :

- soit de la charge permanente (défauts de la structure cristalline)
- soit de la dissociation des groupes superficiels, principalement les aluminols AlOH ou les silanols SiOH (tout dépend du pH).

La charge dite structurale permanente est la résultante des défauts de la structure cristalline proviennent principalement de substitutions isomorphiques dans le réseau :  $\text{Si}^{4+}$  est remplacé par  $\text{Al}^{3+}$  dans la couche tétraédrique et  $\text{Al}^{3+}$  par  $\text{Mg}^{2+}$  ou  $\text{Fe}^{2+}$  dans la couche octaédrique. Cette charge permanente est indépendante du pH, et elle est localisée principalement sur les surfaces basales.

Par contre, sur les surfaces latérales des argiles, à la rupture des feuillets, les groupements hydroxydes -OH sont associés aux atomes de silicium et d'aluminium constitutifs du réseau cristallin. Au contact de l'eau, selon les conditions de pH, ces sites amphotères peuvent devenir positifs par adsorption d'un proton ou négatifs par dissociation. Ils donnent lieu à la charge dépendante du pH (Poirier, 1984).

D'une façon générale, la charge superficielle des argiles dépend du pH. Mais, cette dépendance reste liée au taux de substitution isomorphique, c'est-à-dire, si ce taux est faible la dépendance est plus marquée comme c'est le cas pour la kaolinite, contrairement à la montmorillonite, dont la charge provient principalement de substitutions isomorphiques. La double-couche électrique se crée par la compensation de la charge superficielle par des ions de signe contraire provenant de la solution s'accumulant au voisinage de la surface de la particule.

#### I.1.3.2 Double couche électrique

Dans le but de décrire la distribution des ions à partir de la surface du solide chargé jusqu'au sein de la solution, la théorie de la double couche électrique a été établie.

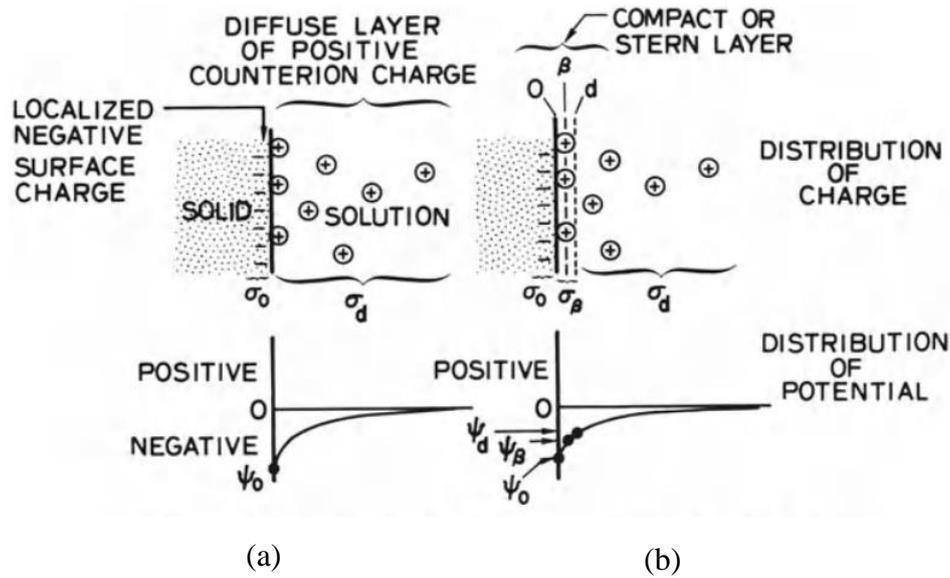
Dans un premier temps, Gouy-Chapman (1917), a présenté une image de la double couche, il a supposé que cette dernière se développe en raison de la présence d'une charge extérieure qui est compensée près de l'interface par la distribution inégale des contre ions et des co-ions. À l'interface, il y aura un excès des contre ions et une quantité insuffisante des co-ions. Cette image de la double couche est désignée sous le nom « de la double couche diffuse ».

Dans un second temps, Stern (1924) et Grahame (1947) ont mis en évidence l'existence d'une couche compacte entre la surface chargée et la couche diffuse, appelée aussi couche interne ou couche de Stern, dans laquelle se trouvent les ions adsorbés (Fig. I.1.6). La couche compacte

de Stern se trouve à une distance  $\beta$  depuis la surface, cette distance correspond approximativement au rayon ionique des anions et au rayon d'hydratation des cations adsorbés.

De cette façon, Stern a défini un potentiel ( $\psi_\beta$ ) au centre de la première couche fixe, ce potentiel peut être proche du potentiel électrocinétique mesurable ou du potentiel zêta.

La modification qui a été introduite par Stern-Grahame a conduit à relier les densités de charge des couches ( $\sigma_0$  densité de charge de la surface,  $\sigma_\beta$  de la couche compacte,  $\sigma_d$  de la couche diffuse) aux différences de potentiel entre couches ( $\Psi_0$  potentiel électrique de la surface,  $\Psi_\beta$  de la couche compacte,  $\Psi_d$  de la couche diffuse) par des équations déduites en faisant une analogie entre les différentes couches chargées et les plaques planes et parallèles de condensateurs électriques disposés en série.



**Figure I.1.6:** Double couche électrique, (a) : Modèle de Gouy-Chapman, (b) : Modèle de Stern-Grahame (D'après James et Parks, 1980).

Prenant le modèle de Gouy-Chapman, les équations reliant les charges et les potentiels en se basant sur cette hypothèse : la charge de surface est compensée par celle des ions de la couche diffuse, sont les suivantes:

$$\sigma_0 + \sigma_d = 0 \quad (\text{I.1.1})$$

$$\sigma_d = -(8C\epsilon kT)^{1/2} \sinh\left(\frac{ze\Psi_0}{2kT}\right) = -0.1174(C)^{1/2} \sinh(19.4380z\Psi_0) \quad (\text{I.1.2})$$

Avec :  $C$  : Concentration de l'électrolyte (mol/l)

$\epsilon$  : Permittivité du milieu

$k$  : Constante de Boltzmann

$T$  : Température absolue (25°C pour l'application numérique)

$z$  : Valence des ions de l'électrolyte symétrique

$e$  : Charge électrique élémentaire

$\Psi_0$  : Potentiel de surface (volt).

Une longueur de Debye,  $k^{-1}$  (Eq. I.1.3), qu'est une caractéristique de l'extension ou l'épaisseur de la couche diffuse, varie comme l'inverse de la racine carrée de la force ionique,  $I$ , qui est

## Structure de la bentonite et leurs propriétés colloïdales en suspension

définie comme le produit de la somme du carré de la valence des ions et la concentration (**Eq. I.1.4**). A partir de ces relations, une diminution de l'épaisseur de la couche diffuse va être menée par une augmentation de la force ionique de l'électrolyte (augmentation de la valence des ions et de la concentration). Une particule est considérée électriquement neutre (écranage des charges) si la double couche est fortement comprimée vers la surface chargée sous l'effet d'une grande force ionique.

$$k^{-1} = \left( \left( \frac{2 \cdot 1000 e^2 N_A}{\epsilon k T} \right) \cdot I \right)^{-1/2} \quad (\text{I.1.3})$$

Avec :  $k^{-1}$ : longueur de Debye (m),  $N_A$ : nombre d'Avogadro et  $I$ : force ionique de la solution (mol/l),

$$I = \frac{1}{2} \sum Z_i^2 C_i \quad (\text{I.1.4})$$

Où :  $Z_i$  et  $C_i$ , sont respectivement valence et concentration (mol/l) de l'ion  $i$  de l'électrolyte.

Une variation de la longueur de Debye avec la concentration de l'électrolyte selon [Hiemenz \(1977\)](#) est indiquée dans le **tableau I.1.1**.

**Tableau I.1.1** : Variation de la longueur de Debye en fonction de la concentration de l'électrolyte.

Concentration molaire de l'électrolyte (mol/l)	$k^{-1}$ (Å°), (électrolyte NaCl ou KCl)	$k^{-1}$ (Å°), (électrolyte CaCl <sub>2</sub> )
0.001	96.1	55.6
0.01	30.4	17.6
0.1	9.61	5.56

En outre, si en prenant le modèle de Stern-Grahame, qui dit que la charge de surface est compensée par celle des ions des couches compacte et diffuse les équations deviennent:

$$\sigma_o + \sigma_\beta + \sigma_d = 0 \quad (\text{I.1.5})$$

$$\sigma_d = -(8C\epsilon kT)^{1/2} \sinh\left(\frac{ze\Psi_0}{2KT}\right) = -0.1174(c)^{1/2} \sinh(19.4380z\Psi_0) \quad (\text{I.1.6})$$

$$\Psi_0 - \Psi_\beta = \frac{\sigma_o}{C_1} \quad (\text{I.1.7})$$

$$\Psi_\beta - \Psi_d = \frac{\sigma_o + \sigma_\beta}{C_2} = -\frac{\sigma_d}{C_2} \quad (\text{I.1.8})$$

avec  $C_1$  et  $C_2$  sont les capacités électriques de la couche interne et diffuse respectivement.

Dans le cas d'une argile de type montmorillonite, il est facile de calculer le potentiel de surface  $\Psi_0$  à l'aide des équations (I.1.1)–(I.1.2) ou (I.1.5)–(I.1.8) puisque dans ce cas-là la charge de surface qui résulte des substitutions isomorphiques est fixe et ne dépend pas de la composition de l'électrolyte, elle est égale à la densité de charge, calculée soit à partir de la formule structurale de l'argile, soit par mesure de la surface spécifique et la capacité d'échange cationique de l'argile.

### I.1.4 Stabilité des suspensions de bentonite

#### I.1.4.1 Théorie de DLVO

Deux cas peuvent être distingués en ce qui concerne le comportement des particules d'argile, en suspension :

- Elles peuvent former des agglomérats, on dit qu'il y a une coagulation et la suspension est déstabilisée.
- Dans le cas contraire, elles ne forment pas des agglomérats, c'est-à-dire qu'elles restent à l'état individuelles, et dans ce cas-là, la suspension est stable.

La théorie DLVO, qui est développée par les auteurs Derjaguin, Landau, Verwey et Overbeek, peut expliquer les observations concernant la stabilité des suspensions d'argile. Elle issue de la combinaison des effets de deux types de force que soumises les particules d'argile :

- les forces de répulsion électrostatique,
- les forces d'attraction de Van der Waals.

Elle considère l'interaction entre deux particules comme la somme d'une énergie attractive à courte portée et d'une énergie répulsive à plus longue portée mais sensible à la force ionique de la dispersion (Bogush et Zukoski, 1991; Pelizzetti, 1996; Luckham et Rossi, 1999).

Par la suite, le potentiel total d'interaction ( $V_t$ ) entre deux particules est donc la somme d'un potentiel répulsif ( $V_r$ ) et d'un potentiel attractif ( $V_a$ ):

$$V_t = V_r + V_a \quad (\text{I.1.9})$$

Si l'énergie répulsive est suffisamment importante par rapport à l'énergie attractive de Van der Waals, la suspension garde son état de stabilité. Dans le cas contraire, une agglomération des particules a été développée.

A courte distance, Le potentiel d'attraction de Van der Waals domine largement. Ce potentiel est indépendant de la force ionique de l'électrolyte. L'expression ci-dessous (Eq. I.1.10) peut être attribuée au potentiel attractif ( $V_a$ ) dans le cas de deux plaques planes et identiques :

$$V_a = -\frac{A}{12\pi} \left[ \frac{1}{d^2} + \frac{1}{(d+2\delta)^2} - \frac{2}{(d+\delta)^2} \right] \quad (\text{I.1.10})$$

Avec  $A$  est la constante de Hamaker. L'équation (I.1.10) est transformée en expression plus simplifiée dans le cas de deux blocs identiques ou plaques semi-infinies :

$$V_a = -\frac{A}{12\pi d^2} \quad (\text{I.1.11})$$

Dans ce cas-là (Eq. I.1.11), le potentiel ( $V_a$ ) varie comme l'inverse du carré de la distance entre les plaques.

Dans le cas de deux particules suffisamment proches et portant des charges de même signe, le potentiel répulsif est le plus dominant.

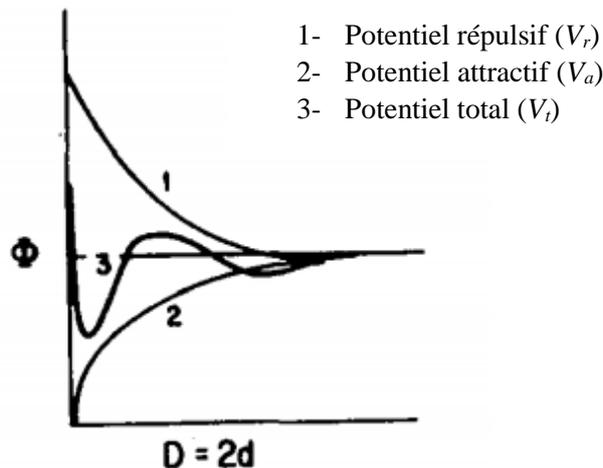
Le potentiel ( $V_r$ ) peut être approché par l'équation suivante (**Eq. I.1.12**) dans le cas de deux plaques planes et parallèles :

$$V_r = \frac{64 N_A C k T}{\kappa} \tanh^2\left(\frac{e\psi_0}{4kT}\right) \exp(-\kappa d) \quad (\text{I.1.12})$$

Cette équation est valable pour des valeurs de ( $\kappa d$ ) très supérieures à 1, avec  $d$  : distance entre les plaques,  $N_A$  : nombre d'Avogadro et  $\kappa$  : l'inverse de la longueur de Debye.

A partir de cette expression, il est noté que ( $V_r$ ) est une loi exponentielle qui décroît avec la distance de séparation  $d$ .

Lorsque ( $V_a$ ) est dominant, un premier minimum est marqué sur la courbe de potentiel. Vu que le potentiel ( $V_r$ ) est une loi exponentielle, il diminue plus vite que ( $V_a$ ) qui est une loi de puissance, et la courbe de potentiel est marquée alors par un maximum et un second minimum (**Fig. I.1.7**).



**Figure I.1.7** : Evolution de l'énergie d'interaction entre deux particules en fonction de leur distance de séparation (Hiemenz, 1977).

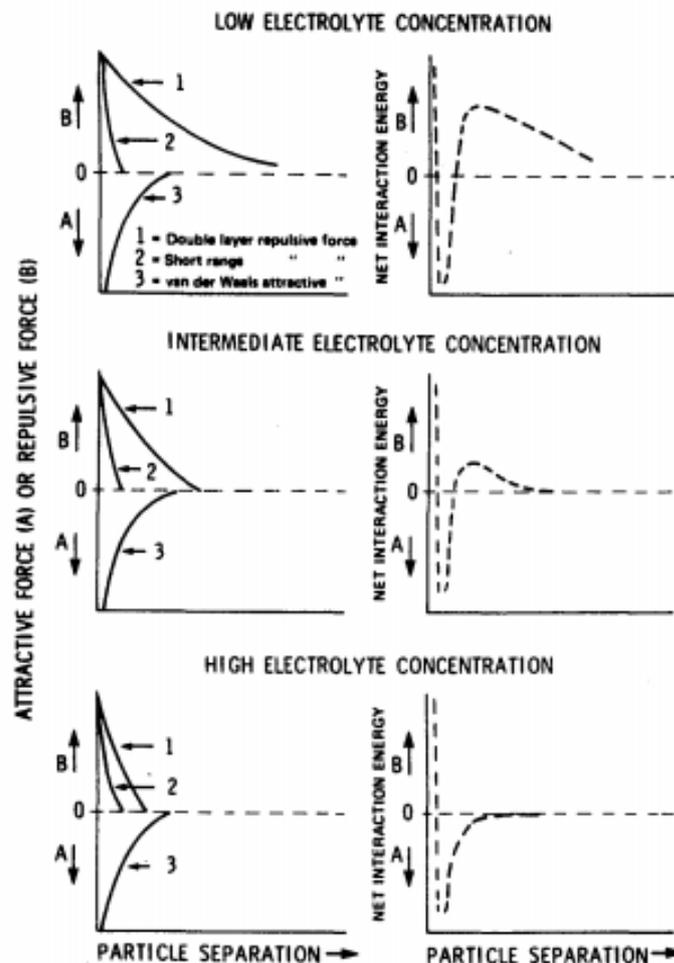
Comme, il est indiqué précédemment que le potentiel répulsif dépend de la concentration de l'électrolyte, par conséquent le potentiel total en dépend aussi. Suivant la concentration de l'électrolyte, trois cas peuvent être distingués, qui montrent que la coagulation est gouvernée par la hauteur de la barrière d'énergie (**Fig. I.1.8**):

- **À faible concentration** : la vitesse de coagulation est extrêmement lente en vue que la barrière d'énergie est plus importante (énergie de répulsion à longue distance très élevée).

- **À moyenne concentration** : l'existence d'une barrière énergétique ce qui implique une répulsion à longue distance. Les particules peuvent s'agglomérer en atteignant la position du premier minimum si leur énergie thermique est suffisante pour franchir la barrière. Dans ce cas, la vitesse d'agglomération est retardée d'une part par la diffusion et d'autre part par la répulsion à longue distance ce qui confirme que c'est une coagulation lente. On peut observer aussi une agglomération correspond au second minimum s'il existe. Cette fois ci, la stabilité des agglomérats formés est moins importante que celle correspondant au premier minimum. Par

conséquent, il y aura une faible probabilité pour qu'un choc entre deux particules produise une association durable dans le cas où l'énergie cinétique des molécules de solvant est supérieure à l'amplitude du second minimum et la barrière du potentiel est plus importante que l'énergie thermique.

- **À forte concentration** : On peut observer que Les particules s'attirent mutuellement indépendamment de leur distance de séparation et lorsqu'elles atteignent la position correspond au premier minimum, elles s'agglomèrent, dans ce cas-là, on peut dire qu'il n'existe pas une barrière énergétique. Ici, les particules possèdent une énergie minimale et la barrière d'énergie qu'elles doivent traverser pour se dissocier est devenue extrêmement importante, donc, elles se trouvent dans un état stable. On constate un phénomène de piégeage des particules dans le premier minimum. La vitesse de coagulation est limitée d'une part par la diffusion des particules et accélérée d'autre part par l'attraction à longue distance ce qui confirme que c'est une coagulation rapide.



**Figure I.1.8:** Evolution de l'énergie d'interaction en fonction de la concentration en électrolyte (Sparks, 1986).

#### I.1.4.2 Améliorations de la théorie DLVO

De nombreux auteurs (Van Olphen, 1977; Pashley et Quirk, 1989) ont essayé d'améliorer la théorie DLVO en supposant qu'il existe des forces répulsives à courte portée, non prévue par

cette théorie. Par cette amélioration, on aura des valeurs finies du potentiel total ( $V_t$ ) aux faibles distances de séparation tandis que l'application de la théorie DLVO tel qu'elle est, conduit à un ( $V_t$ ) infiniment attractif aux faibles distance de séparation.

-Van Olphen (1977), a ajouté un nouveau terme qui est appelé le potentiel répulsif de Born ( $V_b$ ):

$$V_t = V_a + V_r + V_b \quad (\text{I.1.13})$$

Le potentiel de Born ( $V_b$ ) peut être défini comme suit : il exprime d'une part la répulsion entre nuages électroniques ce qui veut dire l'énergie responsable de l'interpénétration de deux structures cristallines, et d'autre part, il tient compte de l'énergie qui doit être fournie pour désorber les molécules d'eau qui sont généralement liées à la surface sous forme d'une ou deux couches monomoléculaires, lorsqu'il y a une distance de séparation plus faible que 10 Å.

-D'un autre côté, Adams et Israelachvili (1978), ont pu mesurer les forces d'interactions entre deux plaques de mica immergées dans une solution aqueuse d'électrolyte en effectuant un développement d'outils qui a permis à Pashley et Quirk (1989) de confirmer l'existence de forces répulsives d'hydratation à courte portée pour une distance qui a été approchée inférieure à 5 nm.

Ils disent aussi que la force d'hydratation est sensible au processus d'échange ionique, puisqu'il y aura une disparition de cette force d'hydratation lorsque les cations hydratés ( $K^+$ ,  $Na^+$ ) à la surface sont remplacés par des  $H^+$ , par abaissement du pH. D'après ça, Pashley et Quirk (1989) prouvent qu'on peut appliquer la théorie DLVO pour des solutions diluées ( $I \leq 0.1$  M), sans prendre en considération les forces répulsives d'hydratation à courte portée. Par conséquent, les ions adsorbés à la surface dans ce cas sont des protons  $H^+$ , ils ont la particularité de ne pas donner lieu à des effets d'hydratation. Au contraire, à partir d'une certaine concentration critique d'hydratation « Critical Hydration Concentration, CHC », pour une concentration élevée en électrolyte, il peut s'adsorber d'autres cations que les protons, qu'ils ont la particularité de donner lieu à des effets d'hydratation. Pashley et Quirk (1984), ont classifié l'intensité de la force répulsive d'hydratation selon la valence et le rayon d'hydratation des ions adsorbés. Elle est plus intense en tant que la valence et le rayon d'hydratation sont grands (I.1.14):

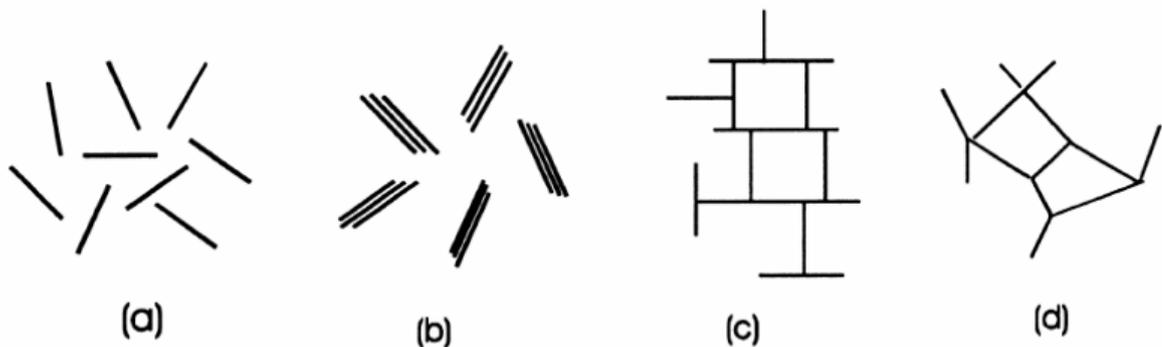
$$La^{3+} > Mg^{2+} > Ca^{2+} > Li^+ \approx Na^+ > K^+ > Cs^+ \quad (\text{I.1.14})$$

### I.1.4.3 Modes d'organisation des particules

Le comportement des particules de bentonite est plus complexe et aucune théorie reliant les interactions inter-particulaires à la structure de la suspension ne fait l'unanimité (Le Pluart, 2002). La formation des structures dépend de plusieurs paramètres dont deux sont considérés comme décisifs. Ces deux paramètres sont la concentration des particules argileuses et la salinité du milieu (Luckham et Rossi, 1999). Les différents modes d'association des particules (Fig. I.1.9) décrits par Van Olphen (1964) sont :

- a) Etat dispersé : si l'argile est très diluée, les particules se trouvent en état dispersé. Ce type d'association peut être expliqué par l'absence d'interaction entre les particules car les doubles couches électriques des feuillettes se repoussent.

- b) Organisation face-face : elle résulte des interactions des doubles couches électriques de deux feuillets. Elle peut entraîner l'agrégation des feuillets lorsque les deux doubles couches coalescent et que les feuillets ne sont plus séparés que par une couche médiane de cations positifs. Ce type d'association peut conduire à l'obtention d'agrégats de feuillets parallèles distants de moins de 20 Angströms (Mering, 1946). Dans ce cas, les unités structurales pouvant s'associer pour former un gel sont moins nombreuses du fait que la surface d'interaction entre l'argile et la solution diminue (Luckham et Rossi, 1999).
- c) Organisation bord-face : elle est théoriquement possible entre les faces constamment chargées négativement et les bords, chargés positivement lorsque le pH est inférieur au point isoélectrique ceci développe des forces électrostatiques attractives et permette de construire une organisation de type "château de cartes". Ce mode d'organisation permet le piégeage de grandes quantités d'eau ce qui conduit à la gélification des suspensions d'argiles.
- d) Organisation bord-bord : selon Norrish (1954), ce mode d'organisation peut se produire dans la mesure où les bords des feuillets présentent des zones où le potentiel électrostatique est minimal. La compaction du système par augmentation de la concentration privilégiera ces liaisons. Cette organisation retient beaucoup d'eau ce qui permet d'expliquer l'origine du gonflement.



**Figure I.1.9 :** Modes d'association des feuillets de montmorillonite en suspension : (a) dispersion, (b) agrégation face-face, (c) association bord-face, (d) association bord-bord (d'après Van Olphen, 1964).

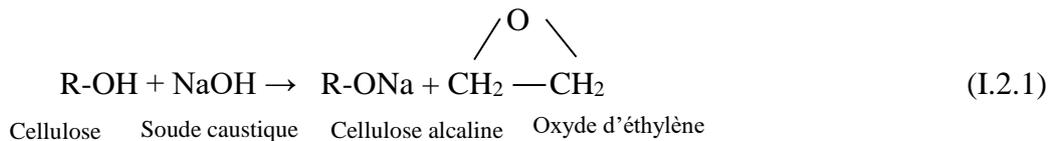
## I.2. Polymères et leurs applications dans les fluides de forage

Les polymères ont été employés dans les fluides de forage environ les années 1930 ou l'amidon de maïs a été ajouté à la boue bentonitique pour réduire les pertes de fluide dans les formations poreuses et perméables. Depuis cette époque, les polymères sont devenus très sophistiqués et leur utilisation a accru en conséquence. Ils sont souvent conçus pour une situation de forage particulière, dans certains cas, ils peuvent même remplacer totalement les argiles, particulièrement pour le forage des zones argileuses sensibles à l'eau ou des zones productrices d'eau et d'hydrocarbures.

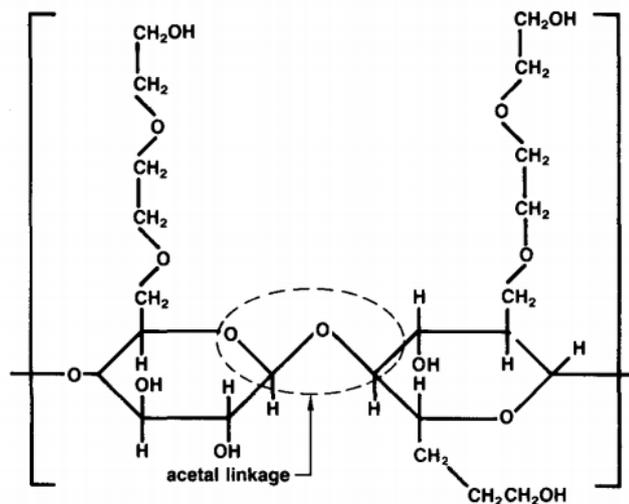
Les polymères sont nécessaires en ce qui concerne le contrôle des propriétés de fluide, dans cette partie, on va décrire la structure des deux polymères utilisés dans la présente étude, à savoir, l'hydroxyéthylcellulose (HEC) et le polyéthylène glycol (PEG). On va tenter ainsi de montrer le mieux possible la relation entre la structure et la fonction afin de mieux comprendre le rôle et l'application de polymères particuliers.

### I.2.1 Hydroxyéthylcellulose

L'hydroxyéthylcellulose (HEC) est un polymère non ionique à l'aspect de poudre blanche ou légèrement jaunâtre en peluche. Son procédé de fabrication est fondé sur la réaction entre la cellulose alcaline et l'oxyde d'éthylène comme suit :



L'ajout de l'oxyde d'éthylène à la cellulose alcaline produit une série d'hydroxyéthylcellulose éthers. Cette réaction se manifeste par le remplacement de l'atome d'hydrogène de l'hydroxyde par le groupe hydroxyéthyl, ce qui rend le produit soluble dans l'eau. Une structure d'unité idéale de l'HEC est donnée dans la **figure I.2.1**.

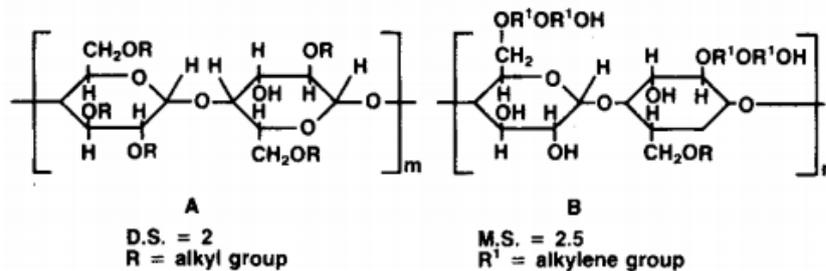


**Figure I.2.1** : Structure d'hydroxyéthylcellulose (Chatterji et Borchardt, 1981).

La réaction sur laquelle est fabriqué ce type de polymère peut être décrite par les deux termes suivants :

- **Degré de substitution** : désigne le nombre de groupes hydroxyles, sur le glucose qui ont réagi avec l'oxyde d'éthylène. Donc, un produit d'une telle réaction aurait un degré de substitution maximal (DS) de 3.
- **Substitution molaire** : elle est définie comme étant le nombre de mole d'oxyde d'éthylène qui est attaché à chaque unité d'anhydroglucose dans la cellulose.

La différence entre le degré de substitution et la substitution molaire est illustré dans la figure suivante (**Fig. I.2.2**) selon [Chatterji et Borchardt \(1981\)](#).



**Figure I.2.2** : Illustration de la différence entre le degré de substitution et la substitution molaire selon [Chatterji et Borchardt \(1981\)](#).

### I.2.2 Application de l'hydroxyéthylcellulose dans les fluides de forage

Le fluide de forage contenant de l'hydroxyéthylcellulose est couramment utilisé dans le forage des roches dures ainsi que pour le forage dans des conditions extrêmes, tel que le forage des couches de schiste avec contrôle de fuite d'eau en circulation, perte excessive d'eau ou pression anormale.

L'HEC a des propriétés d'épaississement, de suspension, de lubrification et d'autres propriétés et il aide à obtenir des propriétés rhéologiques supplémentaires souhaitées ([Rabia 1985](#); [Arisz et al., 2014](#)). En fond de trou et face à des taux de cisaillement très élevés, l'HEC ayant un comportement rhéologique particulier, la viscosité du fluide de forage localement peut se rapprocher de la viscosité de l'eau. D'une part, cela aide à améliorer la vitesse d'avancement de l'outil de forage, à le rendre difficile à chauffer et à prolonger sa durée de vie; d'une autre part, les trous forés peuvent être propres et avoir un taux de pénétration élevé.

Le fluide de forage contenant de HEC peut réduire considérablement le frottement hydrodynamique, réduisant ainsi la pression de pompage ([Chatterji et Borchardt, 1981](#)). De cette manière, les risques de fuite dans le puits seront réduits. De plus, lorsque la circulation est rétablie après l'arrêt, elle peut également réduire le couple de démarrage.

Après utilisation de HEC, les performances de filtration et la stabilité de la boue peuvent être grandement améliorées ([Raines, 1986](#); [Arisz et al., 2006](#)). Dans les formations rocheuses à haute perméabilité, les additifs de perte de fluide tels que le carbonate de calcium, la résine hydrocarbonée tamisée et les composés de particules de sel solubles dans l'eau ont de bons effets. Mais dans les états extrêmes, une solution de traitement de perte d'eau avec une

concentration élevée (à savoir chaque baril de solution contient 1.3–3.2 kg de HEC) peut être utilisée afin d'empêcher la déshydratation de pénétrer profondément dans la couche d'extraction d'huile.

L'avantage de l'utilisation de HEC réside également dans le fait que la technologie de forage et de complétion utilise la même boue, réduisant ainsi la dépendance à d'autres agents dispersants, diluants et agents d'ajustement du pH, manipulation des liquides et facilité de stockage.

### I.2.3 Polyéthylène glycol

Le polyéthylène glycol (PEG) est un polymère de la famille de polyéthers. Il est non ionique et hydrosoluble et désigne souvent un ensemble de composés à base de glycol ou de glycérol. Il est obtenu par polymérisation de l'éthylène oxyde et la réaction est la suivante :



Le PEG a une chaîne linéaire et sa formule chimique est de la forme suivante :  $(\text{CH}_2\text{-CH}_2\text{-O})_n$ .

Les unités d'éthylène ( $\text{CH}_2\text{-CH}_2$ ) forment la partie hydrophobe du polymère bien que l'atome d'oxygène constitue la partie hydrophile du PEG. A cause de ces arrangements hydrophobe et hydrophile, le polymère PEG montre des propriétés spéciales et devient soluble dans l'eau.

### I.2.4 Application du polyéthylène glycol dans les fluides de forage

Beaucoup d'efforts ont été déployés pour améliorer les performances des fluides de forage à base d'eau pour le forage en face des formations argileuses, notamment, en améliorant le degré d'inhibition des argiles par ces fluides. Divers additifs chimiques ont été incorporés dans les fluides de forage à base d'eau afin d'améliorer l'inhibition des argiles. En particulier, des glycols ou polyols solubles dans l'eau y compris le polyéthylène glycol (PEG) sont largement utilisés à cette fin, étant typiquement ajoutés au fluides de forge dans des quantités comprises entre 3 et 10% en poids (Chenevert, 1989; Perricone et al., 1989; Cliffe et al., 1995; Reid et al., 2003).

Il a été aussi trouvé que la combinaison de polyéthylène glycol avec des polymères viscosifiants dispersibles dans l'eau, tels que les dérivés de cellulose, les polyacrylamides et la gomme de guar, améliore de manière significative la propriété de perte d'eau des boues de forage, en particulier dans les environnements de saumure dure (Swanson, 1984).

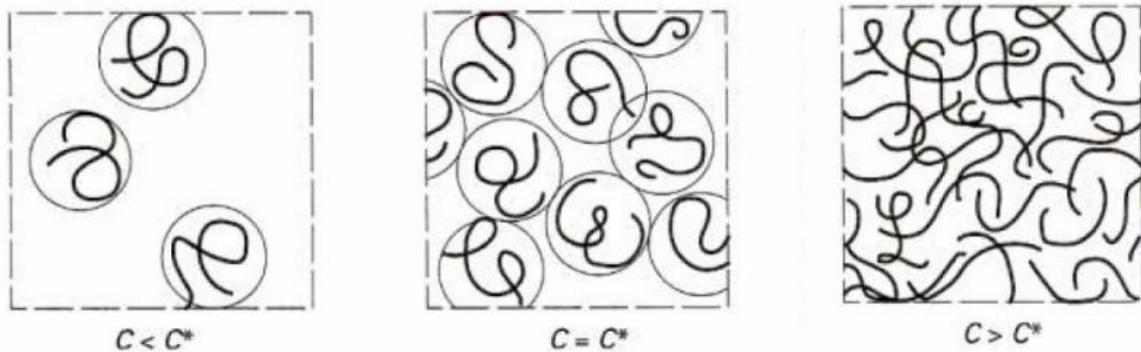
Dans les milieux salins, le PEG de poids moléculaire intermédiaire (inférieur à 30000 g/mol) et les polysaccharides non ioniques sont efficaces pour inhiber la synérèse (séparation de phase) et pour obtenir de bons profils rhéologiques à des températures élevées (Glass Jr, 1985).

Des expériences ont été effectuées, ont montré que le temps de formation des hydrates se prolonge en présence du PEG comparés aux cas dans lesquels d'autres inhibiteurs ont été appliqués (Lee and Englezos, 2005; Talaghat, 2010 ; 2012).

Dans le présent travail, le PEG est utilisé pour inhiber la synérèse et éviter la formation de mousse lorsque le système bentonite-HEC serve comme un fluide de forage.

### I.2.5 Polysaccharides et polymères non ioniques en solution aqueuse

Les polysaccharides et les polymères non ioniques en solution aqueuse s'organisent sous forme d'un réseau transitoire ou il y aura la formation et la rupture des liaisons intermoléculaires au cours du temps (Mitchell, 1979). Dans un régime de faibles concentrations, appelé régime dilué, les chaînes d'un polymère sont suffisamment éloignées les unes des autres, ce qui montre que le comportement hydrodynamique d'une solution de polymère dépend des interactions polymère-solvant en restant dans ce régime, mais à partir d'une certaine concentration, il devient également lié aux interactions polymère – polymère (Fig. I.2.3). A cette concentration, appelée *concentration de recouvrement géométrique*  $c^*$ , les chaînes de polymère commencent à se recouvrir spatialement et à s'interpénétrer (Fig. I.2.3). Donc,  $c^*$  délimite deux régime de concentrations : dilué et semi-dilué (De Gennes, 1979). En parlant du régime semi-dilué, il peut se subdiviser lui-même en deux sous régime : non enchevêtré et enchevêtré (Southwick et al., 1981).



**Figure I.2.3** : Représentation schématique de la concentration critique de recouvrement ( $c^*$ ) séparant les domaines dilués ( $c < c^*$ ) et semi-dilués ( $c > c^*$ ) (De Gennes, 1979).

Dans un régime de concentrations semi-dilué ou ( $c > c^*$ ) et lorsque les polymères sont de même nature, on aura plutôt des répulsions par effet stérique. Donc, les polymères se repoussent et s'excluent mutuellement de l'espace qu'ils remplissent. Si les polymères sont de nature différentes, on aura des interactions attractives et les polymères s'attirent mutuellement et s'attachent entres eux.

La concentration critique  $c^*$  qui caractérise un changement de régime pour un système polymère-solvant donné, peut être déterminée expérimentalement en étudiant la variation de la viscosité spécifique  $\eta_{sp}$ , à faible taux de cisaillement, en fonction de la concentration du polymère (Rodd et al., 2000; Clasen et Kulicke, 2001) :

$$\eta_{sp} = \frac{\eta_0 - \eta_{sol}}{\eta_{sol}} = \eta_r - 1 \quad (I.2.3)$$

Où  $\eta_0$  est la viscosité à cisaillement nulle,  $\eta_{sol}$  est la viscosité du solvant (eau) et  $\eta_r$  est la viscosité relative (sans dimension).

L'évolution des régimes hydrodynamiques est caractérisée par un changement de pente et la concentration critique  $c^*$  correspond à l'intersection des droites extrapolées.

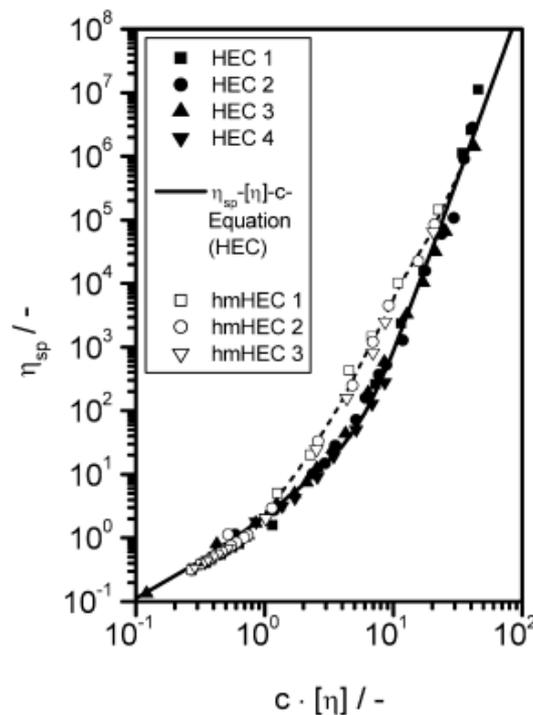
Dans une solution de polymère, l'évolution du volume hydrodynamique est proportionnelle à la concentration critique d'enchevêtrement. Donc, pour décrire le changement du régime hydrodynamique, un nouveau paramètre indépendant de la qualité du solvant a été proposé. Il est appelé le paramètre de recouvrement et il s'agit du produit  $c \cdot [\eta]$ , sans dimension, (Clasen et Kulicke, 2001), tel que la viscosité intrinsèque est exprimée par la relation suivante :

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\eta_{sp}}{c} \right) = \lim_{c \rightarrow 0} (\eta_{red}) \quad (I.2.4)$$

Avec  $c$  est la concentration en polymère,  $[\eta]$  est la viscosité intrinsèque de la solution avec une dimension de l'inverse d'une concentration et  $\eta_{red}$  est la viscosité réduite.

Diverses valeurs du paramètre de recouvrement critique ont été proposées dans la littérature, par exemple,  $c^* \cdot [\eta] = 0.77$  (Graessley, 1980),  $c^* \cdot [\eta] = 1$  (Teraoka, 2002) et  $c^* \cdot [\eta] = 2.5$  (Kulicke et Clasen, 2004). Les auteurs laschet et al., (2004), ont tracé une courbe maîtresse de la viscosité spécifique des différentes solutions aqueuses de HEC en fonction du paramètre de recouvrement (Fig. I.2.4). En ajustant les données de la courbe maîtresse, les auteurs ont établi une corrélation reliant la concentration ( $c$ ), la masse moléculaire ( $M$ ) et la viscosité à cisaillement nulle ( $\eta_0$ ) :

$$\eta_0 = 8.91 \cdot 10^{-4} + 3.6 \cdot 10^{-5} \cdot c \cdot M^{0.73} + 2.4 \cdot 10^{-6} \cdot c^2 \cdot M^{1.46} + 3.5 \cdot 10^{-12} \cdot c^{5.56} \cdot M^{4.06} \quad (I.2.5)$$

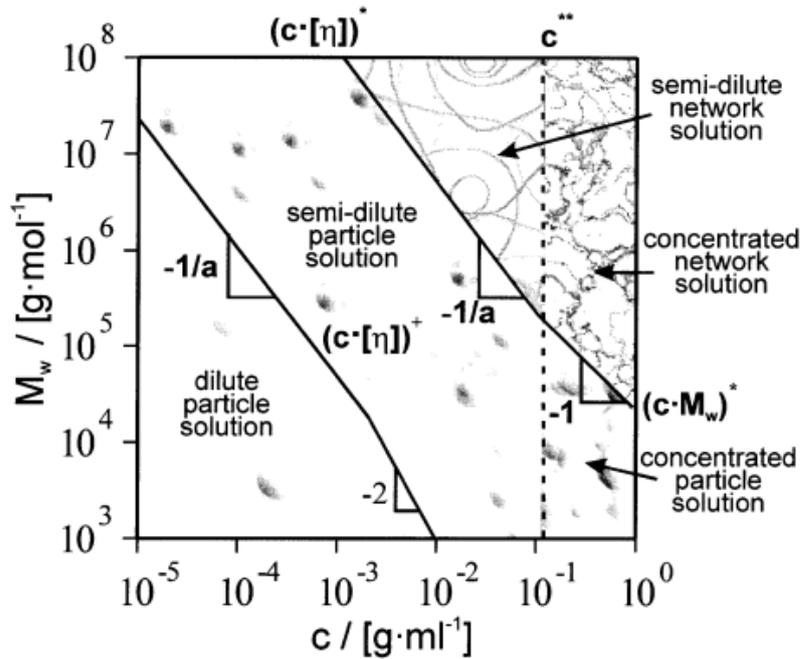


**Figure I.2.4** : Viscosité spécifique  $\eta_{sp}$  en fonction du paramètre de recouvrement  $c \cdot [\eta]$  des solutions de HEC et hmHEC. La ligne continue représente la corrélation (I.2.5) pour les solutions de HEC (laschet et al., 2004).

Une deuxième concentration critique,  $c^{**}$ , de transition entre le régime semi-dilué et le régime concentré a été définie dans la littérature (Clasen et Kulicke, 2001). D'un point de vue rhéologique, cette transition est importante, dans la mesure où l'existence d'enchevêtrements

confère à la solution de polymère un comportement viscoélastique ainsi qu'un caractère rhéofluidifiant marqué.

Comme conclusion sur les polysaccharides et les polymères non ioniques en solution, on a choisi de présenter les différents états de solutions de polymère selon [Bouldin et al., \(1988\)](#), ces auteurs ont réparti les solutions de polymère en cinq états distincts, en fonction de la masse moléculaire et la concentration du polymère (**Fig. I.2.5**). Ces cinq états de solutions sont : i) solution diluée, ii) semi-diluée non enchevêtrée, iii) semi-diluée enchevêtrée, iv) solution concentrée, v) solution concentrée formant un réseau 3D ([Clasen et Kulicke, 2001](#)).



**Figure I.2.5** : Les cinq états de solution de polymère en fonction de la masse moléculaire et la concentration de polymère ([Bouldin et al., 1988](#)).

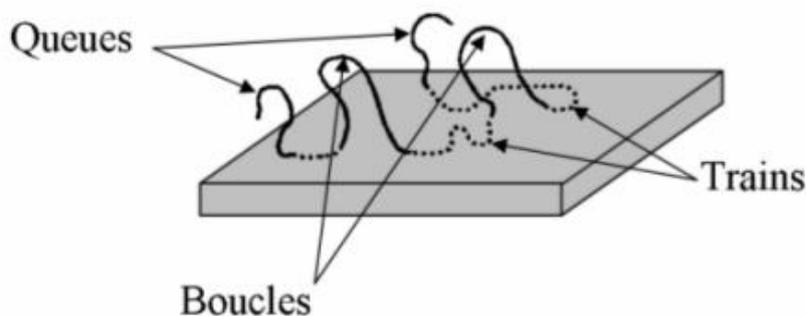
### I.3. Interactions dans le système eau-bentonite-polymère

Ces dernières années, plusieurs travaux ont porté sur l'évaluation de l'effet des polymères ioniques et non ioniques (Hughes et al., 1993 ; Güngör et Ece, 1999 ; Güngör et Karaoğlan, 2001, Dolz et al., 2007 ; Nwosu et Ewulonu, 2014 ; Gao, 2016 ; Shettigar et al., 2018), des tensioactifs cationiques (Alemdar et al., 2000 ; Janek et Lagaly, 2003; Isci et al., 2005; Atia et al., 2006 ; Mahmoud et Dardir, 2011, Zhou et al., 2016, Ratkievicius et al., 2017 ; Zhuang et al., 2017) et anioniques (Güngör et al., 2001 ; Yalçin et al., 2002, Zhou et al., 2016), sur la rhéologie et la stabilisation du système bentonite-eau à partir de mesures de viscosité plastique, contrainte seuil et potentiel zêta. Cependant, le choix du type, de la concentration et de la taille des additifs à base de polymères et/ou tensioactifs correspondant le mieux aux conditions requises pour les différentes opérations de forage est encore à l'étude et nécessite des connaissances plus approfondies pour différentes conditions, ce qui est l'une des originalités de l'actuelle contribution (Ouaer et Gareche, 2018 ; Ouaer et al., 2018).

Dans cette partie, le mécanisme d'adsorption qui constitue la base de l'interaction bentonite-polymère, est exposé. Le phénomène d'adsorption est expliqué pour chaque type de polymère tout en prenant en considération les différents paramètres influençant l'isotherme d'adsorption.

#### I.3.1 Mécanisme d'adsorption des polymères sur la surface d'une argile

L'adsorption est un phénomène physique au bout de laquelle des constituants d'une phase liquide ou gazeuse sont fixés sur une surface solide. Concernant l'adsorption d'un polymère par les surfaces de particules argileuses, les macromolécules s'adsorbent généralement par segments de chaînes appelés "trains". Entre deux trains consécutifs, ces macromolécules forment une "boucle". Le segment de chaîne situé avant le premier train ou après le dernier est appelé "queue" (Fig. I.3.1), (Mongondry, 2003).



**Figure I.3.1** : Schéma des différentes séquences d'un polymère adsorbé sur une surface argileuse (Mongondry, 2003).

Les études d'adsorption montrent que les mécanismes qui gouvernent l'adsorption sont spécifiques à la nature de la macromolécule adsorbée, ainsi qu'à la nature de la particule adsorbante. Les illustrations de la **figure I.3.2** représentent l'effet du type d'architecture du polymère sur son type d'adsorption.

D'une façon générale, les polymères s'adsorbent par des interactions de type Van Der Waals, électrostatiques, hydrophobes ou par la création de liaisons hydrogène (Israelachvili, 1992 ; Tadros, 2003). L'adsorption des polymères sur les surfaces d'argile mène généralement à un système stérique stable ou à une floculation par ponts, ce qui affecte la rhéologie et la stabilité du système (Chang et al., 1992).

Dans la pratique, les isothermes d'adsorption caractérisent l'affinité du polymère pour l'adsorbant à une température donnée. Ces isothermes représentent la quantité de polymère adsorbé (adsorbat) en fonction de la concentration en polymère libre dans le milieu dispersant, appelée concentration en polymère à l'équilibre  $C_e$ . Pour normaliser les isothermes, on rapporte la quantité de produit adsorbé  $\Gamma$  à l'unité de surface accessible ou à l'unité de masse adsorbante si la surface spécifique n'est pas déterminée. Les courbes obtenues présentent le plus souvent deux domaines (Fig. I.3.3) :

- Pour les plus faibles concentrations d'adsorbat à l'équilibre ( $C_e$ ), une croissance plus au moins rapide suivant son affinité pour la surface.
- Au-delà d'une certaine concentration  $C_e$ , un plateau qui détermine la quantité  $\Gamma_{max}$  maximale adsorbée sur la surface dans ces conditions (Ferret, 1992 ; Mongondry, 2003).

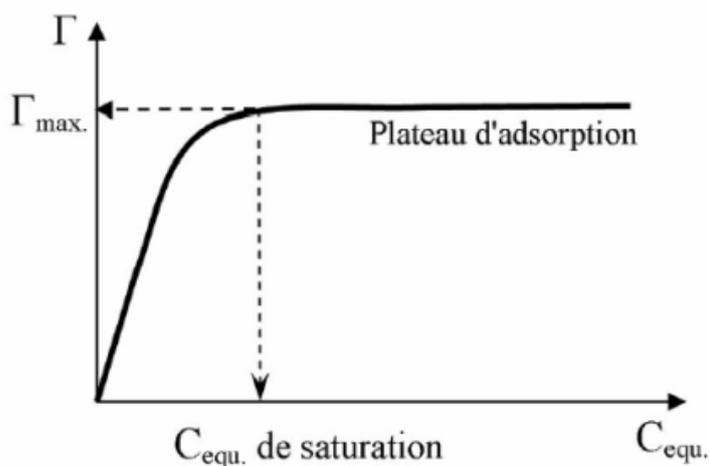


Figure I.3.3 : Représentation schématique d'un isotherme d'adsorption (Mongondry, 2003).

En général, la détermination de la quantité du polymère fixé à la surface des particules argileuses ( $\Gamma$ ) se fait d'une manière indirecte par différence des quantités introduite et restante dans le surnageant. Cette méthode a l'avantage de ne pas modifier le système étudié par l'ajout

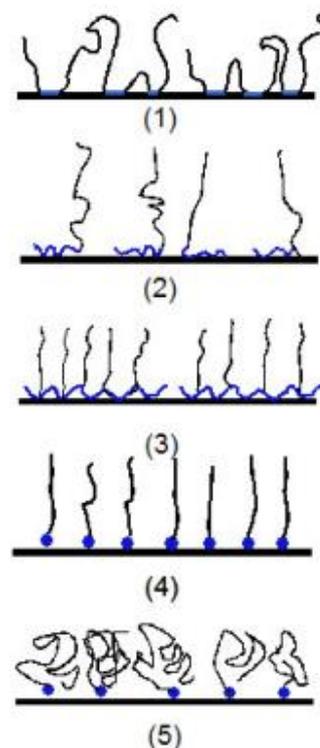


Figure I.3.2 : Modes de fixation et de configuration des chaînes de polymère sur une surface solide.

(1) polymère statistique qui se greffe en quelques points sur la surface, (2) polymère bloc avec une partie s'adsorbant sur la surface (ancrage) et l'autre partie bien soluble dans le solvant qui forme une brosse (boué), (3) polymère avec greffons, la chaîne principale s'adsorbe sur la surface alors que les chaînes latérales sont solubles dans le solvant, (4) greffage dense (ou chaîne rigide) avec un point d'encrage, les chaînes sont en forme de brosse, (5) greffage peu dense (ou chaîne en mauvais solvant), les chaînes sont plus espacées et leurs configurations sont de type champignon (Lootens, 2004).

de marqueur sur l'adsorbat (Feret, 1992). Dans ce cas, la détermination de l'isotherme d'adsorption se fait de la façon suivante :

- Pour atteindre l'équilibre d'adsorption, la suspension est agitée pendant un certain temps de contact à une température constante.
- Le surnageant est séparé par centrifugation pendant un temps défini, en général suivant la viscosité du mélange, puis on procède souvent à une méthode d'analyse spectrophotométrique (Chang et al., 1992 ; Ramos-Tejada et al., 2001 ; 2003 ; Yang et al., 2003) ou à la méthode TOC « total organic carbon » (M'bodj et al., 2004) pour connaître la teneur en polymère dans le surnageant.
- La quantité de polymère adsorbé est alors estimée comme étant la différence entre les teneurs initiale et finale en polymère en appliquant la relation ci-dessous :

$$\Gamma = \frac{C_i - C_e}{m} V \quad (\text{I.3.1})$$

Où :  $C_i$  : concentration initiale en polymère (mg/l),  $C_e$  : concentration en polymère du surnageant (mg/l),  $m$  : masse d'argile introduite (g) et  $V$  : volume total de l'échantillon (l).

On tire que  $\Gamma$  est en mg/g d'argile sèche introduite. En revanche, dans les cas de faible adsorption, la détermination de  $\Gamma$  devient peu précise du fait de l'imprécision dans le calcul de la différence.

### I.3.2 Adsorption d'un polymère cationique sur la surface d'une bentonite

Du fait que les particules d'argiles en solution aqueuse sont reconnues comme étant des suspensions fortement anioniques (Duc et al., 2005 ; Deng et al., 2006; McFarlane et al., 2008 ; Chang et Leong, 2014), l'adsorption d'un polymère cationique sur une surface chargée négativement se fait par interactions coulombiennes entre les groupes cationiques du polymère et la surface d'argile (Dau et Lagaly, 1998 ; Breen, 1999 ; Janek et Lagaly, 2003 ; Alemdar et al., 2005a ; Isci et al., 2005). En admettant que les polycations ont une attractivité instantanée sur la surface d'argile, dans ce cas-là peu de boucles sont formées (fraction des trains adsorbés :  $p > 0.7$ ). Ainsi, la quantité de polymère adsorbée reste plus importante (Breen, 1999). Dans ce cas, le processus d'adsorption est principalement irréversible puisque la désorption exige la désorption simultanée de tous les segments de train ainsi que la diffusion du polycation loin de la surface d'argile dans la solution (Breen, 1999). Cette éventualité est peu probable et devient très difficile à concevoir même si quelques auteurs ont signalé une modeste désorption pour des systèmes pareils (Claesson et al., 1994).

### I.3.3 Adsorption d'un polymère anionique sur la surface d'une bentonite

Dans de nombreux travaux, l'étude de l'adsorption des polymères anioniques sur les surfaces des argiles a été faite généralement en tenant compte de la force ionique du système (Feret, 1992 ; Baßmann et al., 1999 ; Ece et al., 1999 ; Heller et Keren, 2003 ; M'bodj et al., 2004 ; Wiśniewska et al., 2018).

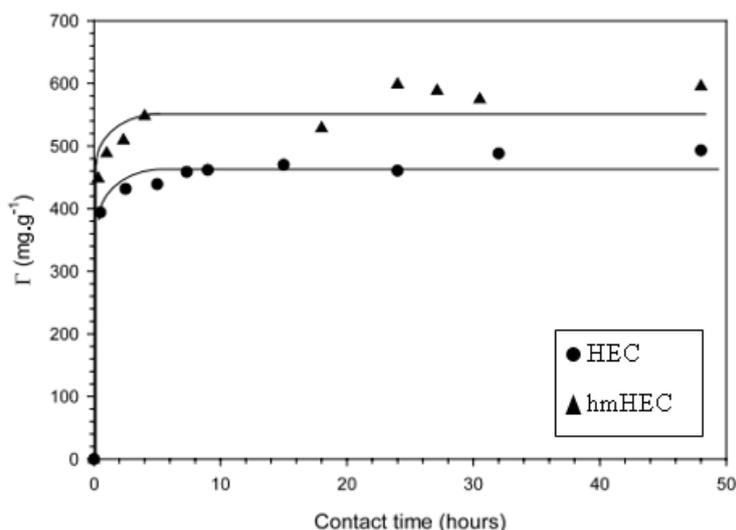
Deux processus complémentaires de l'adsorption des polymères en fonction de la salinité du milieu peuvent être observés (Feret, 1992) :

- Dans un milieu à faible force ionique, l'adsorption atteint rapidement une valeur limite peu élevée, quel que soit le taux de charge du polyélectrolyte.
- Dans un milieu à salinité plus élevée, la quantité du polymère adsorbée est plus importante sans présenter de saturation nette aux concentrations en polymère étudiées. C'est le cas où l'adsorption des macromolécules sur l'ensemble de la surface de l'argile, se fait par des liaisons hydrogène, qui sont dues à l'écrantage des répulsions électrostatiques.

### I.3.4 Systèmes eau-bentonite-polymère non ionique

#### I.3.4.1 Cinétique d'adsorption de HEC

L'étude de la cinétique d'adsorption est faite, en déterminant la quantité adsorbée  $\Gamma$  après des temps de contact variables du système bentonite-polymère. Un exemple de courbes de la quantité du polymère adsorbée obtenues par [Simon et al., \(2002\)](#) est reproduit sur la **figure I.3.4**. Ces courbes d'adsorption sont obtenues pour les systèmes eau-montmorillonite-HEC et eau-montmorillonite-hmHEC, sachant que hmHEC est l'hydroxyéthylcellulose modifié hydrophobiquement. Les deux courbes présentent un plateau d'équilibre après cinq heures de contact. Ce résultat montre que l'adsorption des deux polymères HEC et hmHEC sur la surface de montmorillonite est rapide.



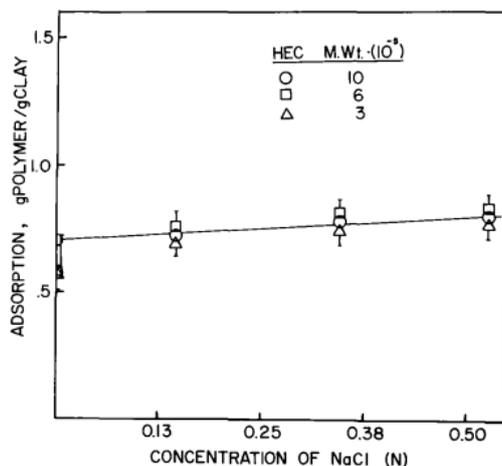
**Figure I.3.4 :** Cinétique d'adsorption des systèmes HEC et hmHEC /montmorillonite dans l'eau pure ([Simon et al., 2002](#)).

#### I.3.4.2 Paramètres influençant l'isotherme d'adsorption

##### I.3.4.2.1 Effet du poids moléculaire

Pour bien comprendre l'influence du poids moléculaire du polymère sur l'adsorption de ce dernier, [Shah et al., \(1985\)](#), ont fait une étude sur le système eau-montmorillonite-HEC-NaCl, ce dernier est plus souvent utilisé comme un fluide de forage dans les champs pétroliers et gaziers. La formulation de [Shah et al., \(1985\)](#), se compose de 14.4 lbs/bbl de bentonite ce qui est équivalent à 4.2 wt% et de 0.5 lb/bbl de HEC ce qui est équivalent à 0.14 wt%, avec une concentration variable de NaCl, l'HEC utilisé dans cette étude a une substitution molaire égale

à 2.0. Ils ont constaté que si une floculation se produit, les macromolécules de poids moléculaire inférieur présenteront une plus grande adsorption en raison de la plus grande surface disponible pour des volumes hydrodynamiques plus petits. Les polymères de masse moléculaire plus élevée adsorbent moins. L'absence d'une dépendance de l'adsorption à la masse moléculaire (**Fig. I.3.5**) avec les différentes salinités utilisées dans cette étude indique que la floculation n'a pas eu lieu. Cela ne sera pas vrai à des températures plus élevées.

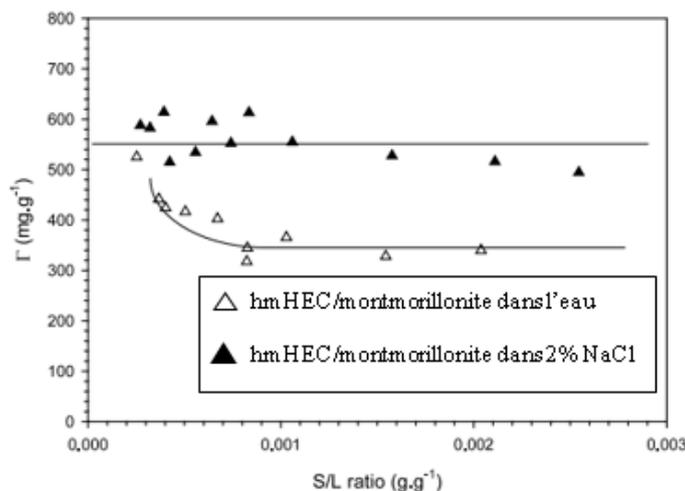


**Figure I.3.5** : Dépendance de l'adsorption de HEC (MS = 2.0) à la masse moléculaire et la salinité de la solution aqueuse (Shah et al., 1985).

Dans leur étude, Simon et al., (2002), ont utilisé le système eau-argile-HEC et ils ont trouvé que l'adsorption de HEC sur la surface de l'argile se produit préférentiellement pour de faible poids moléculaire. La quantité adsorbée de HEC est grand quand le poids moléculaire est faible.

### I.3.4.2.2 Effet de la concentration en argile

Simon et al., (2002), ont étudié l'effet de la concentration en argile (rapport solide/liquide, S/L) sur la quantité adsorbée du hmHEC dans l'eau pure et dans 2% du NaCl et des résultats similaires ont été observés pour l'HEC.

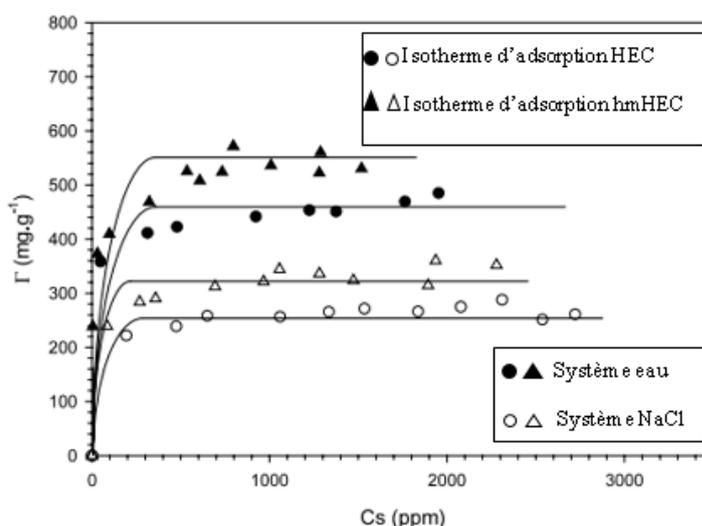


**Figure I.3.6** : Influence du rapport S/L pour le système hmHEC/montmorillonite dans l'eau et dans 2% NaCl (Simon et al., 2002).

Ils ont trouvé que la quantité du polymère adsorbée reste constante quel que soit la valeur du rapport S/L, pour l'eau pure. Alors que dans un système contenant du sel (NaCl), la quantité du polymère adsorbée diminue légèrement avec le rapport S/L, puis atteint un plateau (pour une valeur de S/L d'environ de 0.0007) qui est inférieure à celle dans l'eau pure (**Fig. I.3.6**).

#### I.3.4.2.3 Effet du sel

Simon et al., (2002), ont étudié l'effet du sel (NaCl) sur l'isotherme d'adsorption des deux polymères HEC et hmHEC, la **figure I.3.7** illustre les résultats obtenus par ces auteurs. Il est clair que l'adsorption des deux polymères sur la surface d'argile diminue en présence du sel. Ceci peut être expliqué par l'effet de screening du sel sur la montmorillonite. Le sel pourrait induire l'agrégation des feuillets d'argile ou une floculation par ponts, diminuant ainsi la surface accessible du substrat.



**Figure I.3.7** : Influence du sel (NaCl) sur l'isotherme d'adsorption de HEC et hmHEC sur la montmorillonite (Simon et al., 2002).

A noter qu'aucun test d'adsorption n'a été réalisé dans le cadre du présent travail. Pour l'interprétation de nos résultats, on se base fondamentalement, sur les travaux publiés dans la littérature sur les mélanges eau-bentonite -polymère.

## Références bibliographiques

- Abdelouahab, C., Ait Amar, H., Obretenov, T.Z., Gaid A. Physicochemical and structural characteristics of some bentonitic clays for north-western algeria. *Analysis*. 16: 292–299, (1988).
- Alemdar, A., Atici, O., Güngör, N. The influence of cationic surfactants on rheological properties of bentonite-water systems. *Materials Letters*. 43: 57–61, (2000).
- Alemdar, A., Oztekin, N. Gungor, N. Ece, O.I., Erim, F.B. Effects of polyethyleneimine adsorption on the rheological properties of purified bentonite suspensions. *Colloids Surf. A* 252: 95–98, (2005a).

- Arisz, P.W.F., Lusvardi, K.M. Water-soluble, low substitution hydroxyethyl cellulose, derivatives thereof, process of making, and uses thereof. US patent 0199742 A1, (2006).
- Arisz, P.W.F., Lusvardi, K.M., Nguyen, T.T. Blocky hydroxyethylcellulose, derivatives thereof, process of making and uses thereof. US patent, 8709390 B2, (2014).
- Atia, A.A., Farag, F.M., Youssef, A.E.-F.M. Studies on the adsorption of dodecylbenzenesulfonate and cetylpyridinium bromide at liquid/air and bentonite/liquid interfaces. *Colloids Surf. A.* 278 : 74–80, (2006).
- Auboiroux, M. Affinité de différents cations métalliques ( $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Cu}^{1+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Cd}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ) pour une montmorillonite calcique. Expérimentation et applications. Thèse de l'Université d'Orléans (1998).
- Baßmann, F., Sèquaris, J.-M., Narres, H.-D., Schwuger, M.J. Adsorption of nonionic and anionic polymers on  $\gamma$ -alumina and Na-montmorillonite and their mixtures. *Journal of Dispersion Science and Technology.* 20 (1-2): 607–620, (1999).
- Bakhti, A. Elimination de polluants minéraux et organiques par des argiles modifiées. Thèse de doctorat, Université Djilali Liabes Sidi Bel Abbes (2005).
- Ben Brahim, J. Contribution à l'étude des systèmes eau-argile par diffraction des rayons X. Structure des couches insérées et mode d'empilement des feuillettes dans les hydrates homogènes à deux couches d'eau de la beidellite Na. Thèse de doctorat de l'Université d'Orléans (1985).
- Ben Rhaiem, H., Tessier, D., Pons, C.H. -Comportement hydrique et évolution structurale et texturale des montmorillonites au cours d'un cycle de dessiccation-humectation. Part I. Cas des montmorillonites calciques. *Clay Minerals.* 21: 9–29, (1986).
- Bereket, G., Arog, A.Z., Ozel, M.Z. Removal of Pb(II), Cd(II), Cu(II), and Zn(II) from aqueous solutions by adsorption on bentonite. *J. Colloid Interface Sci.* 187: 338–343, (1997).
- Bérend, I. Mécanismes d'hydratation des montmorillonites homoioniques pour des pressions relatives inférieures à 0.95. Thèse de l'université (Institut National Polytechnique de Lorraine) (1991).
- Bouldin, M., Kulicke, W., Kehler, H. Prediction of the non-Newtonian viscosity and shear stability of polymer solutions. *Coll. Polym. Sci.* 266: 793–805, (1988).
- Breen, C. The characterization and use of poly cation-exchanged bentonites. *Appl. Clay Sci.* 15: 187–219, (1999).
- Chang, S.H., Gupta, R.K., Ryan, M.E. Effect of the adsorption of polyvinyl alcohol on the rheology and stability of clay suspensions. *J. Rheol.* 36: 273–287, (1992).
- Chang, W.-Z., Leong, Y.-K. Ageing and collapse of bentonite gels—effects of Li, Na, K and Cs ions. *Rheol Acta.* 53:109–122, (2014).
- Chatterji, J., and Borchardt, J.K. Applications of water-soluble polymers in the oil field. *JPT.* 2042–2056, (1981).
- Chenevert, M.E. Glycerol mud additive provides shale stability. *Oil Gas J.* 60–64, (1989).
- Claesson, P.M., Dahlgren, M.A.G., Eriksson, L. Forces between polyelectrolyte-coated surfaces: relations between surface interaction and floc properties. *Colloid. Surf. A.* 93: 293–303, (1994).
- Clasen, C. and Kulicke, W.-M. Determination of viscoelastic and rheo-optical material functions of water-soluble cellulose derivatives. *Prog. Polym. Sci.* 26: 1839–1919, (2001).

- Cliffe, S., Dolan, B., Reid, P.I. Mechanism of shale inhibition by polyols in water- based drilling fluids. Paper SPE 28960 presented at the SPE International Symposium on Oilfield Chemistry, San Antonio, Février, (1995).
- Dau, J. and Lagaly, G. Surface Modification of Bentonites. II. Modification of Montmorillonite with Cationic Poly(ethylene oxides). 71: 983–1004, (1998).
- De Gennes, P. G. Scaling Concepts in Polymer Physics. Cornell University Press, (1979).
- Deng, Y., Dixon, J.B. White, G.N. Loeppert, R.H. Juo, A.S.R. Bonding between polyacrylamide and smectite. Colloid. Surf. A. 281: 82–91, (2006).
- Dolz, M., Jiménez, J., Jesús Hernández, M., Delegido, J., Casanovas, A. Flow and thixotropy of non-contaminating oil drilling fluids formulated with bentonite and sodium carboxymethyl cellulose. J. Pet. Sci. Eng. 57: 294–302, (2007).
- Duc, M., Gaboriaud, F., Thomas, F. Sensitivity of the acid-base properties of clays to the methods of preparation and measurement 1: Literature review. J Colloid Interface Sci. 289:139–147, (2005).
- Duchet, J., Sautereau, H., Halley, P., Gerard, J.-F. Rheological properties of organoclay suspensions in epoxy network precursors. Appl. Clay Sci. 25: 207–219, (2004).
- Ece, Ö.I., Güngör, N., Alemdar, A. Influences of Electrolytes, Polymers and a Surfactant on Rheological Properties of Bentonite-Water Systems. J. Incl. Phenom. Macro. 33: 155–168, (1999).
- Egloffstein, T. A. Natural bentonites--influence of the ion exchange and partial desiccation on permeability and self-healing capacity of bentonites used in GCLs. Geotextiles and Geomembranes. 19 : 427-444, (2001).
- Faisandier, K. Analyse multiéchelle de dispersion de montmorillonites par diffusion des rayons X. Relations entre structure, texture et propriétés macroscopiques de gonflement. Thèse de l'Université d'Orléans, (1997).
- Feret, B. Interactions dans les systèmes montmorillonite/Carboxymethylcellulose : application aux fluides de forage. Thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie, (1992).
- Gao, C.H. Preliminary evaluation of gellan gum as mud thickener. J Petrol Explor Prod Technol. 6: 857–861, (2016).
- Glaeser, R. Complexes organo-argileux et rôle des cations échangeables. Thèse de doctorat d'état de l'Université Paris VI, (1953).
- Graessley, W. Polymer chain dimensions and the dependence of viscoelastic properties on the concentration, molecular weight and solvent power. Polymer. 21: 258–262, (1980)
- Glass Jr, JE. HEC-bentonite compatible blends. US patent, 4561985, (1985).
- Gridi-Bennadji, F., Lecomte-Nana, G.L., Bonnet, J.-P., Rossignol, S. Rheological properties of montmorillonitic clay suspensions: Effect of firing and interlayer cations. Journal of the European Ceramic Society. 32: 2809–2817, (2012).
- Güngör, N., Ece, Ö.I. Effect of the adsorption of non-ionic polymer poly(vinyl)pyrrolidone on the rheological properties of Na-activated bentonite. Materials Letters. 39: 1–5, (1999).
- Güngör, N., Alemdar, A., Atici, O., Ece, Ö.I. The effect of SDS surfactant on the flow and zeta potential of bentonite suspensions. Materials Letters. 51: 250–254, (2001).
- Güngör, N., Karaođlan, S. Interaction of polyacrylamide polymer with bentonite in aqueous systems. Materials Letters. 48: 168–175, (2001).

- Heller, H., and Keren, R. Anionic polyacrylamide polymer adsorption by pyrophyllite and montmorillonite. *Clay and clay minerals*. 51(3): 334–339, (2003).
- Hendricks, S.B., Nelson, R.A., Alexander, L.T. Hydration Mechanism of the Clay Mineral Montmorillonite Saturated with Various Cations. *J. Am. Chem. Soc.* 62: 1457–1464, (1940).
- Hughes T.L, Jones T.G.J, Houwen O.H. Chemical characterization of CMC and its relationship to drilling-mud rheology and fluid loss. *SPE Drilling and Completion*. 157–164, (1993).
- Isci, S., Guner, F.S., Ece, O.I., Gungor, N. Investigation of rheological and colloidal properties of bentonitic clay dispersion in the presence of a cationic surfactant. *Prog.Org. Coat.* 54: 28–33, (2005).
- Israelachvili, J. Intermolecular and surface forces Academic Press, London, second edition, (1992).
- Janek, M., and Lagaly, G. Interaction of a cationic surfactant with bentonite: A colloid chemistry study. *Colloid Polymer Sci.* 281: 293–301, (2003).
- Jozja, N. Étude de matériaux argileux Al banais. Caractérisation "multi-échelle" d'une bentonite magnée sienne. Impact de l'interaction avec le nitrate de plomb sur la perméabilité. Thèse de doctorat de l'Université d'Orléans, (2003).
- Kozaki, T., Sato, H., Sato, S., Ohashi, H. Diffusion mechanism of cesium ions in compacted montmorillonite. *Engineering Geology*. 54: 223–230, (1999).
- Kozaki, T., Fujishima, A., Saito, N., Sato, S., Ohashi, H. Effects of dry density and exchangeable cations on the diffusion process of sodium ions in compacted montmorillonite. *Engineering Geology*. 81: 246–254, (2005).
- Kulicke, W., Clasen, C. *Viscosimetry of polymers and polyelectrolytes*. Springer, Hamburg. (2004).
- Laschet, M., Plog, J.P., Clasen, C., Kulicke, W.-M. Examination of the flow behaviour of HEC and hmHEC solutions using structure–property relationships and rheo-optical methods. *Colloid Polym. Sci.* 282: 373–380, (2004).
- Lee, J.D., Englezos, P. Enhancement of the performance of gas hydrate kinetic inhibitors with polyethylene oxide. *Chem. Eng. Sci.* 60 (19): 5323–5330, (2005).
- Le Pluart, L. Nanocomposites Epoxyde/amine/montmorillonite : Rôle des interactions sur la formation, la morphologie aux différents niveaux d'échelle et les propriétés mécaniques des réseaux. Thèse de doctorat de L'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, (2002).
- Le Pluart, L., Duchet, J., Sautereau, H., Halley, P., Gerard, J.-F. Rheological properties of organoclay suspensions in epoxy network precursors. *Appl. Clay Sci.* 25 : 207–219, (2004).
- Lootens, D. Ciments et suspensions concentrées modèles. Écoulement, encombrement et floculation. Thèse de Doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie, (2004).
- Luckham, P.F., and Rossi, S. Colloidal and rheological properties of bentonite suspensions. *Adv. Colloid Interface Sci.* 82: 43–92, (1999).
- Mahmoud, S.A., Dardir, M.M. Synthesis and Evaluation of a New Cationic Surfactant for Oil-Well Drilling Fluid. *J Surfact Deterg.* 14: 123–130, (2011).
- M'bodj, O., Kbir Ariguib, N., Trabelsi Ayadi, M., Magnin, A. Plastic and elastic properties of the systems interstratified clay-water-electrolyte-xanthan. *J. Colloid Interface Sci.* 273: 675–684, (2004).

- McFarlane, A., Yeap, K.Y., Bremmell, K., Addai-Mensah, J. The influence of flocculant adsorption kinetics on the dewaterability of kaolinite and smectite clay mineral dispersions. *Colloids Surf. A.* 317: 39–48, (2008).
- Mering, J. On the hydration of montmorillonite. *Trans. Faraday Soc.* 42B: 205–219, (1946).
- Méring, J., and Glaeser, R. Sur le rôle de la valence des cations échangeables dans la montmorillonite. *Bull. Soc. Franc. Minér. Crist.* LXXVII: 519–530, (1954).
- Mering, J. and Oberlin, A. The smectites in *The Electron-Optical Investigation of Clays*. J. A. Gard Eds., Mineralogical Society, London. p195, (1971).
- Mitchell, J. R. Rheology of polysaccharides solutions and gels. In *Polysaccharides in foods*, J.M.V. Blanshard and J.R. Mitchell, eds. 51–72, Butterworth, London, (1979).
- Mongondry, P. Structure et comportement rhéologique des suspensions aqueuses de Laponite en présence de plusieurs additifs. Université du Maine - Le Mans, (2003).
- Norrish K. The swelling of montmorillonite. *Disc. Faraday Soc.* 18: 120–133, (1954).
- Nwosu, O.U., Ewulonu, C. M. Rheological Behaviour of Eco -friendly Drilling Fluids from Biopolymers. *Journal of Polymer and Biopolymer Physics Chemistry.* 2 (3): 50–54, (2014).
- Ouaer, H., Gareche, M. The rheological behaviour of a water-soluble polymer (HEC) used in drilling fluids. *J. Braz. Soc. Mech. Sci. Eng.* 40: 380, (2018). <https://doi.org/10.1007/s40430-018-1301-7>.
- Ouaer, H., Gareche, M., Rooki, R. Rheological studies and optimization of Herschel-Bulkley parameters of an environmentally friendly drilling fluid using genetic algorithm. *Rheol. Acta.* 57: 693–704, (2018). <https://doi.org/10.1007/s00397-018-1110-z>.
- Pédro, G. Les minéraux argileux. Dans "Pédologie (2 - Constituants et propriétés du sol)". Eds. Duchaufour Ph. et Southier B. Masson, Paris, 665: 47–64, (1994).
- Perricone, A.C., Clapper, D.K., Enright, D.P. Modified non-polluting liquid phase shale swilling inhibition drilling fluid and method for using same. U.S Patent N°.4830765, (1989).
- Pons, C.H. Mise en évidence des relations entre la texture et la structure dans les systèmes eau-smectites par diffusion aux petits angles du rayonnement synchrotron. Thèse de doctorat de L'Université d'Orléans, (1980).
- Pusch, R. Mineral-water interactions and their influence on the physical behaviour of highly compacted Na bentonite. *Can.Geotech. J.* 19: 381–387, (1982).
- Rabia, H. Oilwell drilling engineering. Graham and Trotman Ltd. 105-130, (1985).
- Raines, R.H. Use of low M.S. (molar substitution) hydroxyethyl cellulose for fluid loss control in oil well applications. U.S. patent, 4629573, (1986).
- Ramos-Tejada, M.M., De Vicente, J., Ontiveros A., Durán, J.D.G. Effect of humic acid adsorption on the rheological properties of sodium montmorillonite suspensions. *J. Rheol.* 45: 1159–1172, (2001).
- Ramos-Tejada, M.M., Ontiveros, A., del Carmen Plaza, R., Delgado A.V., Durán, J.D.G. A rheological approach to the stability of humic acid/clay colloidal suspensions" *Rheol. Acta.* 42: 148–157, (2003).
- Ratkievicius, L.A., Da Cunha Filho, F.J.V., Neto, E.L.D.B., Santanna, V.C. Modification of bentonite clay by a cationic surfactant to be used as a viscosity enhancer in vegetable-oil-based drilling fluid. *Appl. clay sci.* 135: 307–312, (2017).
- Reid, P.I., Craster, B., Crawshaw, J.P., Balson, T.G. Drilling fluid. US patent, 6544933 B1, (2003).

- Rodd, A.B., Dunstan D.E., Boger, D.V. Characterisation of xanthan gum solutions using dynamic light scattering and rheology. *Carbohydr. Polym.* 42: 159–174, (2000).
- Shah, S., Heinle, S.A., Glass, J.E. Water-Soluble Polymer Adsorption from Saline Solutions. SPE paper 13561 presented at the International Symposium on Oilfield and Geothermal Chemistry held in Phoenix, Arizona, April 9-11, 115–124, (1985).
- Shettigar, R.R., Misra, N.M., Patel, K. Novel PAM Complex as Rheology Modifier and Fluid Loss Controller for Montmorillonite Fluid. *International Journal of Chemical Engineering and Applications.* 8 (4): 261–266, (2017).
- Shettigar, R.R., Misra, N.M., Patel, K. Cationic surfactant (CTAB) a multipurpose additive in polymer-based drilling fluids. *J Petrol Explor Prod Technol.* 8: 597–606, (2018).
- Simon, S., Le Cerf, D., Picton, L., Muller, G. Adsorption of cellulose derivatives onto montmorillonite: a SEC – MALLS study of molar masses influence. *Colloids Surf. A.* 203: 77–86, (2002).
- Southwick, J.G., Jamieson, A.M., Blackwell, J. Quasi-Elastic Light Scattering Studies of Semi-dilute Xanthan Solutions. *Macromolecules.* 14 : 1728 –1732, (1981).
- Suquet, H. Propriétés de gonflement et structure de la saponite. Comparaison avec la vermiculite. Thèse, Université Pierre et Marie Curie, 269p, (1978).
- Swanson, B.L. Drilling fluids. US patent, 4425241, (1984).
- Swartzen-Allen, S. L. and Matijevic, E. Surface and colloid chemistry of clays. *Chem. Rev.* 74: 385–400, (1974).
- Tadros, T. Interaction forces between particles containing grafted or adsorbed polymer layers. *Adv. Colloid Interface Sci.* 104: 191–226, (2003).
- Talaghat, M.R. Intensification of the performance of kinetic inhibitors in the presence of polyethylene oxide and polypropylene oxide for simple gas hydrate formation in a flow mini-loop apparatus. *Fluid Phase Equilibria.* 289 (2): 129–134, (2010).
- Talaghat, M.R. Enhancement of the performance of kinetic inhibitors in the presence of polyethylene oxide and polypropylene oxide for binary mixtures during gas hydrate formation in a flow mini-loop apparatus. *Can. J. Chem. Eng.* 90 (1): 79–86, (2012).
- Teraoka, I. Polymer solutions. Wiley, New York, (2002).
- Touret, O., Pons, C.H., Tessier, D., Tardy, Y. Etude de la repartition de l'eau dans des argiles saturées  $Mg^{2+}$  aux fortes teneurs en eau. *Clay Minerals.* 25: 217–233, (1990).
- Van Olphen, H. Internal mutual flocculation in clay suspensions. *J. Colloid Sci.* 19(4): 313–322, (1964). DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0095-8522\(64\)90033-9](http://dx.doi.org/10.1016/0095-8522(64)90033-9).
- Van Olphen, H. An Introduction to Clay Colloid Chemistry. Wiley, New York, (1977).
- Wiśniewska, M., Fijałkowska, G., Szewczuk-Karpisz, K. The mechanism of anionic polyacrylamide adsorption on the montmorillonite surface in the presence of Cr(VI) ions. *Chemosphere.* 211: 524–534, (2018).
- Yalçın, T., Alemdar, A., Ece, Ö.I., Güngör, N., Çoban, F. By particle interactions and rheological properties of bentonites + ALS suspensions. *Materials Letters.* 53: 211–215, (2002).
- Yang, D., Li, W., Kang Q., Shen, D. Influence of light scattering of residual silica particles on the estimation of surfactants adsorption by spectrometry. *Colloids Surf. A.* 227: 113–123, (2003).

- Zhou, D., Zhang, Z., Tang, J., Wang, F., Liao, L. Applied properties of oil-based drilling fluids with montmorillonites modified by cationic and anionic surfactants. *Appl. Clay Sci.* 121–122: 1–8, (2016).
- Zhuang, G., Zhang, H., Wu, H., Zhang, Z., Liao, L. Influence of the surfactants' nature on the structure and rheology of organo-montmorillonite in oil-based drilling fluids. *Appl. clay sci.* 135: 244–252, (2017).

## Chapitre II

### Notions et revue sur la rhéologie des fluides complexes

La rhéologie des suspensions de boue est d'une grande importance pour prédire le comportement de ces boues dans les différentes conditions de forage. La rhéologie est la science qui concerne la déformation de toute forme de matière, mais on retrouve plus son application dans les écoulements de fluide à travers différentes configurations géométriques. Nous verrons dans cette partie que les fluides de forage y compris les suspensions de bentonite sont des fluides non-Newtoniens. Dans cette optique, une caractérisation de ces fluides passe avant tout par l'étude du comportement rhéologique et la modélisation mathématique de leur comportement à l'échelle micro et/ou macroscopique en vue de mettre en évidence les phénomènes physico-chimiques mis en jeu.

Tout d'abord, nous commencerons par la présentation des différents modèles rhéologiques, puis nous représenterons une synthèse bibliographique du comportement d'écoulement et viscoélastique des suspensions de bentonite. Par la suite, nous passerons à la rhéométrie des solutions de HEC et des mélanges bentonite-polymères non ioniques.

#### II.1. Modèles rhéologiques

Le comportement rhéologique d'un fluide peut être classifié selon la relation existante entre la contrainte de cisaillement appliquée ( $\tau$ ) et le taux de déformation résultant ( $\dot{\gamma}$ ) trouvé dans les conditions de flux laminaire. Cette relation est normalement obtenue en ajustant les courbes d'écoulements obtenues à partir des données viscosimétriques expérimentales.

On dit qu'un fluide est Newtonien, si la relation entre ( $\tau$ ) et ( $\dot{\gamma}$ ) est linéaire sinon les fluides sont dits non-Newtoniens. Ces derniers sont généralement divisés en trois catégories principales : fluides indépendants du temps, fluides dépendants du temps et fluides viscoélastiques, bien qu'en réalité les fluides puissent appartenir à plusieurs catégories ([Sochi, 2010](#)).

##### II.1.1 Modèles indépendants du temps

Un fluide est dit indépendant du temps si le taux de cisaillement à un point donné dépend de la contrainte de cisaillement instantanée à cet endroit. Le fluide est décrit en tant que rhéofluidifiant ou pseudo-plastique si la viscosité diminue, et en tant que rhéoépaississant ou dilatant si la viscosité augmente en fonction du taux de cisaillement. Les modèles rhéologiques indépendants du temps peuvent ou non contenir une contrainte seuil.

Dans l'industrie pétrolière, les modèles rhéologiques les plus courants pour les fluides indépendants du temps qui possèdent une contrainte seuil sont : Bingham, Casson et Herschel-Bulkley (H – B). Ils s'écrivent respectivement :

$$\tau = \tau_c + \eta_B \dot{\gamma} \quad (\text{II.1.1})$$

$$\sqrt{\tau} = \sqrt{\tau_c} + \sqrt{\eta_C \dot{\gamma}} \quad (\text{II.1.2})$$

$$\tau = \tau_c + k \dot{\gamma}^n \quad (\text{II.1.3})$$

Avec  $\tau_c$  est la contrainte seuil (Pa),  $\eta_B$  et  $\eta_C$  sont les viscosités de Bingham et de Casson (Pa.s) et  $k$  et  $n$  représentent l'indice de consistance et d'écoulement respectivement.

Les modèles de Bingham et de Casson sont des modèles à deux paramètres ( $\tau_c$  et  $\eta_B$  ou  $\eta_C$ ) alors que de (H–B) est un modèle à trois paramètres ( $\tau_c$ ,  $k$  et  $n$ ). D'autres modèles sont disponibles dans la littérature (voir Govier et Aziz, 1972; Bird et al., 1983; Barnes, 1999; Bailey et Peden, 2000; Kelessidis et al., 2006; Nasiri et Ashrafizadeh, 2010). Notez que le modèle (H–B) se réduit au modèle de loi de puissance (Govier et Aziz, 1972) si  $\tau_c = 0$ .

La loi de puissance proposée par Ostwald-de Waele, (1925), est plus souvent utilisée pour décrire le comportement rhéologique des fluides sans seuil. Elle a pour expression :

$$\tau = k \dot{\gamma}^n \quad (\text{II.1.4})$$

D'où vient l'expression de la viscosité apparente :

$$\eta = k \dot{\gamma}^{-(1-n)} \quad (\text{II.1.5})$$

Où  $k$  est une constante et  $n$  un exposant qui traduit l'écart par rapport au comportement newtonien pour lequel  $n = 1$ . Par ailleurs, il existe d'autres modèles plus complexes que la loi de puissance pour décrire le comportement de la viscosité en fonction du cisaillement (Barnes et al., 1989 ; Couarraze et Grossiord, 2000). On trouve Le modèle de Carreau-Yassuda (Bird et al., 1987) et de Cross (1965), qui tiennent compte du plateau de la viscosité à cisaillement nul et à l'infini. Ils peuvent être exprimé comme suit:

- Modèle de Cross 
$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + \lambda \dot{\gamma}^n} \quad (\text{II.1.6})$$

- Modèle de Carreau 
$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{(1 + (\lambda \dot{\gamma})^2)^{\frac{n-1}{2}}} \quad (\text{II.1.7})$$

Avec  $\lambda$  est un temps caractéristique de relaxation et  $\eta_0$  et  $\eta_\infty$  représentent respectivement la viscosité à cisaillement nul et à l'infini en (Pa.s).

### II.1.2 Modèles dépendants du temps

On dit qu'un fluide dépend du temps si sa viscosité évolue en fonction du temps à un taux de cisaillement constant. Il existe deux catégories de fluides dépendants du temps: thixotropes, lorsque la viscosité diminue avec le temps à un taux de cisaillement constant et anti-thixotropes, lorsque la viscosité augmente dans des conditions similaires. La plupart des boues de forage sont des fluides thixotropes à basse température (Abu-Jdayil et Ghannam, 2014).

La plupart des modèles qui expriment la thixotropie des fluides trouvés dans la littérature appartiennent à trois groupes: premièrement, la microstructure du fluide est représentée par un paramètre scalaire, typiquement  $\lambda(t)$ , et son changement temporel  $d\lambda/dt$ , deuxièmement, le changement temporel de la microstructure, tel que le nombre de liaisons, est décrit directement, et troisièmement, les données de viscosité-temps sont utilisées pour décrire le comportement

dépendant du temps. Nous allons décrire que le premier groupe seulement, car c'est la théorie mathématique adoptée par la plupart des auteurs pour décrire le comportement thixotrope de nombreux fluides, y compris les boues de forage (Billingham et Ferguson, 1993; Barnes, 1997; Wachs et al., 2009).

En utilisant le paramètre de mesure structurel  $\lambda$ , qui peut varier entre 0 et 1, il est assumé que la structure complètement construite est représentée par  $\lambda=1$ , et la structure complètement décomposée est représentée par  $\lambda=0$ . Puis la thixotropie est introduite via la dérivée temporelle du paramètre de structure,  $d\lambda/dt$ , qui décrit la compétition temporelle entre la structuration de la microstructure et la déstructuration.

Cheng et Evans (1965) ont montré que la forme la plus générale des modèles de comportement constitutive basés sur un seul paramètre de structure  $\lambda(t)$  s'écrit :

$$\frac{d\lambda}{dt} = g(\lambda, II, III) \quad (\text{II.1.8})$$

$$\tau_{ij} = G_1(\lambda, II, III)d_{ij} + G_2(\lambda, II, III)d_{ik}d_{kj} \quad (\text{II.1.9})$$

Où  $t$  est le temps,  $\tau_{ij}$  est le tenseur de contrainte déviatorique,  $d_{ij}$  est le tenseur du taux de déformation,  $II = d_{ij}d_{ji}$  et  $III = d_{ij}d_{jk}d_{ki}$  sont les deuxième et troisième invariants de  $d_{ij}$ , respectivement, et  $g$ ,  $G_1$ , et  $G_2$  sont des fonctions arbitraires de  $d_{ij}$ . Dans les écoulements de cisaillement à une seule dimension, tels que les flux à travers les puits et les pipelines, le troisième invariant  $III$  est identique à zéro et le second invariant  $II$  est égal à  $\dot{\gamma}/2$ . De plus, dans un écoulement unidimensionnel, si  $G_2$  est différent de zéro, le fluide supporte des contraintes normales. Cheng et Evans (1965) et Billingham et Ferguson (1993) ont défini  $G_2 = 0$ , car ils s'intéressaient aux fluides thixotropes non élastiques tels que la boue de bentonite. Ainsi, le modèle constitutif peut être écrit comme suit :

$$\frac{d\lambda}{dt} = g(\lambda, \dot{\gamma}) \quad (\text{II.1.10})$$

$$\tau_{ij} = G_1(\lambda, \dot{\gamma}) \dot{\gamma} \quad (\text{II.1.11})$$

Si la valeur de  $g(\lambda, \dot{\gamma})$  est négative, le système se décompose vers l'équilibre, Si la valeur de  $g$  est positive, le système se développe vers l'équilibre. A l'équilibre, pour chaque valeur de  $\dot{\gamma}$ , il existe une valeur particulière de  $\lambda$  qui peut être trouvée en fixant  $d\lambda/dt$  à 0 dans l'équation (II.1.10).

### II.1.3 Modèles dépendants du temps avec une contrainte seuil

La mesure de la contrainte seuil dépend de l'historique du cisaillement du matériau (Barnes, 1999, 2007; Herzhaft et al., 2003, 2006; Møller et al., 2006). C'est pourquoi les modèles rhéologiques indépendants du temps, tels que le modèle (H-B), (Eq. II.1.3), utilisés pour décrire les fluides rhéofluidifiants thixotropes avec une contrainte seuil représentent les propriétés du fluide à l'état stationnaire, c'est-à-dire sans effets thixotropes. Un pas de plus des modèles indépendants du temps est le modèle de Bingham dépendant du temps (généralisé) utilisé par Davidson et al., (2004) et Negrão et al., (2010) :

$$\tau(t) = \tau_c(t) + \eta_B \dot{\gamma} \quad (\text{II.1.12})$$

et

$$\tau_c(t) = \frac{\tau_c(0) - \tau_c(\infty)}{1 + kt} + \tau_c(\infty) \quad (\text{II.1.13})$$

Où  $\tau_c(0)$  et  $\tau_c(\infty)$  sont les contraintes seuil apparentes au temps  $t=0$  et  $t \rightarrow \infty$ , respectivement, et  $k$  est une constante qui caractérise la consistance du matériau. Noté bien, malgré que la contrainte seuil varie en fonction du temps, la viscosité  $\eta_B$  reste constante, donc ce modèle ne prend pas en considération l'effet de la thixotropie.

## II.2. Rhéologie des suspensions de bentonite

### II.2.1 Comportement d'écoulement

Les suspensions d'argile y compris la bentonite présentent fréquemment un comportement dépendant du temps, appelé thixotropie. Les suspensions d'argile concentrées sont très sensibles au cisaillement, en plus leurs propriétés rhéologiques vont changer avec le temps. Si le taux de cisaillement est renforcé et diminue immédiatement, les contraintes enregistrées pour chaque cisaillement seront plus faibles. Ce phénomène se produit en raison du temps nécessaire pour relier les fragments brisés du réseau à un réseau tridimensionnel. Lorsque le système d'argile est soumis à un taux de cisaillement constant, la viscosité diminue avec le temps car la structure du gel est collapsée jusqu'à ce qu'une viscosité soit atteinte à l'équilibre. Les propriétés rhéologiques des suspensions de bentonite peuvent être affectées par différents paramètres pouvant modifier l'état d'équilibre de ces suspensions. En raison de la charge négative des particules d'argile et de la structure de la double couche électrique, la contrainte seuil et la viscosité varient avec les changements du pH de la suspension et de la concentration en électrolyte. Lorsque la température augmente, cela conduit à une augmentation des forces attractives interparticulaires, ce qui favorisent les interactions particules-particules. La viscosité de la suspension d'argile dépend de la viscosité du milieu qui dépend également de la température (Luckham et Rossi, 1999).

Certaines études montrent que le comportement rhéologique des suspensions de montmorillonite sodique présente relativement un bon accord avec le modèle de Bingham "Eq. II.1.1", (van Olphen, 1964 ; Khandal et Tadros, 1988 ; Falode et al., 2008 ; Duman et Tunç, 2009). D'autres auteurs utilisent le modèle de Papanastasiou (Papanastasiou, 1987 ; Eq. II.2.1) comme un modèle classique plus général, puisqu'il est capable de reproduire les courbes d'écoulement sur une gamme de vitesse de cisaillement plus étendue (Gareche et al., 2003).

$$\tau = \tau_c [1 - \exp(-m\dot{\gamma})] + \mu_\infty \dot{\gamma} \quad (\text{II.2.1})$$

Bien que certains autres études utilisent le modèle (H-B), (Eq. II.1.3) en tant que meilleur modèle pour ajuster les rhéogrammes des suspensions de bentonite (Bekkour et al., 2005 ; Gridi-Bennadji et al., 2012 ; Abu-Jdayil et Ghannam, 2014 ; Huang et al., 2016). L'avantage d'utiliser ce dernier modèle est qu'il donne une meilleure estimation de la contrainte seuil. En outre, il est utile pour obtenir d'autres paramètres tels que l'indice d'écoulement  $n$  et l'indice de consistance  $k$  (Rossi et al., 2002).

L'augmentation de la concentration en électrolytes entraîne une compression de la double couche électrique. Ce qui résulte dans la rupture du réseau accompagnée avec un abaissement des propriétés rhéologiques.

En se basant sur une autre étude, à partir de 3% de suspension de bentonite, le comportement non-Newtonien devient plus visible. La contrainte seuil est renforcée par l'augmentation de la concentration en bentonite (Mahto et Sharma, 2004).

## II.2.2 Phénomènes de viscoélasticité des suspensions de bentonite

Dans la nature, il existe des substances ayant un comportement viscoélastique intermédiaire entre celui d'un solide élastique parfait et celui d'un liquide visqueux newtonien, appelées les corps viscoélastiques. Dans cette partie, nous présentons les propriétés des deux matériaux idéaux en explicitant le comportement viscoélastique des suspensions de bentonite à travers les essais de fluage (essais à contrainte imposée) et les essais oscillatoires (essais en régime dynamique).

### II.2.2.1 Essai de fluage

L'équation rhéologique qui permet de caractériser un solide élastique est la loi de Hooke qu'on écrit sous la forme :

$$\tau = G \cdot \gamma = \frac{\gamma}{J} \quad (\text{II.2.2})$$

avec  $G$  représente le module élastique (de rigidité) et  $J$  est la complaisance élastique. La déformation est proportionnelle à la contrainte. Si la contrainte est annulée, la déformation redevient instantanément égale à 0. Le comportement d'un solide élastique peut être schématisé par un ressort qui récupère sa forme initiale lorsque l'on supprime la contrainte qu'il a subie (**Fig. II.2.1a**). L'équation de fluage a pour expression :

$$f(t) = J \quad (\text{II.2.3})$$

Pour un fluide visqueux Newtonien, l'équation rhéologique peut être exprimée par la forme suivante :

$$\tau = \eta \cdot \dot{\gamma} \quad (\text{II.2.4})$$

Pour ce type de fluide si on applique une contrainte constante, la déformation croît linéairement avec le temps : le liquide s'écoule indéfiniment. Ce fluide se souvient aussi de toutes les valeurs prises par la contrainte de  $t_0$  à  $t_1$  (**Fig. II.2.1b**). Si la contrainte est ramenée à zéro, la déformation demeure constante et égale à la valeur qu'elle possédait à l'instant  $t_1$ . La déformation est donc irrécupérable. Ce comportement visqueux peut être schématisé par un amortisseur qui ne récupère pas, après la suppression de la contrainte, la déformation qu'il a subie (**Fig. II.2.1b**). La fonction de fluage s'écrit sous la forme :

$$f(t) = \frac{t}{\eta} \quad (\text{II.2.5})$$

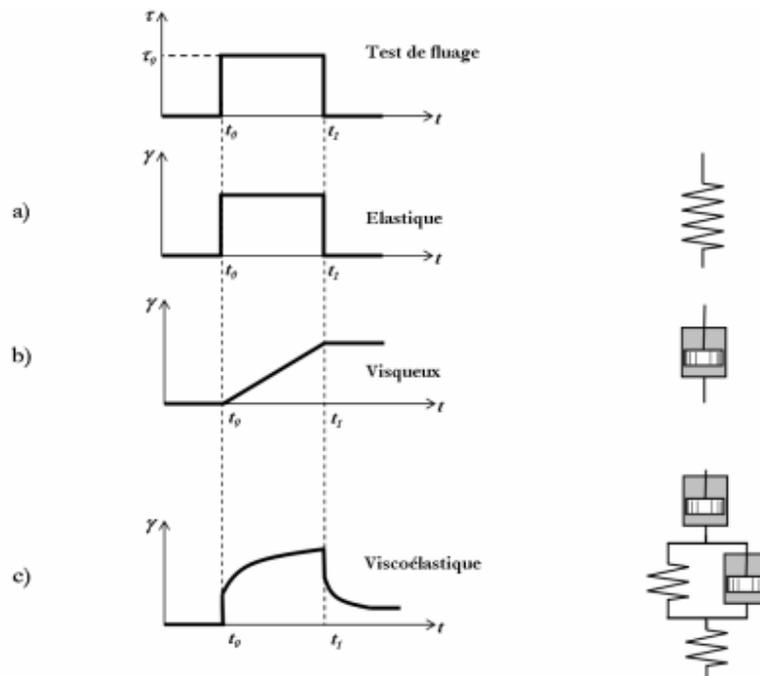
Un matériau viscoélastique représente un comportement intermédiaire entre celui d'un liquide et celui d'un solide. L'essai de fluage permet de bien comprendre la structure responsable de ces comportements rhéologiques dans le cas des suspensions argileuses en accédant aux propriétés des dispersions dans des conditions près de l'état de repos, sans destruction de la structure interne. La **figure II.2.1c** présente un cas type de comportement viscoélastique. Ce dernier peut être représenté par les modèles de Voigt et de Maxwell. La modélisation des phénomènes de viscoélasticité est faite par l'association en parallèle (solide de Kelvin-Voigt) ou en série (Liquide de Maxwell) d'un ressort de complaisance élastique  $J$ , et d'un amortisseur de viscosité  $\eta$  (Couarraze et Grossiord, 2000).

Le modèle de Kelvin-Voigt généralisé est fabriqué par l'association en série d'un élément de Maxwell et des éléments de Voigt alors que le modèle de Maxwell généralisé est obtenu par l'association en parallèle de n éléments de Maxwell. Si un seul des éléments de Maxwell de chacun de ces modèles est amputé de son amortisseur, il y aura une représentation d'un solide viscoélastique. Dans notre travail de thèse, on a choisi d'analyser les différents essais liés au comportement solide de nos suspensions par le modèle de Zener (**Fig. II.2.2a et b**).

La fonction de fluage du modèle de Zener, basé sur le modèle de Kelvin Voigt (Zener-Voigt) s'exprime par :

$$f(t) = J_0 + J_1 \left(1 - e^{-\frac{t}{J_1 \eta_1}}\right) \quad (\text{II.2.6})$$

Avec  $J_0$  la complaisance instantanée ( $\text{Pa}^{-1}$ ),  $\eta_1$  et  $J_1$  sont les viscosités ( $\text{Pa.s}$ ) et complaisances ( $\text{Pa}^{-1}$ ) du premier élément,  $\Theta_1 = J_1 \cdot \eta_1$  est un temps caractéristique (s).



**Figure II.2.1** : Essai de fluage (contrainte imposée) suivi de recouvrance pour a) solide élastique, b) fluide newtonien, c) matériau viscoélastique.

Les modules de conservation  $G'$  et de perte  $G''$  du modèle de Zener, basé sur le modèle de Maxwell (Zener-Maxwell) sont définis par les expressions:

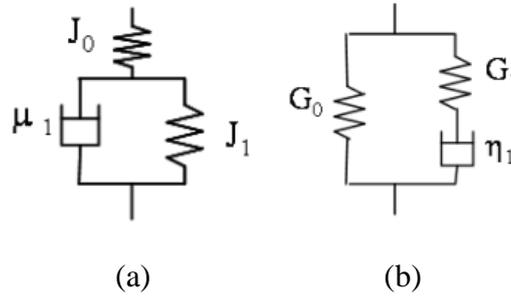
$$G = G' + iG'' \quad (\text{II.2.7})$$

$$G' = G_0 + \frac{G_1(w\Theta_1)^2}{1+(w\Theta_1)^2} \quad (\text{II.2.8})$$

$$G'' = \frac{G_1 \cdot w\Theta_1}{1+(w\Theta_1)^2} \quad (\text{II.2.9})$$

Avec  $G'$  et  $G''$  sont les modules de conservation et de perte (Pa),  $G_0$  et  $G_1$  sont les modules élastiques,  $\Theta_1$  est le temps de relaxation (s) et  $w$  est la pulsation (rad/s).

La détermination des paramètres  $G_0$ ,  $G_1$  et  $\Theta_1$  se fait par minimisation quadratique sur des essais en balayage de fréquence.



**Figure II.2.2** : Schéma illustrant les modèles de (a) Zener-Voigt, (b) Zener-Maxwell.

Durán et al., (2000) ont fait des essais de fluage pour étudier le comportement rhéologique des suspensions de Na-montmorillonite (5%) à différentes valeurs de pH et ils ont trouvés les résultats mentionnés dans la **figure II.2.3.a**. Ces essais ont été réalisés en appliquant une contrainte constante (elle appartient au domaine de la viscoélasticité linéaire,  $\tau = 0.2$  Pa) pendant un temps  $T = 120$  secondes. Les courbes (**Fig. II.2.3.a**) ont été obtenues par enregistrement de l'évolution au cours du temps de la complaisance élastique, ou déformation par unité de contrainte,  $J(t) = \gamma(t)/\tau$ . À l'instant  $t = T$ , la contrainte est ramenée instantanément égal à zéro et on mesure la recouvrance (**Fig. II.2.3.a**). Durán et al., (2000) ont appliqué le modèle de Kelvin-Voigt pour modéliser la viscoélasticité des suspensions argileuses, la fonction de fluage de ce modèle s'écrit comme suit :

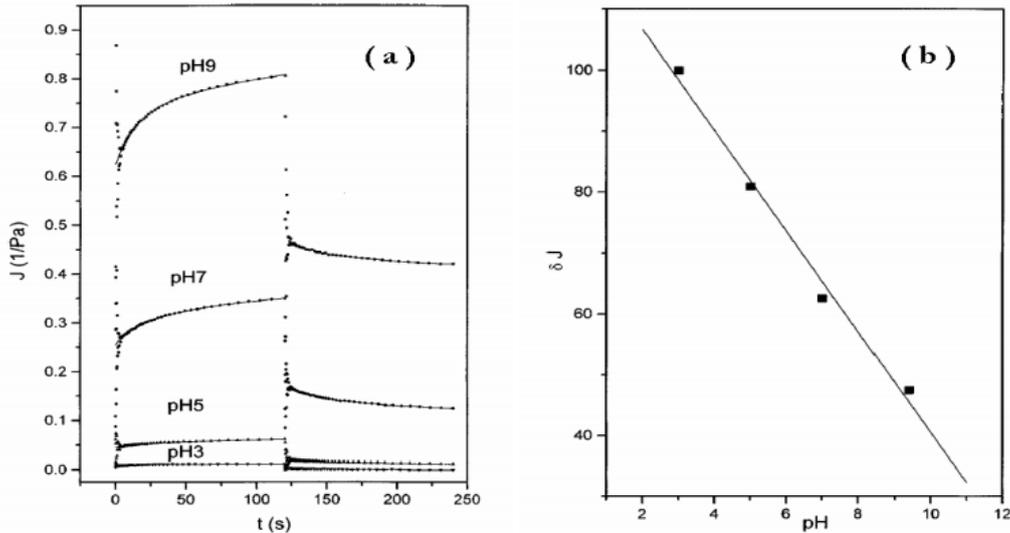
$$f(t) = J_0 + \frac{t}{\eta_0} + \sum_{i=1}^n J_i (1 - e^{-t/\Theta_i}) \quad (\text{II.2.10})$$

Avec  $\Theta_i = \eta_i J_i$  est le temps de retard du  $i^{\text{ème}}$  solide de Kelvin-Voigt et  $n$  est le nombre de solides de Kelvin-Voigt.

Comme il est observé sur les courbes de fluage de la **figure II.2.3.a**, ils peuvent être divisées en trois parties : (i) une variation instantanée à  $t = 0$ , d'amplitude  $J_0$  : élasticité instantanée, (ii) Une variation assez rapide au cours du temps correspondant à l'élasticité retardée des différents solides de Kelvin-Voigt, (iii) Une variation linéaire de pente  $1/\eta_0$  correspondant à un régime d'écoulement permanent.

Durán et al., (2000) ont calculé le taux de recouvrance  $\Delta J$  atteint par la suspension après l'annulation de la contrainte par la relation suivante :

$$\Delta J = 100 \frac{J(120) - J(240)}{J(120)} \quad (\text{II.2.11})$$



**Figure II.2.3 :** a) La fonction complaisance  $J(t)$  en fonction du temps et pH, b) Taux de recouvrance  $\Delta J$  en fonction du pH calculés en utilisant les données présentées en (a) (D'après Durán et al., 2000).

$J(120)$  et  $J(240)$  représentant la valeur de la complaisance à la fin des courbes de retard et de recouvrance, respectivement. Le taux de recouvrance est calculé par Durán et al., (2000), afin de quantifier l'effet de pH sur la viscoélasticité des suspensions de montmorillonite. On dit qu'un comportement est celui d'un solide lorsque  $\Delta J=100\%$ , et il semble de comportement fluide lorsque  $\Delta J=0\%$ . Durán et al., (2000) ont montré que la suspension de montmorillonite de sodium passe d'un état solide élastique à un état quasi fluide lorsque le pH augmente de 3 à 10 qui est illustré sur la **figure II.2.3.b**.

### II.2.2.2 Essai oscillatoire

En plus des essais de fluage, on trouve en viscoélasticité linéaire d'autre type d'essai qui permet d'étudier le comportement des systèmes colloïdaux et surtout de caractériser les propriétés intrinsèques telles que le module de conservation et de perte, ce sont les essais dynamiques. Ces derniers consistent à imposer sur le matériau une contrainte (ou déformation) qui varie sinusoïdalement au cours du temps suivant une fréquence donnée. Tout d'abord, on commence par la présentation des essais dynamiques puis on passe à citer quelques travaux réalisés où ce type d'essai rhéologique a été à l'origine de la caractérisation viscoélastique des suspensions argileuses.

On considère un matériau donné soumis à une contrainte oscillatoire de la forme suivante (Ferguson et Kemblowski, 1991) :

$$\tau(t) = \tau_0 \cos(wt) \quad (\text{II.2.12})$$

Avec  $\tau_0$  représente l'amplitude de la contrainte appliquée et  $w$  est la fréquence d'oscillation. Suivant ces conditions d'essai, le corps aura une réponse suivant une loi de Hooke (**Eq. II.2.2**). Donc, selon l'équation **II.2.12**, nous avons :

$$\gamma = \frac{\tau}{G} = \frac{\tau_0}{G} \cdot \cos(wt) = \gamma_0 \cdot \cos(wt) \quad (\text{II.2.13})$$

Avec  $\gamma_0 = \tau_0/G$  est l'amplitude de la déformation mesurée. Il découle de l'équation II.2.13 que la déformation est complètement en phase avec la contrainte appliquée (Fig. II.2.4.a).

Dans le cas d'un fluide visqueux idéal qui régit l'équation rhéologique II.2.4 et selon l'équation II.2.12, la variation de la vitesse de déformation est de la forme suivante :

$$\dot{\gamma} = \frac{\tau}{\eta} = \frac{\tau_0}{\eta} \cdot \cos(\omega t) \quad (\text{II.2.14})$$

L'intégration l'équation II.2.14 par rapport au temps, permet d'écrire :

$$\gamma = \frac{\tau_0}{\eta \cdot \omega} \cdot \sin(\omega t) = \frac{\tau_0}{\eta \cdot \omega} \cdot \cos\left(\omega t - \frac{\pi}{2}\right) = \gamma_0 \cdot \cos\left(\omega t - \frac{\pi}{2}\right) \quad (\text{II.2.15})$$

Avec  $\gamma_0 = \frac{\tau_0}{\eta \cdot \omega}$  représente l'amplitude de la déformation pour un fluide visqueux.

Il est évident pour le cas d'un fluide idéal que la déformation mesurée est en déphasage de  $90^\circ$  avec la contrainte appliquée (Fig. II.2.4.b).

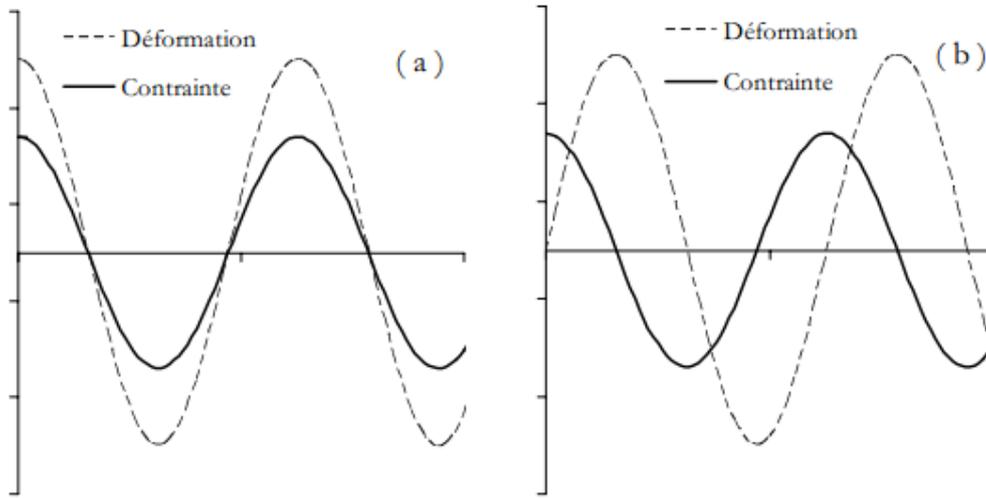


Figure II.2.4 : Essai oscillatoire pour : a) matériau élastique idéal, b) fluide visqueux idéal (Ferguson et Kemblowski, 1991).

Pour un matériau viscoélastique intermédiaire, l'application d'une contrainte sinusoïdale aura une réponse sous forme d'une déformation qui doit être en déphasage avec cette contrainte appliquée. Le déphasage correspond à une certaine valeur  $\delta$  tel que  $\delta \in ]0, \pi/2[$ . Donc la déformation peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\gamma = \gamma_0 \cdot \cos(\omega t - \delta) \quad (\text{II.2.16})$$

Pour faciliter les calculs, il est commode d'employer le formalisme des nombres complexes. Donc, on fait correspondre aux grandeurs réelles  $\tau(t)$  et  $\gamma(t)$  des grandeurs complexes (Midoux, 1993 ; Couarraze et Grossiord, 2000). D'où :

$$\tau = \tau_0 \cdot \cos(\omega t) = \text{Re}(\tau_0 \cdot e^{i(\omega t)}) \quad (\text{II.2.17})$$

$$\gamma = \gamma_0 \cdot \cos(\omega t - \delta) = \text{Re}(\gamma_0 \cdot e^{i(\omega t - \delta)}) \quad (\text{II.2.18})$$

Le module complexe d'élasticité peut être donc défini comme suit :

$$G^* = \frac{\tau_0 \cdot e^{i(\omega t)}}{\gamma_0 \cdot e^{i(\omega t - \delta)}} = \frac{\tau_0}{\gamma_0} e^{i\delta} \quad (\text{II.2.19})$$

L'équation I.2.19 peut être écrite, en utilisant la forme trigonométrique comme suit :

$$G^* = G' + iG'' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} (\cos\delta + i\sin\delta) \quad (\text{II.2.20})$$

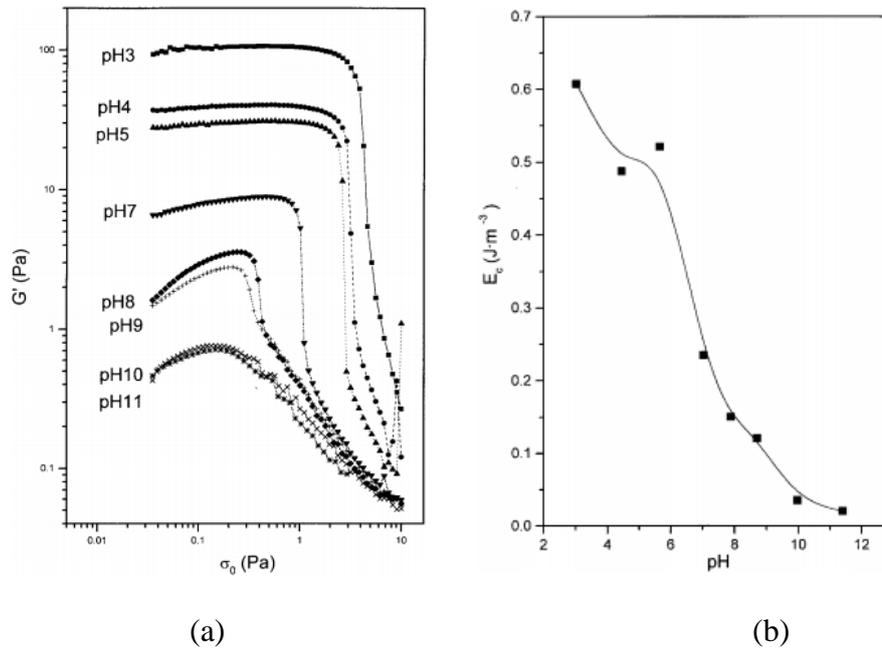
Avec  $G'$  représente le module de conservation qui permet de caractériser le comportement d'un solide élastique.  $G''$  est le module de perte représentant la composante visqueuse. Ces deux modules sont égaux à :

$$G' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} \cos\delta \quad (\text{II.2.21})$$

$$G'' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} \sin\delta \quad (\text{II.2.22})$$

Pas mal de travaux ont été consacrés dans le cadre de l'étude du comportement rhéologique des suspensions de bentonite en régime dynamique du fait de la grande importance de ce type de test. [Durán et al., \(2000\)](#) ont réalisé des tests en régime dynamique à différente valeur du pH pour une gamme de fréquence allant de  $10^{-2}$  à  $10^2$  Hz. Ils ont appliqué une amplitude de contrainte appartenant au domaine de la viscoélasticité linéaire qui est de 0.2 Pa. Ces auteurs ont observé que l'énergie de cohésion diminue avec l'augmentation du pH (**Fig. II.2.5b**) et que le système atteint une déformation maximale  $\gamma_c$  qui est reliée à cette énergie de cohésion, cette relation est donnée comme suit ([Ramsay et al., 1978](#) ; [Tadros, 1996](#)):

$$E_c = \frac{1}{2} G' \cdot \gamma_c^2 \quad (\text{II.2.23})$$

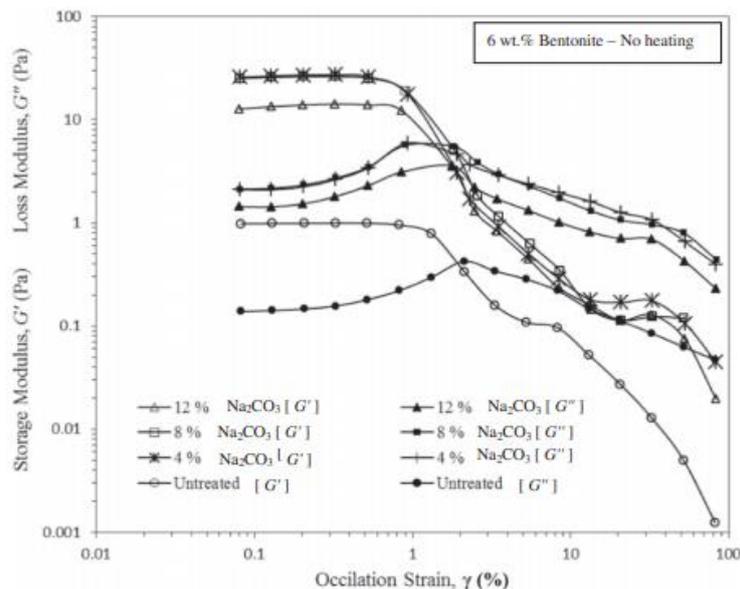


**Figure II.2.5 :** Essais d'oscillation effectués sur des suspensions de Na-montmorillonite (5%), a) module  $G'$  en fonction de la contrainte appliquée, pour différentes valeurs de pH et fréquence fixée à 1Hz. b) Energie de cohésion en fonction du pH (d'après [Durán et al., 2000](#)).

Les auteurs [Durán et al., \(2000\)](#) ont également étudié l'évolution de  $G'$  en fonction de la contrainte à une fréquence constante fixée à 1 Hz et à différentes valeurs du pH (**Fig. II.2.5a**). Ils ont remarqué que la contrainte maximale qu'on peut appliquer sans sortir du domaine linéaire est autant plus grande que le pH diminue. Ils indiquent plus le milieu est basique (pH élevés), plus la structure est facile à briser.

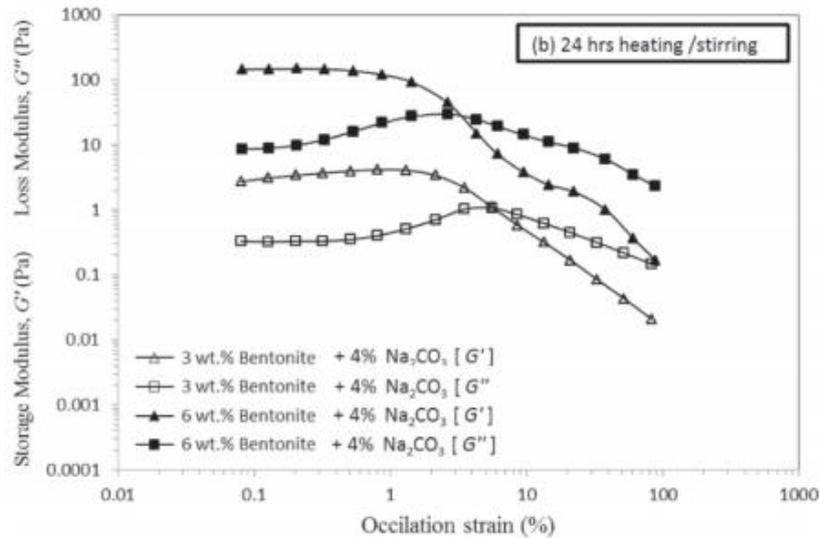
A l'aide de l'équation **II.2.23** avec les valeurs moyennes de  $G'$  dans la partie linéaire, [Durán et al., \(2000\)](#) ont calculé l'énergie de cohésion  $E_c$ , et ils ont la présenté en fonction du pH (**Fig. II.2.5b**). Ils ont remarqué une décroissance monotone de l'énergie de cohésion en fonction du pH, ce qui confirme leur résultat sur la **figure II.2.3b**.

Récemment, [Magzoub et al., \(2017\)](#) ont étudié le comportement rhéologique viscoélastique de dispersions colloïdales de Ca-bentonite sous l'effet de la concentration du carbonate de sodium, de la durée du chauffage et d'agitation. Ils ont effectué un balayage en déformation et en fréquence à différentes concentrations du carbonate de sodium et différentes conditions de chauffage et d'agitation. Le premier balayage a été effectué pour une gamme de déformation allant de 0.1 à 100% avec une fréquence constante de 6 rad/s et le balayage en fréquence est obtenu en variant la fréquence entre 0.01 et 100 rad/s et en fixant une amplitude de déformation à 1%. Ils ont noté que tous les échantillons de bentonite traités et non traités présentaient un comportement de type solide élastique dans la région de viscoélasticité linéaire. Cependant, la bentonite non traitée a un module de conservation ( $G'$ ) beaucoup plus bas par rapport à la bentonite traitée avec le carbonate de sodium (**Fig. II.2.6**).



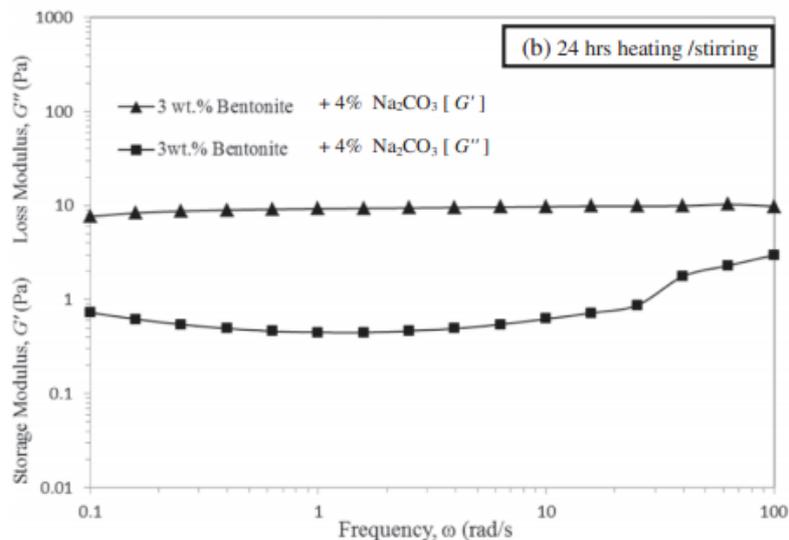
**Figure II.2.6** : Essais dynamiques de balayage en déformation pour 6% de bentonite traitée avec  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  à différentes concentrations (2%, 4% et 12%) (D'après [Magzoub et al., 2017](#)).

Les résultats de ces auteurs indiquent également que la durée combinée de chauffage et d'agitation des échantillons de bentonite traités chimiquement a considérablement augmenté la résistance du gel de la bentonite. Cela ressort clairement de l'augmentation des modules  $G'$  et  $G''$  de plus d'un ordre de grandeur et aussi de l'écart accru entre  $G'$  et  $G''$ , ce qui est très évident lorsque les échantillons ont été traités thermiquement (**Fig. II.2.7**).



**Figure II.2.7 :** Essais dynamiques de balayage en déformation pour 3 et 6% de bentonite traitée avec  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  avec un chauffage et une agitation d'une durée de 24h (D'après [Magzoub et al., 2017](#)).

Ils ont trouvé des résultats similaires lorsqu'ils ont fait un balayage en fréquence.  $G'$  est supérieur à  $G''$  pour toutes les fréquences appliquées, confirmant que le comportement est essentiellement d'un solide élastique (gel). Les résultats montrent également qu'au-delà d'une certaine fréquence,  $G''$  a sensiblement augmenté avec l'augmentation de la fréquence appliquée, indiquant que la contribution visqueuse commence à devenir significative au-dessus d'une fréquence seuil. La **figure II.2.8** montre également que la concentration en bentonite et la durée du traitement thermique ont augmenté de manière significative la résistance du gel de la bentonite.



**Figure II.2.8 :** Essais de balayage en fréquence pour 3% de bentonite traitée avec un chauffage et une agitation d'une durée de 24 h (D'après [Magzoub et al., 2017](#)).

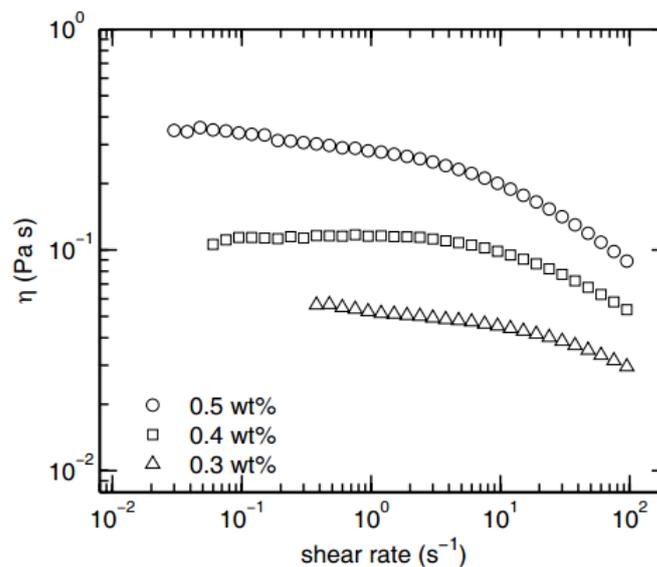
### II.3. Rhéologie de HEC

De nombreux travaux ont été fait dans le cadre de l'étude des propriétés rhéologiques des solutions aqueuses de HEC (Wirick et Elliott, 1973 ; Castelain et al., 1987 ; Meadows et al., 1995 ; Oppong et de Bruyn, 2010 ; Del Giudice et al., 2017). Il a été observé ainsi le comportement newtonien aux faibles concentrations de HEC ( $c < 0.3$  wt%). À des concentrations relativement plus élevées  $> 0.3$  wt %, les solutions de HEC présentent un comportement typique non-Newtonien et le plus souvent un comportement pseudo-plastique (Oppong et de Bruyn, 2010 ; Del Giudice et al., 2017). En augmentant la concentration de HEC à un taux de cisaillement constant, la viscosité apparente augmente. Cela est dû à l'augmentation des interactions intermoléculaires entre les molécules de HEC. Le comportement rhéologique des solutions de HEC peut être exprimé par le modèle de Cross (Castelain et al., 1987) comme suit:

$$\frac{\eta - \eta_{\infty}}{\eta_0 - \eta_{\infty}} = \frac{1}{1 + \lambda \dot{\gamma}^n} \quad (\text{II.3.1})$$

Où  $\eta$  est la viscosité à n'importe quel taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ ,  $\eta_0$  et  $\eta_{\infty}$  sont les viscosités à cisaillement nul et infini respectivement,  $\lambda$  est une constante caractéristique du temps et  $n$  est un constant sans dimension.

On reproduit sur la **figure II.3.1**, les courbes de viscosité en fonction du taux de cisaillement pour différentes concentrations de HEC obtenues par Oppong et de Bruyn, (2010). Ils ont noté que Les solutions sont approximativement Newtoniennes à faible  $\dot{\gamma}$  et pseudo-plastiques à des taux de cisaillement élevés. Aucun comportement rhéoépaississant n'est observé.



**Figure II.3.1** : Viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les solutions de HEC (D'après Oppong et de Bruyn, 2010).

## II.4. Rhéologie des suspensions bentonite – polymère non ionique

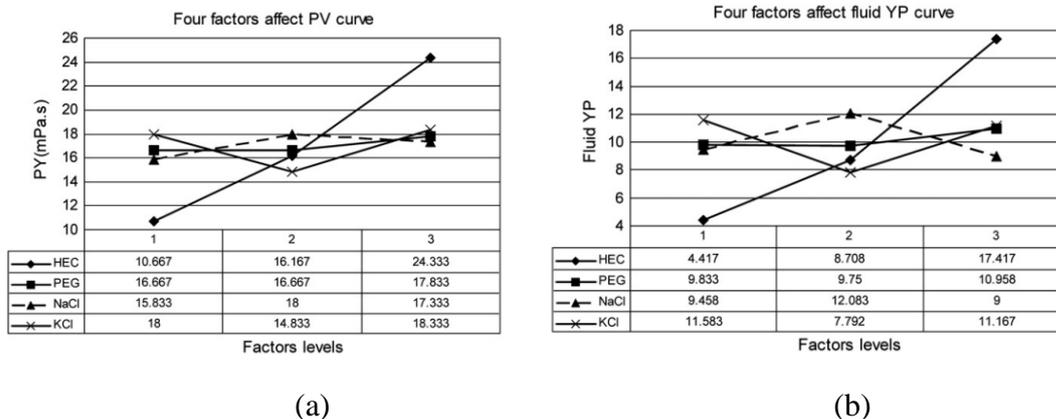
L'ajout des additifs non ionique et plus particulièrement à base de cellulose aux suspensions d'argile a été prise en compte en raison de leur capacité de modification colloïdale et rhéologique. Ces additifs offrent à la boue de forage à base de bentonite plusieurs fonctions telles que la stabilisation du trou de forage, le nettoyage du trou (évacuation des déblais) et le refroidissement et la lubrification du trépan et des tiges de forage. Parmi de nombreux additifs à base de cellulose, le HEC en combinaison avec un autre additif non ionique qu'est le PEG, est un excellent matériau pour augmenter la viscosité, augmenter la vitesse de forage, contrôler la perte de fluide de boue et maintenir des propriétés suffisantes à haute température.

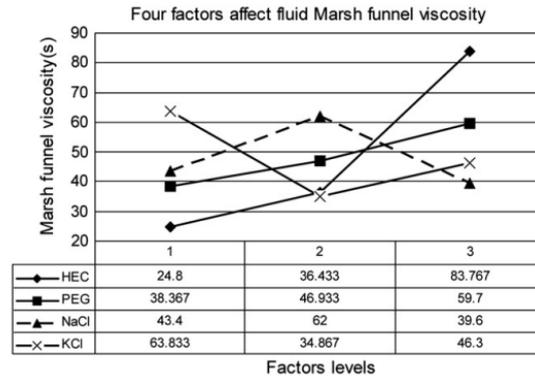
À travers la littérature, on ne trouve pas beaucoup d'études qui mettent l'accent sur l'influence de l'addition de HEC et PEG sur le comportement rhéologique des suspensions de bentonite. [Hao, \(2011\)](#) a fait une étude pour optimiser les fluides de forage afin d'améliorer la stabilité du forage dans le sol gelé d'hydrate du gaz naturel. Dans son étude, il a utilisé la bentonite calcique activée avec le carbonate de calcium, HEC, le PEG, le chlorure de sodium (NaCl) et le chlorure de potassium (KCl). Trois concentrations spécifiques ont été choisies pour chaque élément de test comme mentionnées dans le **tableau II.4.1**. Les divers mélanges de formulation de fluide ont été ajoutés à une boue de bentonite basique à 4% en volume et placés dans une chambre d'essai à grande échelle pendant 4 h à une température constante de -20 °C. Les échantillons congelés ont ensuite été testés pour évaluer leur comportement rhéologique, à -20 °C et dans des conditions de pression de  $7.1 \times 10^5$  Pa.

**Tableau II.4.1** : Concentrations des additifs utilisées pour les tests orthogonaux (D'après [Hao, 2011](#)).

	1	2	3
HEC	3 g/l	5 g/l	7 g/l
PEG	30 ml/l	50 ml/l	80 ml/l
NaCl	100 g/l	150 g/l	200 g/l
KCl	50 g/l	80 g/l	100 g/l

On reproduit sur la **figure II.4.1 a, b et c**, les résultats obtenus par cet auteur concernant l'effet de ces additifs sur la viscosité plastique (PV), la contrainte seuil (YP) et la viscosité mesurée par un viscosimètre marche ( $\eta_m$ ) sur les suspensions de bentonite.





(c)

**Figure II.4.1** : Les facteurs affectant les paramètres rhéologiques du fluide de forage : (a) variation de PV en fonction de la concentration des additifs, (b) variation de YP en fonction de la concentration des additifs, (c) variation de  $\eta_m$  en fonction de la concentration des additifs (D’après Hao, 2011).

L’auteur a noté que les quatre additifs affectent  $\eta_m$ , PV et YP de la même manière. L’HEC a une grande influence sur tous ces paramètres. Avec l’augmentation de la concentration en HEC, chaque valeur de paramètre augmente linéairement. Les valeurs de  $\eta_m$ , PV et YP sont toutes élevées avec une teneur en NaCl de 150 g/l, puis, lorsque la concentration du NaCl augmente, la valeur de tous les paramètres diminue. Avec une teneur de 80 g/l en KCl, les valeurs PV et YP sont les plus faibles, puis augmentent avec l’augmentation de la concentration en KCl, les graphiques montrant une courbe en forme de V. L’auteur a tiré comme conclusion que la formulation optimale du fluide de forage pour le forage des formations gelées d’hydrate du gaz naturel sur la base de ces tests est la suivante: HEC (0.5%) + PEG (5%) + NaCl (20%) + KCl (5%).

Les fluides de forage sont essentiellement composés de minéraux argileux, y compris la montmorillonite sodique ou calcique et certains additifs. Les additifs peuvent servir de contrôle de la corrosion, d’émulsifiants, de lubrifiants, de diluants et de défloculants, d’agents de contrôle de filtration et de viscosifiants. Dans ce travail de recherche, des additifs polymériques (HEC et PEG) ont été utilisés afin d’améliorer la stabilité et le comportement rhéologique de la boue de forage à base de bentonite Algérienne.

## Références bibliographiques

- Abu-Jdayil, B., Ghannam, M. The Modification of Rheological Properties of Sodium Bentonite-water Dispersions with Low Viscosity CMC Polymer Effect, Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects. 36 (10): 1037–1048, (2014). DOI:10.1080/15567036.2010.551260.
- Bailey, W.J., Peden, J.M. A generalized and consistent pressure drop and flow regime transition model for drilling hydraulics. SPE Drill Completion 15 (1) : 44–56 (2000).

- Barnes, H.A., Hutton J.F., Walters, K. An Introduction to Rheology. Elsevier Science Publishers B.V. (1989).
- Barnes, H.A. Thixotropy—a review. *J. Non Newtonian Fluid Mech.* 70: 1–33, (1997).
- Barnes, H.A. The yield stress—a review or ‘*πανταρχει*’—everything flows? *J. Non Newtonian Fluid Mech.* 81: 133–178 (1999).
- Barnes, H.A. The ‘Yield stress myth?’ paper—21 years on. *Appl. Rheol.* 17: 43110–1–43110-5, (2007).
- Bekkour, K., Leyama, M., Benchabane, A., Scrivener, O. Time-dependent rheological behavior of bentonite suspensions: An experimental study. *J. Rheol.* 49: 1329–1345, (2005).
- Billingham, J., Ferguson, J.W.J. Laminar, unidirectional flow of a thixotropic fluid in a circular pipe. *J. Non Newtonian Fluid Mech.* 47: 21–55, (1993).
- Bird, R.B., Dai, G.C., Yarusso, B.J. The rheology and flow of viscoplastic materials. *Rev. Chem. Eng.* 1: 1–70, (1983).
- Bird, R.B., Armstrong, R.C., Hassager, O. Dynamics of Polymeric Liquids. Wiley, New York. (1987).
- Castelain, C., Doublier, J.L., Lefebvre, J. A study of the viscosity of cellulose derivatives in aqueous solutions. *Carbohydrate polymers.* 7: 1–16, (1987).
- Cheng, D.C.H., Evans, F. Phenomenological characterization of the rheological behaviour of inelastic reversible thixotropic and antithixotropic fluids. *Br. J. Appl. Phys.* 16: 1599, (1965).
- Couarraze, G., and Grossiord, J.L. Initiation à la rhéologie. 3e éd., Tec & Doc Lavoisier. 300p, (2000).
- Cross, M.M. Rheology of non-Newtonian fluids: a new flow equation for pseudoplastic systems. *J. Colloid Sci.* 20: 417–437, (1965).
- Davidson, M.R., Nguyen, Q.D., Chang, C., Rønningsen, H.P. A model for restart of a pipeline with compressible gelled waxy crude oil. *J. Non Newtonian Fluid Mech.* 123: 269–280, (2004).
- Del Giudice, F., Tassieri, M., Oelschlaeger, C., Shen, A.Q. When Microrheology, Bulk Rheology, and Micro fluidics Meet: Broadband Rheology of Hydroxyethyl Cellulose Water Solutions. *ACS Macromolecules.* 50(7): 2951–2963, (2017). DOI: 10.1021/acs.macromol.6b02727.
- Duman, O., Tunç, S. Electrokinetic and rheological properties of Na-bentonite in some electrolyte solutions. *Microporous and Mesoporous Materials.* 117: 331–338, (2009).
- Durán, J.D.G., Ramos-Tejada, M.M., Arroyo, F.J., Gonzalez-Caballero, F. Rheological and electrokinetic properties of sodium montmorillonite suspensions. *J. Colloid Interface Sci.* 229: 107–117, (2000).
- Falode, O.A., Ehinola, O.A., Nebeife, P.C. Evaluation of local bentonitic clay as oil well drilling fluids in Nigeria. *Appl. Clay Sci.* 39 : 19–27, (2008).
- Ferguson, J., and Kemblowski, Z. Applied Fluid Rheology. Elsevier Appl. Sci. 323p, (1991).
- Gareche, M., Zeraibi., N. Amoura, M. Etude rhéologique et comparative de fluide de forage par les modèles classiques et structuraux. 15ème Congrès Français de Mécanique. Nice p. 5 (2003).
- Govier, G.W., Aziz, K. The Flow of Complex Mixtures in Pipes. Krieger, Malabar, FL. (1972).

- Gridi-Bennadji, F., Lecomte-Nana, G.L., Bonnet, J.-P., Rossignol, S. Rheological properties of montmorillonitic clay suspensions: Effect of firing and interlayer cations. *Journal of the European Ceramic Society*. 32: 2809–2817, (2012).
- Hao, S.-Q. A study to optimize drilling fluids to improve borehole stability in natural gas hydrate frozen ground. *J. Pet. Sci. Eng.* 76: 109–115, (2011).
- Herzhaft, B., Rousseau, L., Néau, L., Moan, M., Bossard, F. Influence of temperature and clays/emulsion microstructure on oil-based mud low shear rate rheology. *SPE J.* 8 (3): 211–217, (2003).
- Herzhaft, B., Ragouillaux, A., Coussot, P. How to Unify Low-shear-rate Rheology and Gel Properties of Drilling Muds: A Transient Rheological and Structural Model for Complex Well Applications. IADC/SPE Paper 99080. (2006).
- Huang, W., Leong, Y.-K., Chen, T., Au, P.-I., Liu, X., and Qiu, Z. Surface Chemistry and Rheological Properties of API bentonite drilling fluid: pH effect, yield stress, zeta potential and ageing behaviour. *J. Pet. Sci. Eng.* 146: 561–569, (2016). <http://dx.doi.org/10.1016/j.petrol.2016.07.016>
- Sochi, T. Non-Newtonian flow in porous media. *Polymer*. 51: 5007–5023, (2010).
- Kelessidis, V.C., Maglione, R., Tsamantaki, C., Aspirtakis, Y. Optimal determination of rheological parameters for Herschel–Bulkley drilling fluids and impact on pressure drop, velocity profiles and penetration rates during drilling. *J. Pet. Sci. Eng.* 53: 203–224, (2006).
- Khandal, R.K., and Tadros, T.F. Application of viscoelastic measurements to the investigation of the swelling of sodium montmorillonite suspensions. *J. Colloid Interface Sci.* 125: 122–128, (1988).
- Luckham, P.F., and Rossi, S. Colloidal and rheological properties of bentonite suspensions. *Adv. Colloid Interface Sci.* 82: 43–92, (1999).
- Magzoub, M.I., Nasser, M.S., Hussein I.A., Benamor, A., Onaizi, S.A., Sultan, A.S., Mahmoud, M.A. Effects of sodium carbonate addition, heat and agitation on swelling and rheological behavior of Ca-bentonite colloidal dispersions. *Appl. Clay Sci.* 147: 176–183, (2017).
- Mahto, V., and Sharma, V.P. Rheological study of a water based oil well drilling fluid. *J. Pet. Sci. Eng.* 45: 123–128, (2004).
- Meadows, J., Williams, P.A., Kennedy, J.C. Comparison of the Extensional and Shear Viscosity Characteristics of Aqueous Hydroxyethylcellulose Solutions. *Macromolecules*. 28: 2683–2692, (1995).
- Midoux, N. *Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique*. (1993).
- Møller, C.J., Mewis, J., Bonn, D. Yield stress and thixotropy: on the difficulty of measuring yield stresses in practice. *Soft Matter*. 2 : 274–283, (2006).
- Nasiri, M., Ashrafizadeh, S.N. Novel equation for the prediction of rheological parameters of drilling fluids in an annulus. *Ind. Eng. Chem. Res.* 49: 3374–3385, (2010).
- Negrão, C.O.R., Franco, A.T., Oliveira, G.M., Martins, A.L. Gandelman, R.A., Rochna, L.L.V., Pressure Transmission in Gelled Drilling Fluids in Deepwater Environments. IADC/SPE Paper 128859, (2010).
- Oppong, F.K., and de Bruyn J.R. Microrheology and dynamics of an associative polymer. *Eur. Phys. J. E.* 31: 25–35, (2010).
- Ostwald, W. About the rate function of the viscosity of dispersed systems. 36: 99–117, (1925).
- Papanastasiou, T.C. Flows of materials with yield. *J. of rheology*. 31(5): 385-404, (1987).

- Ramsay, J.D.F., Daish, S.R., Wright, C.J. Structure and stability of concentrated boehmite sols. *Faraday Discuss. Chem. Soc.* 65: 65–75, (1978).
- Rossi, S., Luckham, P., Tadros, T.F. Influence of non-ionic polymers on the rheological behaviour of Na<sup>+</sup>-montmorillonite clay suspensions—I Nonylphenol–polypropylene oxide–polyethylene oxide copolymers. *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Aspects.* 201: 85–100, (2002).
- Tadros, T.F. Correlation of viscoelastic properties of stable and flocculated suspensions with their interparticle interactions. *Adv. Colloid Interface Sci.* 68: 97–200, (1996).
- Van Olphen, H. Internal mutual flocculation in clay suspensions. *J. Colloid Sci.* 19(4): 313–322, (1964). DOI: [http://dx.doi.org/10.1016/0095-8522\(64\)90033-9](http://dx.doi.org/10.1016/0095-8522(64)90033-9).
- Papanastasiou, T. C. Flows of Materials with Yield. *J. Rheol.* 31: 385–404, (1987).
- Wachs, A., Vinay, G., Frigaard, I.A. A 1.5D numerical model for the start up of weakly compressible flow of a viscoplastic and thixotropic fluid in pipelines. *J. Non Newtonian Fluid Mech.* 159: 81–94, (2009).
- Wirick, M.G., and Elliott, J.H. A One-Point Intrinsic Viscosity Method for Hydroxyethylcellulose, Hydroxypropylcellulose, and Sodium Carboxymethylcellulose. *J. Appl. Polym. Sci.* 17: 2867–2875, (1973).

## Chapitre III

### Matériaux et méthodes expérimentales

L'objectif de notre travail est de bien comprendre le comportement rhéologique des fluides de forage composés principalement de la bentonite et d'autres additifs tels que les polymères pour éviter les différents problèmes rencontrés lors de leurs mises en œuvre et pour s'assurer qu'ils puissent bien mener leurs fonctions principales dans un circuit de boue de forage. Cet objectif reste toujours tributaire de l'optimisation des paramètres des formulations de boue de forage sous conditions des effets tels que le taux de cisaillement, la température, le pH et le sel, qui peuvent modifier le comportement de ces fluides. Le second volet de notre travail, consiste à modéliser par des lois mathématiques tous les résultats expérimentaux obtenus dans cette étude en vue de la prédiction, en utilisant des méthodes numériques d'optimisation pour l'identification des paramètres et par ailleurs, interpréter le comportement rhéologique de tels fluides à l'échelle macroscopique, qui sont reliés à l'échelle microscopique par les phénomènes physico-chimique mise en jeu. Pour se faire, nous avons utilisé des matériaux et avons élaboré des protocoles de mesures expérimentaux rigoureux pour s'assurer de la bonne reproductibilité de nos mesures.

À noter que toutes les concentrations qui figurent dans le cadre de cette thèse représentent des concentrations massiques.

#### III.1. Matériaux

##### III.1.1 Bentonite

Les matériaux constitutifs de cette étude sont la bentonite-Na et la bentonite-Ca activée, provenant des deux gisements Algériens de "Mostaganem" et de "Maghnia" respectivement. Ils ont été fournis par l'ENOF (Entreprise Nationale des Substances Utiles et Matériaux non Ferreux). La bentonite de Mostaganem (B-Mos) est une bentonite sodique naturelle alors que celle de Maghnia (B-Mag) est calcique activée par le carbonate de sodium ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ), ce qui signifie que les ions  $\text{Ca}^{2+}$  existant entre les feuillets d'argile ont été remplacés par des ions  $\text{Na}^+$ . Ces deux types de bentonite sont utilisées dans la composition des boues de forage à base d'eau dans les champs pétroliers et gaziers algériens.



**Figure III.1.1** : Echantillons de bentonite Algériennes : a) de Mostaganem (B-Mos), b) de Maghnia (B-Mag).

### III.1.1.1 Composition chimique des deux bentonites

Une analyse chimique par fluorescence aux rayons X (FRX –Phillips Analytical–) des deux bentonites de forage étudiées a été effectuée pour déterminer la composition chimique où les résultats sont regroupés dans le **tableau III.1.1**. Comparativement, le rapport entre  $\{(Na_2O + K_2O) / (CaO + MgO)\}$  pour ces deux types de bentonite est plus élevé pour la B–Mos que pour la B–Mag, ce qui confirme le type des deux bentonites clarifié par le fournisseur.

**Tableau III.1.1** : Composition chimique des deux bentonites de forage utilisées

Eléments (wt %)	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O	CaO	K <sub>2</sub> O	MgO	SO <sub>3</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	PAF <sup>1</sup>
B–Mos	60.49	13.87	0.29	3.14	3.54	3.95	1.69	2.37	0.24	0.08	10.35
B–Mag	58.54	16.03	0.16	2.17	3.58	0.82	2.01	7.26	0.14	0.05	9.26

D’après cette composition chimique, on note aussi la forte présence du potassium dans la B–Mag, ce qui indique que ce dernier contient de l’illite. Il est aussi remarquable que le pourcentage du magnésium est grand dans la B–Mag, ceci peut être lié au fait que le MgO est un cation interfoliaire principal. L’analyse chimique montre aussi que le rapport Si/Al est de 4.36 et 3.65 pour la B–Mos et B–Mag respectivement, cela s’explique par la forte présence de la teneur en silice libre dans les échantillons de bentonite étudiés. Certains auteurs présentent ce rapport comme le degré de pureté d’une bentonite en son contenu de montmorillonite, généralement sa valeur est comprise entre 2 et 5.5 (Jozja et al., 2003 ; Chouchane et al., 2013).

### III.1.1.2 Caractéristique minéralogique des deux bentonites

D’après l’analyse minéralogique, les deux bentonites semblent être un mélange de montmorillonite, quartz, calcite, dolomite, albite, orthoclase, illite, biotite, kaolinite et sépiolite, avec des proportions qui sont mentionnées dans le **tableau III.1.2**.

**Tableau III.1.2** : Différents minéraux constituants les deux bentonites

Minéraux (%)	B–Mos	B–Mag
Montmorillonite	36	39
Quartz	20	10
Calcite	07	02
Dolomite	–	01
Albite	08	08
Orthoclase	01	10
Illite	–	03
Biotite	10	–
Kaolinite	09	06
Sépiolite	06	19
Minéraux ferrugineux	03	02

Comme il est indiqué sur le diffractogramme (**Fig. III.1.2a et b**), les deux bentonites sont composées d’un mélange de minéraux dont le principal est la montmorillonite avec une proportion de 36% et 39% pour la B–Mos et la B–Mag respectivement.

<sup>1</sup> Perte au feu.

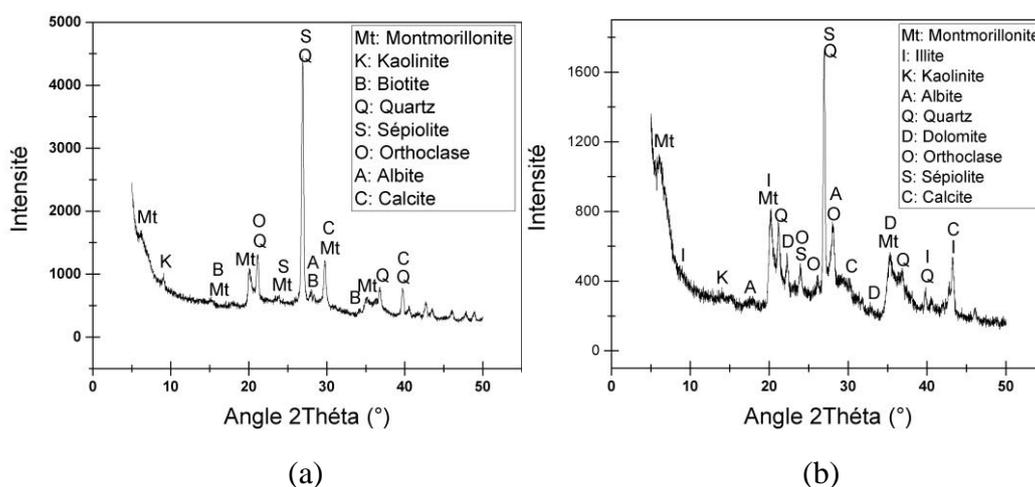


Figure III.1.2 : Diffraction des rayons X (DRX) de : a) B–Mos, b) B–Mag.

### III.1.1.3 Analyse granulométrique

Afin de connaître le type et le pourcentage des particules qui constituent les deux bentonites étudiées, une analyse granulométrique à l'aide d'un granulomètre de type laser (Malvern Mastersizer 2000) a été effectuée. Cette analyse granulométrique a révélé une distribution de particules mentionnées dans la **figure III.1.3**. D'après cette distribution de particule, il est clair que la B–Mos contient moins de sable que la B–Mag, ce qui aide à expliquer les résultats de la rhéologie dans les chapitres qui suivent.

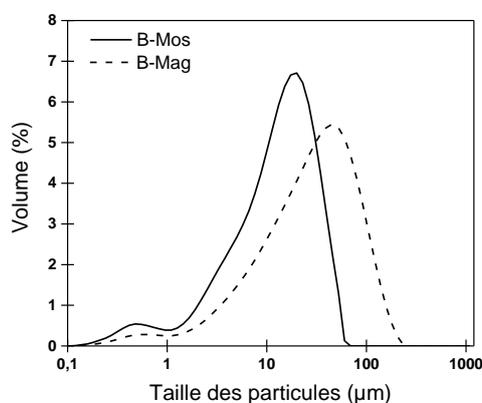


Figure III.1.3 : Distribution granulométrique des particules de B-Mos et B-Mag.

### III.1.2 Hydroxyéthylcellulose

HEC est un polymère hydrosoluble considéré comme un dérivé de la cellulose. Il est utilisé comme additif aux suspensions de bentonite pour contrôler le comportement rhéologique de ces suspensions. Ce polymère est fourni par M-I Drilling Fluids, UK Ltd. C'est un éther de cellulose, de nature essentiellement non ionique et largement utilisé comme additif pour modifier ou stabiliser la rhéologie des fluides de forage, de compléation et de Work-Over avec une bonne acceptabilité environnementale (Zhang et Sun, 1999 ; Juppe et al., 2003). Le poids moléculaire donné par le fournisseur du polymère HEC est entre  $8.5 \times 10^5$  et  $11.5 \times 10^5$  g/mol, ce poids moléculaire va être déterminé expérimentalement dans les chapitres qui suivent. Les propriétés physico-chimique de l'échantillon de HEC sont mentionnées dans le **tableau III.1.3**.

**Tableau III.1.3** : Propriétés physico-chimique de l'échantillon de HEC

Propriétés	Couleur	Odeur/Goût	Masse volumique	Valeur du pH, solution diluée	Solubilité	Température de décomposition (°C)
Description	Blanc (ou pâle)	Doux	0.4– 0.6 g/cm <sup>3</sup>	6.0 – 8.5	Soluble dans l'eau	>250

**Figure III.1.4** : Poudre du polymère HEC utilisé.

### III.1.3 Polyéthylène glycol

PEG est un polymère hydrosoluble de la famille des polyéthers. Il est fourni par Acros Organics. Ce polymère est également d'une nature non ionique. Il est utilisé dans les fluides de forage principalement pour inhiber le gonflement des argiles et la formation des hydrates de gaz (Hao, 2011; Jiang et al., 2011). En outre, il empêche la formation de la mousse et la synérèse dans le système bentonite –HEC. Il a été rapporté dans la littérature (Melbouci, 2013) que le PEG est un matériau écologique. Pour notre étude, nous avons sélectionné un PEG de poids moléculaire de 6000 g/mol, qui est considéré comme un poids moléculaire intermédiaire (Glass, 1985). Une concentration de 0.2 wt% de PEG a été utilisée dans nos expériences pour formuler le fluide de forage écologique.

**Figure III.1.5** : Polyéthylène glycol.

### III.1.4 Formulation des fluides de forage

#### III.1.4.1 Formulation des suspensions de bentonite

Etant donné que le protocole de préparation de telles suspensions a un grand effet sur l'état final de la suspension et par conséquent, sur son comportement rhéologique, nous avons préparé nos suspensions comme suit : dans un premier temps une quantité d'eau déminéralisée déterminée est mise sous agitation, puis une masse de bentonite (B–Mos ou B–Mag) de concentrations variables (3, 4, 5, 6 ou 7 wt%) sont versées dans de l'eau de façon intimement pour éviter la

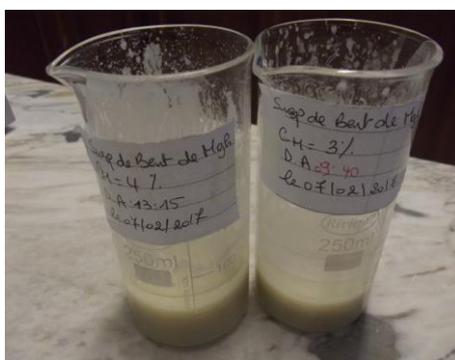
formation d'agrégats de particules d'argile. Afin d'homogénéiser le système obtenu, on laisse les suspensions sous agitation magnétique pendant 24 h.

**Tableau III.1.4** : Formulation des fluides de forage à base de bentonite

Echantillon	S <sub>1</sub>	S <sub>2</sub>	S <sub>3</sub>	S <sub>4</sub>	S <sub>5</sub>	S <sub>6</sub>	S <sub>7</sub>	S <sub>8</sub>	S <sub>9</sub>	S <sub>10</sub>
M <sub>bentonite</sub> (g)	3	4	5	6	7	3	4	5	6	7
M <sub>eau</sub> (g)	97	96	95	94	93	97	96	95	94	93
Composition des fluides de forage	3% B-Mos	4% B-Mos	5% B-Mos	6% B-Mos	7% B-Mos	3% B-Mag	4% B- Mag	5% B- Mag	6% B- Mag	7% B- Mag

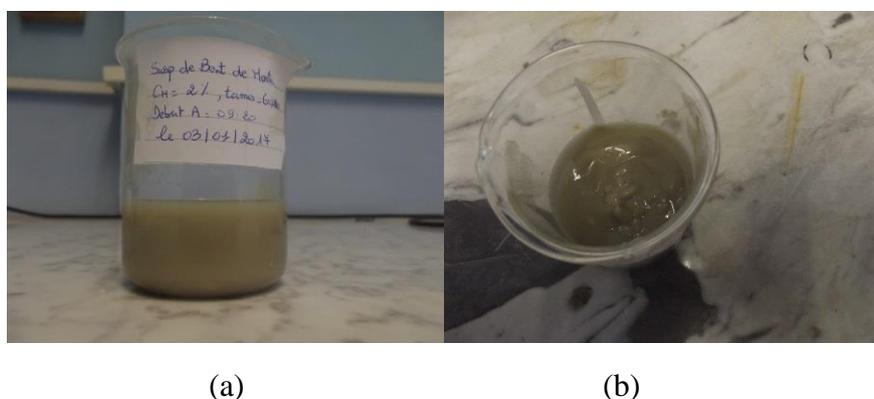
Après la formulation des fluides de forage, nous pouvons faire les observations suivantes :

- Pratiquement toutes les suspensions (B-Mag) présentent une grande instabilité par rapport aux suspensions (B-Mos) après un temps de repos. Ceci est dû au phénomène de sédimentation (**Fig. III.1.6**).



**Figure III.1.6** : Fluide de forage formulé en utilisant des suspensions de B-Mag, 3 et 4 wt% présentant le phénomène de sédimentation après un temps de repos.

- Pour les suspensions de (B-Mos), nous n'avons pas retenu la concentration de 2 wt% à cause de la sédimentation des particules lors de la préparation juste après l'arrêt de l'agitation (**Fig. III.1.7a**). De même, la concentration de 8 wt% n'a pas été retenue parce qu'elle présente un état pâteux (gel) difficile à agiter (**Fig. III.1.7b**). Notre étude s'est limitée à la gamme de concentrations [3, 4, 5, 6 et 7 wt%] (**Fig. III.1.8**).



**Figure III.1.7** : a) Suspension de B-Mos à 2 wt% présentant une sédimentation de particules vers le fond du flacon. b) Suspension de B-Mos à 8 wt% formant un gel consistant.



**Figure III.1.8** : Concentrations des suspensions de B–Mos étudiées de gauche à droite : 3, 4, 5, 6 et 7 wt%.

### III.1.4.2 Formulation des solutions aqueuses de HEC

Des solutions de HEC ayant différentes concentrations en polymère allant de 0.1 à 1.2 wt% ont été préparées en dissolvant la quantité adéquate de poudre du polymère dans de l'eau distillée. La poudre a été doucement agitée au moyen d'un agitateur magnétique à température ambiante. L'homogénéisation a ensuite été maintenue pendant deux heures, ce qui a permis d'obtenir une hydratation complète du polymère et d'éviter la formation de bulles d'air.

**Tableau III.1.5** : Formulation des solutions aqueuses de HEC

Echantillon	S1	S2	S3	S4	S5	S6	S7	S8	S9	S10	S11
M <sub>HEC</sub> (g)	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1.0	1.2
M <sub>eau</sub> (g)	99.9	99.8	99.7	99.6	99.5	99.4	99.3	99.2	99.1	99.0	98.8
Composition des solutions de HEC	0.1%	0.2%	0.3%	0.4%	0.5%	0.6%	0.7%	0.8%	0.9%	1.0%	1.2%
	HEC										

Nous présentons dans la **figure III.1.9**, trois concentrations de solutions HEC (0.1, 0.5 et 1.0 wt%) appartenant respectivement au régime dilué, semi-dilué et concentré qui seront déterminées dans les chapitres qui suivent.



**Figure III.1.9** : Solutions aqueuses de HEC avec des concentrations de 0.1, 0.5 et 1.0 wt%.

### III.1.4.3 Formulation des suspensions du mélange bentonite–HEC

Différentes suspensions ont été préparées avec une concentration fixe en bentonite (B–Mos) de 3 wt%. Cette concentration étant très souvent utilisée pour formuler des boues à base d'eau (Park et al., 1960 ; Elward- Berry et Darby, 1997 ; Kumar et al., 2003 ; Mahto et Sharma, 2004 ; Yan et al., 2007). La concentration de HEC ajoutée aux suspensions de bentonite varie de 0.02 à 0.2 wt%. Par conséquent, la teneur maximale en solide n'est que 3.2 wt%. Selon Lyons (2009), cette valeur était généralement classée dans la catégorie des fluides de forage à faible teneur en solides. Les avantages de la faible teneur en solides pour les fluides de forage est d'obtenir un

taux de pénétration élevé, une énorme stabilité des argiles, un gâteau de filtration mince et un faible frottement à la surface de l'équipement de pompage (Li et al., 2015).

**Tableau III.1.6** : Formulation des fluides de forage de bentonite–eau–HEC

Echantillon	S1	S2	S3	S4	S5
$M_{\text{bentonite}}$ (g)	3	3	3	3	3
$M_{\text{HEC}}$ (g)	0.02	0.05	0.10	0.15	0.20
$M_{\text{eau}}$ (g)	96.98	96.95	96.90	96.85	96.80
Composition des fluides de forage	3% B–Mos+ 0.02% HEC	3% B–Mos + 0.05% HEC	3% B–Mos + 0.10% HEC	3% B–Mos + 0.15% HEC	3% B–Mos + 0.20% HEC

Toutes ces suspensions ont été préparées selon la procédure suivante: dans la première étape, une quantité de 3 wt% de bentonite a été dispersée dans de l'eau distillée sous une agitation magnétique pour obtenir un meilleur gonflement de la bentonite et pour bien disperser ces particules d'argile dans l'eau. Après 4 h d'agitation, la poudre de HEC de différentes concentrations allant de 0.02 à 0.2 wt% a été ajoutée au mélange. Le système obtenu a été laissé sous agitation pendant 20 h.

On a remarqué notamment, l'apparition de la mousse et de la synérèse lorsqu'on augmente la concentration de HEC (**Fig. III.1.10**). Plus particulièrement, ces deux phénomènes ont été observés à une concentration de HEC allant de 0.15 wt%.



**Figure III.1.10** : Suspensions de mélange bentonite–HEC avec des concentrations de HEC de gauche à droite : 0.05, 0.15 et 0.2 wt%.

#### III.1.4.3.1 Analyse par diffraction des rayons X des suspensions du mélange bentonite–HEC

Après séchage des échantillons du mélange bentonite–HEC dans la hotte à température ambiante (**Fig. III.1.11**), une analyse par diffraction des rayons X a été effectuée. D'après ces analyses, on révèle les distances interfoliaires correspondantes au premier pic de la raie (001) suivantes :

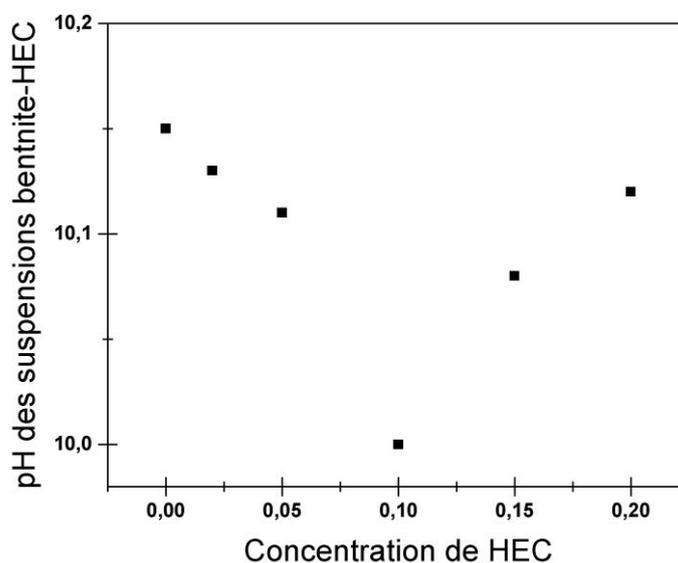
- Pour la suspension de bentonite de base (3 wt%) : 12.36 Å.
- Pour les suspensions du mélange bentonite–HEC : 12.72, 13.47, 14.00, 13.96, 13.67 Å correspondant respectivement aux concentrations de HEC 0.02, 0.05, 0.10, 0.15, 0.20 wt%.



**Figure III.1.11** : Suspensions du mélange bentonite–HEC étudiées après séchage de concentrations de HEC de gauche à droite : 0.02, 0.05, 0.10, 0.15 et 0.20 wt%.

#### III.1.4.3.1 Variation du pH des suspensions du mélange bentonite–HEC avec la concentration de HEC

D'après les mesure du pH des suspensions du mélange bentonite–HEC (**Fig. III.1.12**), on peut remarquer que l'ajout de HEC aux suspensions de bentonite n'affecte pas de façon significative leur pH naturel et que les valeurs sont comprises entre 10 et 10.15. Ce résultat est dû à la nature de HEC, qui est un polymère non ionique.



**Figure III.1.12** : Variation du pH des suspensions de bentonite–HEC en fonction de la concentration de HEC.

#### III.1.4.4 Formulation des suspensions du mélange bentonite–HEC–PEG

Les fluides de forage dans ce cas ont été formulés comme suit: dans la première étape, une poudre de bentonite à 3 wt% a été immergée lentement dans de l'eau distillée sous agitation continue pour obtenir le meilleur gonflement de la bentonite et pour bien disperser ces particules d'argile. Après 4 h d'agitation, on ajoute au mélange, la poudre HEC de différentes concentrations allant de 0.2 à 0.6 wt% et on introduit également 0.2 wt% de PEG dans le système pour éviter les phénomènes de mousse et de synérèse. Le mélange obtenu a ensuite été agité mécaniquement à 450 tr / min pendant 20 h.

Dans le cas des fluides de forage, qui contiennent du NaCl ou KCl, ces derniers ont été ajoutés en premier lieu à de l'eau distillée avec des concentrations allant de 0.5 à 2.0 wt%. Après cela, la même procédure a été suivie pour préparer ces fluides de forage.

Pour l'ajustement du pH, il a été noté que le pH initial ou naturel de l'échantillon (3 wt% B–Mos + 0.5 wt% HEC + 0.2 wt% PEG) était de 10.29. Pour ajuster cette valeur, des gouttelettes de

HCl ou de NaOH de 0.1 N ont été ajoutées à la suspension et les valeurs du pH ont été mesurées avec un pH-mètre (instruments HANNA, HI 2211).

**Tableau III.1.7 :** Formulation des fluides de forage bentonite–eau–PEG–HEC

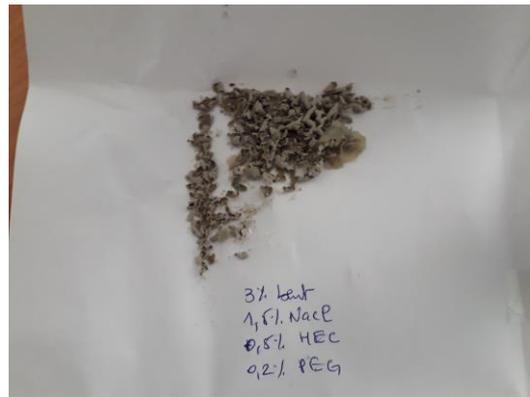
Echantillon	S1	S2	S3	S4	S5	S6
M <sub>bentonite</sub> (g)	3	3	3	3	3	3
M <sub>PEG</sub> (g)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
M <sub>HEC</sub> (g)	0.0	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6
M <sub>eau</sub> (g)	96.8	96.6	96.5	96.4	96.3	96.2
Composition des fluides de forage	3% B–Mos + 0.2% PEG	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.2 % HEC	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.3 % HEC	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.4 % HEC	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.6 % HEC

**Tableau III.1.8 :** Formulation des fluides de forage contenant du NaCl ou du KCl

Echantillon	M <sub>bentonite</sub> (g)	M <sub>PEG</sub> (g)	M <sub>HEC</sub> (g)	M <sub>NaCl</sub> (g)	M <sub>KCl</sub> (g)	M <sub>eau</sub> (g)	Composition des fluides de forage
S1	3	0.2	0.5	–	–	96.3	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC
S2	3	0.2	0.5	0.5	–	95.8	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 0.5% NaCl
S3	3	0.2	0.5	1.0	–	95.3	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 1.0% NaCl
S4	3	0.2	0.5	1.5	–	94.8	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 1.5% NaCl
S5	3	0.2	0.5	2.0	–	94.3	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 2.0% NaCl
S6	3	0.2	0.5	–	0.5	95.8	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 0.5% KCl
S7	3	0.2	0.5	–	1.0	95.3	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 1.0% KCl
S8	3	0.2	0.5	–	1.5	94.8	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 1.5% KCl
S9	3	0.2	0.5	–	2.0	94.3	3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC+ 2.0% KCl



**Figure III.1.13 :** Suspension du fluide de forage écologique la plus utilisée (3% B–Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC).



**Figure III.1.14** : Fluide de forage écologique (3% B-Mos + 0.2% PEG+ 0.5% HEC) contenant de 1.5% du NaCl après séchage.

## III.2. Méthodes expérimentales

Différentes méthodes de mesure ont été employées lors de nos expériences afin de caractériser les variétés des fluides de forage étudiées, telles que, la fluorescence aux rayons X (FRX), la diffraction aux rayons X (DRX), la granulométrie laser et la pH-mètre. La rhéométrie qui constitue le point focal de notre étude pour caractériser nos différents systèmes nous a permis de déterminer les paramètres clés des fluides de forage tels que : la contrainte seuil, la viscosité de cisaillement, le module de rigidité, les modules viscoélastiques et le temps de gel.

Nous commencerons ce paragraphe par une brève description des appareils et équipement puis nous passerons à élucider les différents protocoles suivis pendant les mesures.

### III.2.1 Mesure au FRX

Afin de déterminer la composition chimique des deux bentonites étudiées, nous avons utilisé –Phillips Analytical–.

### III.2.2 Technique de mesure au DRX

Une analyse par diffraction des rayons X a été réalisée en utilisant le diffractomètre Phillips–Xpert Pro– (**Fig. III.2.1**) avec des rayonnements Cu-K $\alpha$ . Le générateur fonctionne à 45 kV et 40 mA. Les diagrammes de diffraction des rayons X du domaine microstructural des échantillons ont été fournis en générant une diffraction des rayons X dans ce domaine microstructural sous bombardement avec un faisceau finement électronique. Ces mesures ont été réalisées en mode (2 $\theta$ ) pas-à-pas de 5 à 50° avec un temps de comptage de 8.26 s par 0.016°. L'espace basal (d001) a été calculé à partir du pic principal de (DRX) sur la base de la loi de Bragg:  $\lambda = 2d_{001}\sin\theta$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde des rayons X ( $\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$ ) et  $2\theta$  l'angle de diffusion.



Figure III.2.1 : DRX Phillips–Xpert Pro–.

### III.2.3 Technique de mesure par granulométrie laser

La mesure de la taille des particules des deux bentonites a été effectuée en utilisant un test de granulométrie sur Mastersizer-2000-, Malvern Instrument-Ltd UK-, (Fig. III.2.2), à température ambiante. Cet instrument peut mesurer des tailles de particule avec une précision élevée sur une large gamme de 0.02 à 2000  $\mu\text{m}$ . Des échantillons de bentonite ont été dispersés dans l'eau par ultrasons jusqu'à l'obtention d'une dispersion homogène puis, les mesures ont été effectuées immédiatement.



Figure III.2.2: Mastersizer-2000-, Malvern Instrument-Ltd UK-.

### III.2.3 Mesure de pH

Les mesures de pH ont été effectuées à l'aide d'un pH-mètre (HANNA instruments, HI 2211), (Fig. III.2.3), avec une tige de verre et une précision de 0.01 / unité de pH à une température constante de  $25 \pm 0.5$  °C.



Figure III.2.3 : pH mètre HANNA instruments, HI 2211.

### III.2.5 Technique de mesure rhéologique

Pour caractériser les différents fluides de forage formulés d'un point de vue rhéologique, nous avons utilisé un rhéomètre de type "Anton Paar Physica MCR301", (Fig. III.2.4a), équipé avec une géométrie de cylindres coaxiaux (Fig. III.2.4b).



(a)

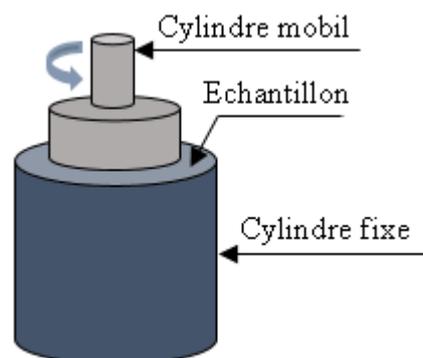
(b)

**Figure III.2.4** : a) Rhéomètre Anton Paar Physica MCR301, b) Géométrie de cylindres coaxiaux.

### III.2.5.1 Description de l'appareil de mesure Anton Paar Physica MCR301

Le rhéomètre Anton Paar Physica MCR301 utilisé dans cette étude offre une grande précision pendant la mesure grâce à des roulements à air de haute précision et à un puissant moteur synchrone à animation permanente. Il est équipé avec une géométrie à cylindres coaxiaux CC27 (**Fig. III.2.5**) à faible entrefer ( $R_e=14.464$  mm,  $R_i=13.325$  mm,  $h=39.997$  mm). Nous avons choisi cette géométrie, en prenant compte de la viscosité des fluides étudiés et de la gamme de vitesse de cisaillement. Cette géométrie permet de minimiser les effets d'évaporation lors de mesures à des températures élevées, elle présente aussi l'avantage d'une bonne sensibilité de mesure et d'un gradient de vitesse évoluant peu dans l'entrefer.

Le rhéomètre utilisé permet la mesure dans des gammes de taux de cisaillement faible et très faible, et peut fonctionner en mode d'oscillation. De plus, les mesures peuvent être soit à contrainte de cisaillement, soit à taux de cisaillement contrôlé. Le rhéomètre est équipé d'un logiciel (Rheoplus) qui offre un contrôle total des paramètres de test et fournit des options d'analyse. Le **tableau II.2.1** regroupe les différentes caractéristiques du rhéomètre utilisé.



**Figure III.2.5** : Géométrie de cylindres coaxiaux.

**Tableau III.2.1** : Caractéristiques du rhéomètre Anton Paar Physica MCR301

Caractéristiques	Couple minimal	Couple maximal	Résolution couple	Augmentation maximal du couple	Plage de fréquence
Valeur	0.1 $\mu\text{Nm}$	200 mNm	0.001 $\mu\text{Nm}$	1500 Nm/s	$10^{-4} \rightarrow 100$ Hz $10^{-5} \rightarrow 100$ Hz

Le principe de mesure pour la géométrie de cylindres coaxiaux est simple. En fait, la mise en rotation de l'échantillon nécessite la conversion de la vitesse angulaire de rotation et du couple de torsion en vitesse et en contrainte de cisaillement, selon les deux relations suivantes :

$$\dot{\gamma} = \frac{R_i \Omega}{R_e - R_i} \quad (\text{III.2.1})$$

$$\tau_i = \frac{C}{2\pi h R_i^2} \quad (\text{III.2.2})$$

Où :  $R_i$  est le rayon intérieur,  $R_e$  est le rayon extérieur,  $\Omega$  est la vitesse angulaire de rotation,  $\tau_i = \tau (r = R_i)$  est la contrainte moyenne,  $C$  est le couple imposé sur le cylindre intérieur et  $h$  est la hauteur du cylindre.

Ces relations s'applique dans le cas d'un entrefer faible ( $e = R_e - R_i$ ). La connaissance du profil de vitesse du fluide dans l'entrefer permet de déterminer le gradient de vitesse, et par la suite calculer la viscosité du fluide.

### III.2.5.1.1 Viscosité d'un fluide Newtonien dans une géométrie de cylindres coaxiaux

Quel que soit le fluide étudié, en coordonnées cylindriques, le taux de cisaillement s'écrit en fonction de la vitesse  $V_\theta(r)$  (Couarraze et Grossiord, 2000) :

$$\dot{\gamma} = \frac{\partial V_\theta}{\partial r} - \frac{V_\theta}{r} = r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{V_\theta}{r} \right) \quad (\text{III.2.3})$$

Dans l'équation constitutive, la contrainte non nulle ( $\tau_{\theta r}$ ) du tenseur des contraintes est reliée à  $\dot{\gamma}$  par la relation :  $\tau_{\theta r} = \eta \dot{\gamma}$ , où  $\eta$  est une constante (fluide Newtonien). Cherchant maintenant à une relation explicitant  $\tau_{\theta r}$ .

Etant donné que le couple reste constant entre  $r$  et  $r+dr$  (cette stabilité du couple est dû à l'équilibre mécanique à l'état stationnaire du volume de fluide compris entre les cylindres de rayon  $r$  et  $r+dr$ ), on peut donc écrire :

$$2\pi (r + dr)^2 \tau_{\theta r}(r + dr) = 2\pi r^2 \tau_{\theta r}(r) \quad (\text{III.2.4})$$

Soit :

$$\frac{\partial}{\partial r} (r^2 \tau_{\theta r}) = 0 \quad (\text{III.2.5})$$

En tenant compte de l'Eq.  $\tau_{\theta r} = \eta \dot{\gamma}$ , l'Eq. II.2.5 devient :

$$\tau_{\theta r} = \eta r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{V_\theta}{r} \right) \quad (\text{III.2.6})$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \left[ r^3 \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{V_\theta}{r} \right) \right] = 0 \quad (\text{III.2.7})$$

En intégrant l'Eq. II.2.7, on trouve que :

$$V_{\theta} = ar + \frac{b}{r} \quad (\text{III.2.8})$$

Avec  $a$  et  $b$  sont des constantes peuvent être déterminées en utilisant les conditions aux limites :  $V_{\theta}(R_i) = R_i \Omega$  et  $V_{\theta}(R_e) = 0$

On trouve alors (Guyon et al., 2001) :

$$V_{\theta}(r) = -\frac{\Omega R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} r + \frac{\Omega R_e^2 R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r} \quad (\text{III.2.8})$$

Ou bien :

$$V_{\theta}(r) = r\Omega \frac{(R_e/r)^2 - 1}{(R_e/R_i)^2 - 1} \quad (\text{III.2.9})$$

Le gradient de vitesse s'écrit alors :

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{2\Omega R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} \quad (\text{III.2.10})$$

Etant donné que le rhéomètre ne peut mesurer de grandeurs locales (c'est-à-dire à un  $r$  donné), donc, pour déterminer la viscosité, on peut calculer la contrainte et le taux de cisaillement moyens dans l'entrefer :

$$\langle \tau \rangle = \frac{1}{R_e - R_i} \int_{R_i}^{R_e} \frac{C}{2\pi h r^2} dr = \frac{C}{2\pi h R_i R_e} \quad (\text{III.2.11})$$

$$\langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{1}{R_e - R_i} \int_{R_i}^{R_e} \frac{2\Omega R_i^2 R_e^2 C}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} = \frac{2\Omega R_i R_e}{R_e^2 - R_i^2} \quad (\text{III.2.12})$$

Considérant le cas où  $R_e - R_i \ll R_i$ , les expressions trouvées peuvent être réduite aux expressions utilisées pour un entrefer faible :

$$\tau_i = \frac{C}{2\pi h R_i^2} \quad (\text{III.2.13})$$

$$\dot{\gamma} = \frac{R_i \Omega}{R_e - R_i} \quad (\text{III.2.14})$$

### III.2.5.1.2 Viscosité d'un fluide non-Newtonien dans une géométrie de cylindres coaxiaux

Dans le cas d'un fluide non-Newtonien que l'on veut étudier, la loi constitutive reliant la contrainte et le taux de cisaillement est ignorée,  $\eta$  peut dépendre de  $\dot{\gamma}(r)$  mais on ignore cette dépendance. Donc le comportement local du fluide (c'est-à-dire à une distance radiale  $r$  donnée) est inconnu.

Pratiquement, les relations de détermination de la viscosité d'un fluide non-Newtonien dans un rhéomètre sont les mêmes que celles pour un fluide Newtonien (relations pour un entrefer faible déterminer précédemment). La viscosité mesurée est donc une viscosité apparente et le profil de vitesse se rapproche d'un profil linéaire.

Etant donné que le profil de vitesse dans l'entrefer pour un fluide non-Newtonien dépend des propriétés non newtoniennes du fluide que l'on ignore a priori et que l'on cherche justement à mesurer, la détermination de ce profil n'est pas facile. Mais, il y a une possibilité d'obtenir une relation du profil de vitesse comme dans le cas d'un fluide Newtonien. On suppose que la loi constitutive du fluide obéit à une loi de puissance :

$$\tau = k\dot{\gamma}^n \quad (\text{III.2.15})$$

Avec  $k$  et  $n$  ce sont des constantes caractéristiques du fluide étudié. Pour  $n = 1$ , on retrouve le cas d'un fluide Newtonien, pour  $0 < n < 1$ , le fluide est rhéofluidifiant et pour  $n > 1$ , le fluide est rhéoépaississant. A partir de la relation de  $\dot{\gamma}$  en coordonnées cylindriques (**Eq. III.2.3**), on peut tirer :

$$\tau = kr^n \left[ \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{V_\theta}{r} \right) \right]^n \quad (\text{III.2.16})$$

Le profil de vitesse pour un fluide en loi de puissance est obtenu, en reportant l'expression de  $\tau$  dans l'équation du mouvement en géométrie de couette (**Macosko, 1994**), (c'est-à-dire dans  $\frac{\partial(r^2\tau_{\theta r})}{\partial r} = 0$ ) et en tenant compte des conditions aux limites ( $V_\theta(r = R_i) = R_i \Omega$  et  $V_\theta(r = R_e) = 0$ ) :

$$V_\theta(r) = r\Omega \frac{(R_e/r)^{2/n-1}}{(R_e/R_i)^{2/n-1}} \quad (\text{III.2.17})$$

### III.2.5.1.3 Module complexe de cisaillement en déformation imposée

La détermination du module complexe du fluide dans une géométrie de cylindres coaxiaux de rayon intérieur  $R_i$  et rayon extérieur  $R_e$  dont l'entrefer est faible ( $R_e \gg R_e - R_i$ ), conduit à l'expression suivante :

$$G^*(w) = \frac{T_0}{\Theta_0} \frac{R_e^2 - R_i^2}{4\pi R_i^2 R_e^2} e^{j\delta(w)} \quad (\text{III.2.18})$$

Avec  $\Theta_0$  est l'angle de déformation que subit le matériau.

Afin de minimiser les erreurs sur la mesure du module complexe qui proviennent principalement de la précision sur la mesure du couple et de la déformation, des défauts de mise en place des échantillons et de la détermination de la température, il est nécessaire de définir un protocole expérimental rigoureux. Particulièrement, on doit choisir une déformation ou une contrainte qui conduit à une réponse viscoélastique linéaire de l'échantillon.

La fréquence de sollicitation affecte aussi la précision des résultats, on note que l'erreur est plus importante aux faibles fréquences (environ 5%). L'erreur peut être toutefois diminuée dans la zone des faibles fréquences, si on augmente le nombre de cycle (1 à 3 cycles).

### III.2.5.2 Instabilités pendant les mesures rhéologiques

Quel que soit le type de la géométrie utilisée, il existe toujours des phénomènes qui peuvent perturber ou fausser la mesure rhéologique. Parmi les phénomènes indésirables pouvant intervenir au cours des essais rhéologiques, on peut trouver : Le problème d'évaporation de l'échantillon, hétérogénéité du fluide et les glissements aux niveaux des parois de la géométrie de mesure. Dans les paragraphes qui suivent, nous expliciterons ces phénomènes perturbateurs afin d'en tenir compte et limiter leurs effets sur nos résultats.

#### III.2.5.2.1 Problème d'évaporation

Le problème d'évaporation est rencontré le plus souvent dans le cas des solutions ou dispersions basées sur l'eau et les solvants volatils.

Le contact direct de l'échantillon avec l'atmosphère entraîne une évaporation en fonction de la température environnante. La surface libre de l'échantillon devient plus grande quand l'entrefer est large.

Une diminution du volume de l'échantillon va être entraînée par le problème d'évaporation, surtout dans le cas des essais de longue durée. Ceci pourrait se traduire par une augmentation de la concentration massique, ce qui entraînera l'augmentation de la viscosité de l'échantillon (Leyama, 2001).

Dans notre cas, nous avons utilisé la géométrie de cylindres coaxiaux et nous avons déposé un film d'huile de paraffine de faible viscosité sur la surface libre de l'échantillon, la réponse viscoélastique de l'échantillon n'est pratiquement pas affectée par cette couche (Beheshti et al., 2006 ; Maleki et al., 2006 ; Hasani et al., 2008 ; Wang et al., 2015).

### III.2.5.2.2 Hétérogénéité du fluide

Les hétérogénéités qui peuvent se produire lors des mesures rhéologiques sont de plusieurs types. Dans le cas des suspensions peu concentrées, une sédimentation des particules peut conduire à la formation d'une couche de densité plus faible dans laquelle se concentre le cisaillement. Il se crée alors une bande de cisaillement différenciée et une viscosité du matériau qui varie en fonction de la hauteur. Afin d'augmenter l'homogénéité du fluide, nous avons opté à un pré-cisaillement avant chaque essai rhéologique.

### III.2.5.2.3 Glissement aux parois

C'est un phénomène très important à prendre en compte pour toute mesure rhéologique. Il peut se produire dans toutes les géométries d'écoulement et résulte du cisaillement d'une fine couche du fluide près des parois. Ce phénomène donne lieu à des erreurs pendant les mesures et l'interprétation des résultats, en particulier pour la mesure de la contrainte seuil avec un rhéomètre à contrainte imposée (Barnes, 1995 ; Bonifas, 1998). Pour les suspensions, une migration des particules et une décroissance de la concentration solide près de la paroi lisse peuvent favoriser le glissement. Ce phénomène de migration connu sous le nom "effet sigma" a été abordé par différents auteurs (Quemada, 1977 ; 1978a et 1978b). Le problème du glissement aux parois peut être évité ou minimisé par recouvrement des surfaces de la géométrie de mesure par un papier verre. Dans notre cas, nous avons opté à un pré-cisaillement avant chaque essai rhéologique pour éviter le phénomène de glissement aux parois comme il est indiqué dans le travail de Abu-Jdayil et Ghannam, (2014).

### III.2.5.3 Protocoles expérimentaux

Pour déterminer les propriétés viscoélastiques des fluides de forage étudiés, nous avons élaboré à un protocole expérimental rigoureux de telle façon que nos échantillons soient soumis à la même histoire mécanique.

Les essais rhéologiques effectués dans cette étude regroupent les deux domaines de la viscoélasticité linéaire et non-linéaire et comprennent : essais en écoulement afin de déterminer la loi rhéologique (la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement) qui régit les différents systèmes étudiés, essais dynamiques tels que le balayage en fréquence et le suivi cinétique afin de déterminer les modules viscoélastiques et le temps de gel et des essais de balayage en température et en pH pour étudier l'influence de ces paramètres sur le comportement rhéologique des fluides de forage. Pour les premiers essais (essai en écoulement

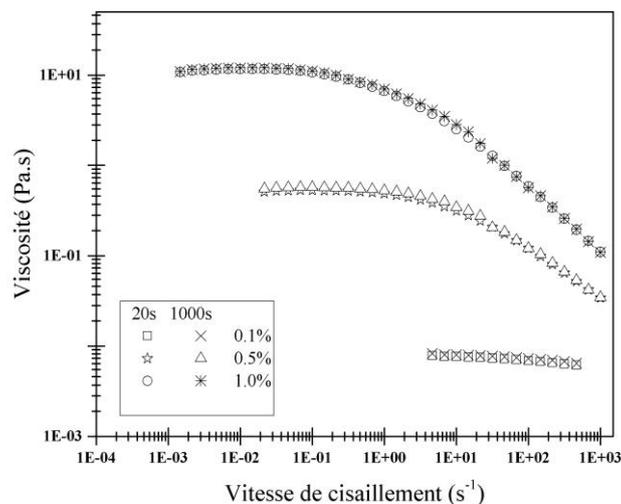
et essais dynamiques la température est maintenue constante à  $25 \pm 0.1$  °C. Pour le balayage en température, les mesures ont été effectuées à différentes températures allant de 25 à 75 °C et elles ont été lancées après avoir atteint l'équilibre de température.

### III.2.5.3.1 Courbes d'écoulement

Les courbes d'écoulement sont mesurées avec un taux de cisaillement contrôlé ou une contrainte de cisaillement contrôlée et sont exprimées soit en terme de viscosité soit en terme de contrainte de cisaillement. Ces courbes d'écoulement ont été obtenues en appliquant le protocole expérimental suivant :

- Avant chaque essai en écoulement, les échantillons ont été agités préalablement pendant 20 min.
- Dans la géométrie de mesure, les échantillons ont également été soumis à un fort pré-cisaillement de  $1000 \text{ s}^{-1}$  pendant 60 s.
- Les échantillons ont été laissés au repos sous la géométrie de mesure pendant 60 s.
- Début de l'essai en augmentant le taux de cisaillement de  $10^{-3}$  à  $10^3 \text{ s}^{-1}$  pour une durée de 20s pour chaque point.

Pour les solutions aqueuses de HEC, les essais en écoulement simple ont été répétés avec un long temps de 1000 s pour confirmer que le régime permanent est établi et les résultats entre les deux tests ont été comparés pour trois concentrations (**Fig. III.2.6**).



**Figure III.2.6** : Courbes de viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement des solutions de HEC établies à l'aide de deux protocoles expérimentaux différents.

### III.2.5.3.2 Essais dynamiques

#### a- Balayage en contrainte

Les tests de balayage en contrainte sont des tests oscillatoires à fréquence constante et une contrainte croissante. Les résultats de ce test sont les courbes du module de conservation ( $G'$ ) et perte ( $G''$ ), caractérisant le comportement élastique, visqueux ou viscoélastique des matériaux. Pour ce test, on a procédé comme suit :

- Agitation préalable de l'échantillon pendant 20 min.

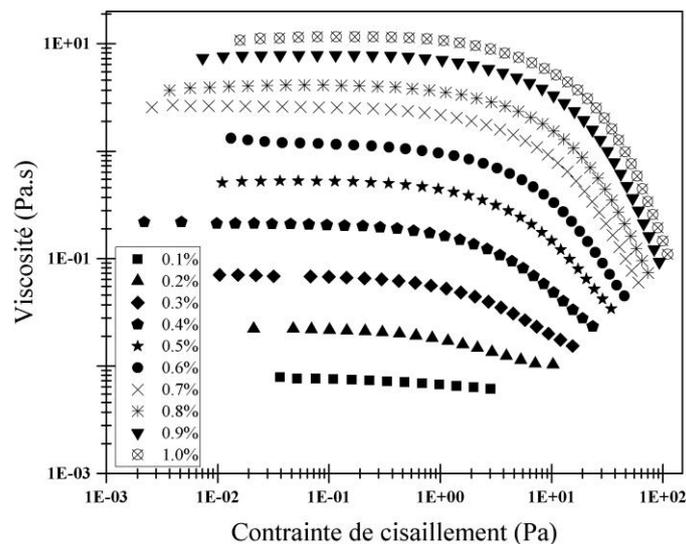
- Un fort pré-cisaillement de l'échantillon sous la géométrie de mesure de  $1000 \text{ s}^{-1}$  pendant 60 s.
- Laisser l'échantillon sous repos durant 2 min.
- Lancer l'essai rhéologique, en choisissant un intervalle de contrainte entre 0.01 et 20 Pa et en fixant la fréquence à 10 rad/s.

### b- Balayage en fréquence

Dans cet essai, on mesure les modules élastique et visqueux en fonction de la fréquence. Si  $G' > G''$ , le comportement élastique domine sur le comportement visqueux et l'échantillon montre un caractère solide. La relation entre le module de conservation et de perte donne alors une idée sur la rigidité du matériau. Dans le cas contraire où  $G'' > G'$ , le comportement visqueux domine et l'échantillon se comporte comme un liquide. Le protocole expérimental pour cet essai est le suivant :

- Agitation préalable de l'échantillon pendant 20 min.
- Un fort pré-cisaillement de l'échantillon sous la géométrie de mesure de  $1000 \text{ s}^{-1}$  pendant 60 s.
- Une couche de film de l'huile de paraffine à la surface de l'échantillon (pour éviter le problème d'évaporation).
- Laisser l'échantillon sous repos durant 90 min.
- Lancer l'essai rhéologique, en choisissant un intervalle de fréquence entre 0.01 et 100 rad/s et en fixant la contrainte à 0.15 (cette contrainte est choisie à partir du premier courbe  $G'$  et  $G'' = f(\tau)$  de telle façon qu'elle appartient au domaine linéaire pour ne pas déstructurer notre échantillon).

Pour les solutions de HEC, la contrainte appliquée est de 0.015 Pa, qui est une valeur appartenant au domaine de la viscoélasticité linéaire (**Fig. III.2.7**).



**Figure III.2.7** : Courbes de viscosité en fonction de la contrainte de cisaillement des solutions de HEC montrant les deux régimes linéaires et non linéaires.

**c- Balayage en temps (suivi cinétique)**

Dans cet essai, on suit l'évolution des paramètres viscoélastiques en fonction du temps afin d'estimer un temps de gel caractérisant les fluides de forage au repos. On réalise ce test, en se basant sur ce protocole expérimental :

- Agitation préalable de l'échantillon pendant 20 min.
- Un fort pré-cisaillement de l'échantillon sous la géométrie de mesure de  $1000 \text{ s}^{-1}$  pendant 60 s.
- Une couche de film de l'huile de paraffine à la surface de l'échantillon (pour éviter le problème d'évaporation).
- Un suivi cinétique de 5 h sous une fréquence de 10 rad/s et une contrainte de [0.05 à 0.15 Pa].

**Références bibliographiques**

- Abu-Jdayil, B., Ghannam, M. The modification of rheological properties of sodium bentonite-water dispersions with low viscosity CMC polymer effect. *Energy Sources, Part A*. 36 (10): 1037–1048, (2014).
- Beheshti, N., Nguyen, G.T.M., Kjøniksen, A.-L., Knudsen, K.D., Nyström, B. Structure and dynamics of aqueous mixtures of an anionic cellulose derivative and anionic or cationic surfactants. *Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp.* 279 : 40–49, (2006).
- Chouchane, T., Chouchane S., Boukari, A. Elimination du manganèse en solution par le kaolin, Etude cinétique et thermodynamique. *Revue des Energies Renouvelables*. 16: 313–335, (2013).
- Couarraze, G., and Grossiord, J.L. *Initiation à la rhéologie*. 3e éd., Tec & Doc Lavoisier. 300p, (2000).
- Elward-Berry, J., and Darby, J.B. Rheologically stable, nontoxic, high temperature, water based drilling fluid. *SPE Drill. Complet.* 158–162, (1997).
- Glass Jr, J.E. HEC-bentonite compatible blends. US patent, 4561985, (1985).
- Guyon, E., Hulin, J.-P., Petit, L. *Hydrodynamique physique*. EDP Sciences/CNRS Editions, (2001).
- Hao, S.-q. A study to optimize drilling fluids to improve borehole stability in natural gas hydrate frozen ground. *J. Pet. Sci. Eng.* 76: 109–115, (2011).
- Hasani, M., Cranston, E.D., Westmana, G., Gray, D.G. Cationic surface functionalization of cellulose nanocrystals. *Soft Matter*. 4: 2238–2244, (2008).
- Jozja, N., Baillif, P., Touray, J.S., Pons, C.H., Muller, F., Burgevin, C. Impacts multi-échelle d'un échange (Mg, Ca)–Pb et ses conséquences sur l'augmentation de la perméabilité d'une bentonite. *Comptes Rendus Géoscience*. 335: 729–736, (2003).
- Juppe, H.L., Marchant, R.P., Melbouci, M. Environmentally acceptable fluid polymer suspension for oil field services. US patent, 6620769 B1, (2003).
- Kumar, A.S., Mahto, V., Sharma, V.P. Behavior of organic polymers on the rheological properties of Indian bentonite-water based drilling fluid system and its effect on formation damage. *Indian J. Chem. Technol.* 10: 525–530, (2003).

- Leyama, M. Etude de l'écoulement des suspensions de bentonite. Thèse de doctorat de l'université Louis Pasteur, Strasbourg, (2001).
- Macosko, C., W. Rheology: Principles, Measurements and Applications. VCH Publishers, Inc, Minneapolis, vch publishers, inc edition, (1994).
- Mahto, V., and Sharma, V.P. Rheological study of a water based oil well drilling fluid. *J. Pet. Sci. Eng.* 45: 123–128, (2004).
- Maleki, A., Kjøniksen, A.-L., Knudsen, K.D., Nyström, B. Dynamical and structural behavior of hydroxyethyl cellulose hydrogels obtained by chemical gelation. *Polym Int.* 55: 365–374, (2006).
- Melbouci, M. Use of polyethylene glycol based fluidized polymer suspension in functional systems. US patent, 8450386 B2, (2013).
- Park, A., Scott Jr, P.P., Lummus, J.L. Maintaining low solids drilling fluids. *Oil Gas J.* 81–84, (1960).
- Quemada, D. Rheology of concentrated disperse systems and minimum energy dissipation principle. *Rheol. Acta.* 16: 82–94, (1977).
- Quemada, D. Rheology of concentrated disperse systems II. A model for non-newtonian shear viscosity in steady flows. *Rheol. Acta.* 17: 632–642, (1978a).
- Quemada, D. Rheology of concentrated disperse systems III. General features of the proposed non-newtonian model. Comparison with experimental data" *Rheol. Acta.* 17: 643–653, (1978b).
- Wang, W., Li, F., Yu, J., Navard, P., Budtova, T. Influence of substitution on the rheological properties and gelation of hydroxyethyl cellulose solution in NaOH–water solvent. *Carbohydrate polymers.* 124: 85–89, (2015).
- Yan, Y.K., Liang, L.P., Feng, W.Q. Rheological study on natural heteropolysaccharide based drilling fluid. *J. Cent. South Univ. Technol.* 0188–04: 188–191, (2007).
- Zhang, L.-M., Sun, B.-W. Inhibition of water-soluble cationic cellulosic polymers to clay hydration. *J. Appl. Polym. Sci.* 74: 3088–3093, (1999).

## Chapitre IV

### Comportement rhéologique des fluides de forage à base d'eau

Le présent chapitre consiste à étudier expérimentalement le comportement rhéologique des différentes formulations des fluides de forage telles que : les suspensions de bentonite Algériennes (B–Mos et B–Mag), les solutions aqueuses de HEC et le mélange bentonite (B–Mos) /HEC.

La première partie de ce chapitre est dédiée à faire une comparaison rhéologique entre les deux suspensions de bentonite Algériennes (B–Mos et B–Mag), qui sont souvent utilisées pour le forage des puits de pétrole et du gaz. Cette comparaison permet de sélectionner le type de bentonite adéquat pour un forage pétrolier et qui assure les différentes fonctions pendant le forage. L'étude a été menée sur plusieurs concentrations massiques allant de 3 à 7% afin de mieux comprendre la relation entre les changements du comportement et l'évolution de la concentration ainsi que pour sélectionner une concentration massique qui offre les propriétés nécessaires pour le succès d'un forage pétrolier.

La deuxième partie se concentre sur l'étude de la rhéologie des solutions aqueuses de HEC qui sont utilisées soit seules soit comme additives pour les fluides de forage. À partir de cette étude les différents régimes de solution de polymère HEC sont déterminés, et en particulier des concentrations qu'on peut utiliser dans les formulations des fluides de forage sont déterminées.

La troisième partie est consacrée à la caractérisation rhéologique des suspensions de mélange bentonite–HEC qui est une suite logique des deux premières parties. Pour mieux comprendre l'origine microscopique du comportement rhéologique observé, la caractérisation des mélanges a été complétée par des analyses de diffraction par rayon X (DRX).

Tous les résultats expérimentaux obtenus ont été modélisés et l'identification des paramètres rhéologique a été réalisée par la méthode de régression non linéaire utilisant l'algorithme de [Levenberg-Marcquardt \(1944\)](#).

#### IV.1. Introduction

Les fluides de forage à base d'eau, y compris les boues bentonitiques, sont plus répandus et souvent utilisés dans l'industrie pétrolière ([Ali et Barrufet, 2001](#) ; [Kok, 2004](#) ; [Song et al., 2016](#)). La bentonite est favorisée principalement en raison de sa grande capacité de gonflement et de ses excellentes propriétés rhéologiques ([Jung, 2011](#) ; [Li et al., 2015](#) ; [Temraz et Hassanien, 2016](#)). Ce type de fluide de forage assure plusieurs fonctions, telles que le transport des déblais du fond du puits jusqu'à la surface, le refroidissement et la lubrification du trépan et des tiges de forage, la réduction des frottements entre la formation et les équipements de forage, le maintien des parois du puits et le contrôle de la pression de formation ([Baba Hamed et Belhadri, 2009](#) ; [Kelessidis et al., 2011](#) ; [Kosynkin et al., 2011](#)). En outre, un bon fluide de forage doit être moins cher, moins réactif, écologique, non corrosif et résiste à la contamination des sels et

aux grandes températures (Wan et al., 2011 ; Khalil et Mohamed Jan, 2012 ; Yan et al., 2013 ; Okon et al., 2014).

La formation du gel pour les boues bentonitiques est due à deux mécanismes; le premier est la force d'attraction électrostatique trop élevée entre les bords chargés positivement et les surfaces chargées négativement. Le second mécanisme sont les interactions bords à bords et face à face via une répulsion à double couche entre les particules (Benna et al., 1999; Choo et Bai, 2015). Le gel conduit à la déposition d'un épais cake sur la formation forée. Malheureusement, ce cake provoque de sérieux problèmes, notamment la décélération du taux d'avancement des opérations de forage, l'endommagement de la formation et le coincement des tiges de forage (William et al., 2014 ; Fan et al., 2015; Anyanwu et Mustapha Unubi, 2016). La solution qui convient le mieux consiste à remplacer la boue bentonitique par des fluides de forage à base d'argile-polymère dans lesquels les polymères jouent le rôle de modificateur de rhéologie, stabilisateur et d'additif réducteur de perte de fluide. Les polymères hydrosolubles sont les plus utilisés comme additifs pour les fluides de forage (Tiner, 1976; Carico et Bagshaw, 1978). Ces matériaux peuvent être des viscosifiants extrêmement efficaces ou ils peuvent être utilisés principalement pour réduire la perte de fluide en formant un cake sur la paroi du puits de forage. L'hydroxyéthylcellulose (HEC) est l'un des polymères linéaires utilisés pour créer la viscosité et former des cakes pour le contrôle de perte de fluide. L'HEC est généralement accepté comme un polymère offrant des endommagements minimums de perméabilité lors des opérations de forage et de complétion (Cole et al., 1995). Ce polymère est un éther de cellulose, de nature essentiellement non ionique, largement utilisé pour modifier la rhéologie ou comme stabilisant dans les fluides de forage, de complétion et de Work-over.

Etant donné que Le comportement rhéologique aide à comprendre la performance des dispersions de bentonite ; des solutions aqueuses de HEC ; et des suspensions de mélange bentonite-HEC, dans les applications des fluides de forage, dans ce chapitre une étude complète et explicative sur le comportement rhéologique des différents mélanges a été faite.

### IV.2. Etude rhéologique comparative des suspensions de bentonites Algériennes

Le comportement rhéologique des dispersions de bentonite a été évalué en augmentant la concentration en bentonite de 3% à 7%. La sélection de la concentration optimale de bentonite est cruciale dans les opérations de forage. Des concentrations plus faibles de bentonite peuvent entraîner un mauvais comportement du gel. En revanche, des concentrations plus élevées de bentonite la rendront très visqueuse, ce qui entraînera une plus grande puissance requise pour le pomper dans le puits. Cette partie traite les données rhéologiques expérimentales obtenues en les ajustant à l'aide de deux modèles mathématiques différents (H-B) et Papanastasiou (Pap) en régime stationnaire ; et un modèle mathématique Zener-Maxwell (Z-M) en régime dynamique, avec une concentration variable en bentonite à  $25 \pm 0.1$  °C.

#### IV.2.1 Modélisation rhéologique en régime stationnaire

Les revues de la littérature rapportent beaucoup de travaux en ce qui concerne la modélisation du comportement rhéologique des fluides de forage à base de bentonite en régime stationnaire

(Cartalos et al., 1997; Kelessidis et Maglione, 2006; Coussot, 2007; Sosio et Crosta, 2009; Abu-Jdayil, 2011; Gareche et al., 2012). Les résultats de ces travaux sont différents ce qui peuvent être dus aux divers types de bentonite utilisés, ainsi que les protocoles de préparation et de mesures adoptés.

Dans la littérature, Le modèle rhéologique (H-B) (Eq. II.1.3) est le plus souvent retenu pour décrire celui des suspensions de bentonite (Alderman et al., 1988; Pignon et al., 1996; Coussot, 1997).

**IV.2.1.1 modèle de Papanastasiou**

Le comportement rhéologique des suspensions de bentonite peut être aussi décrit par le modèle de (Pap) qui est de la forme suivante :

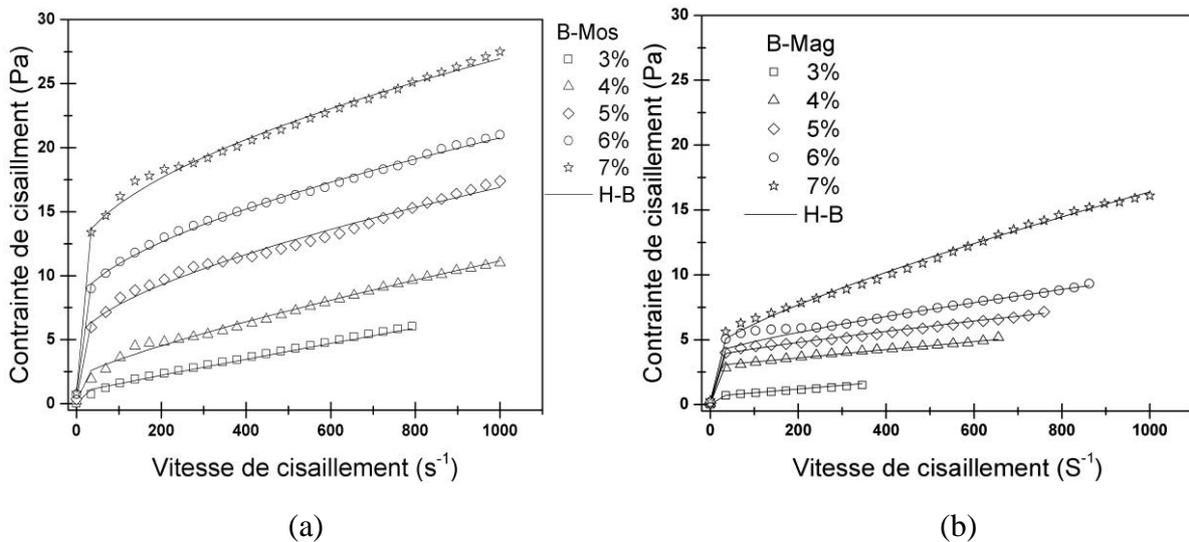
$$\tau = \tau_c [1 - \exp(-m\dot{\gamma})] + \mu_\infty \dot{\gamma} \tag{IV.2.1}$$

Avec  $\tau_c$  est la contrainte seuil d'écoulement (Pa),  $\mu_\infty$  est la viscosité à cisaillement infini (Pa.s) et  $m$  est l'exposant de la contrainte (s).

L'avantage de ce modèle est le fait que l'exposant  $m$  puisse reproduire la courbe d'écoulement  $\tau = f(\dot{\gamma})$  sur une gamme de vitesse de cisaillement ( $\dot{\gamma}$ ) plus étendue (Fig. IV.2.2a et b). En effet, on notera que :

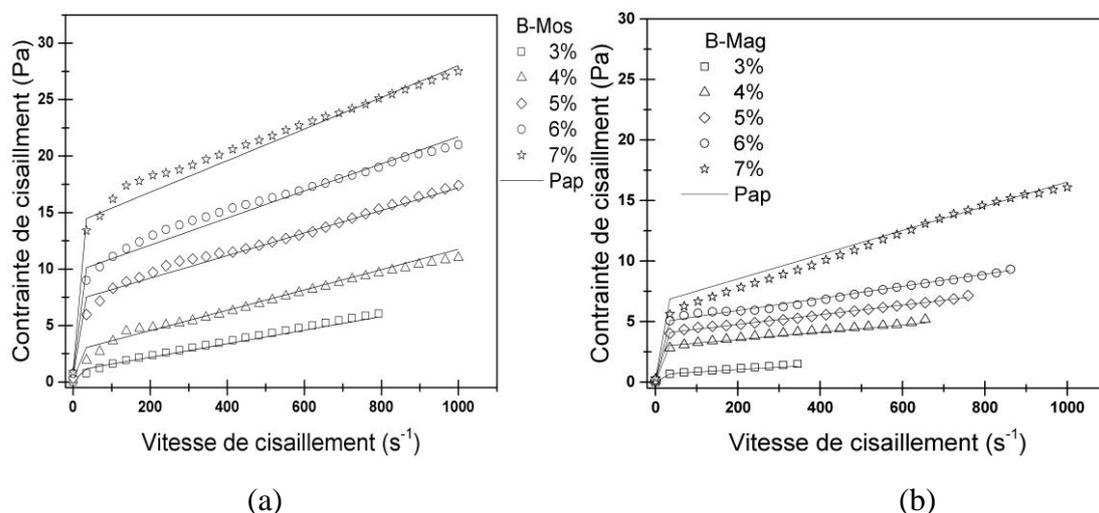
- Si  $m = 0$ , on obtient l'équation de Newton.
- Si  $m \rightarrow \infty$ , on obtient l'équation de Bingham.

Les figures IV.2.1 et IV.2.2 montrent l'effet de la concentration en bentonite sur le comportement rhéologique de ces suspensions. Toutes les suspensions de bentonite ont un comportement rhéofluidifiant avec une contrainte seuil (elle est déterminée par la projection du premier point d'inflexion de chaque courbe de la Fig. IV.2.3 sur l'axe des abscisses).



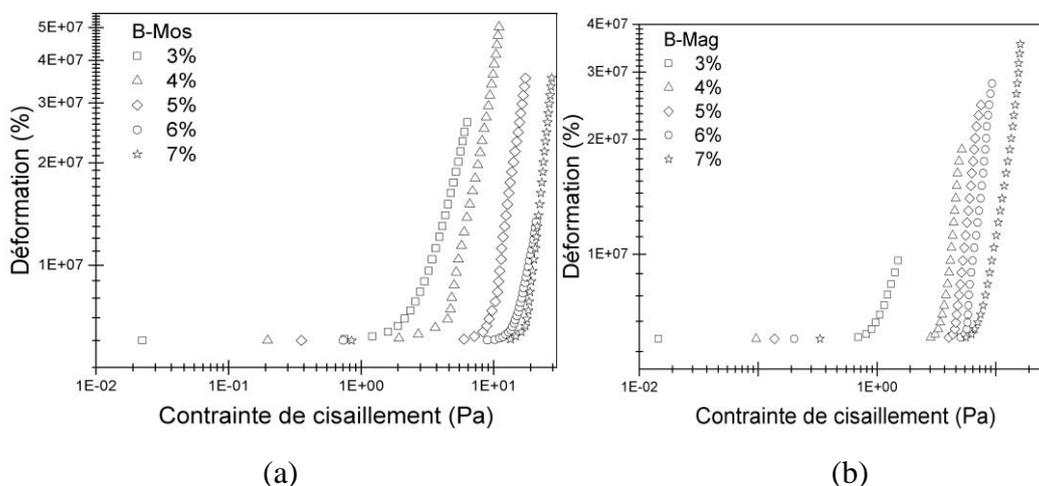
**Figure IV.2.1** : Ajustement des courbes d'écoulement par le modèle (H-B) : a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag.

L'effet de rhéofluidification est plus significatif pour les suspensions de B-Mos que pour les suspensions de B-Mag (**Fig. IV.2.1**), ce qui signifie une réduction de la viscosité avec l'augmentation de la vitesse de déformation et des résultats similaires ont été trouvés dans la littérature (Kelessidis et Maglione, 2006, 2008; William et al., 2014). Aux faibles taux de cisaillement, une augmentation importante de la viscosité apparente a été observée en augmentant la concentration de bentonite par rapport aux taux de cisaillement élevés. Cette augmentation de la viscosité est due à l'interaction entre les particules de bentonite et aux interactions entre les particules de bentonite et les molécules d'eau.



**Figure IV.2.2** : Ajustement des courbes d'écoulement par le modèle de (Pap): a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag.

Il existe deux mécanismes qui décrivent l'interaction des particules de bentonite dans des dispersions sans électrolyte, en fonction des associations bord à face et bord à bord. Ces associations conduisent à la formation d'une structure de card-house qui résulte en une association tridimensionnelle d'interaction de particules et augmente la viscosité des dispersions de bentonite à des concentrations plus élevées (Weiss et Frank 1961; Mewis 1979; Vali et Bachmann 1988).



**Figure IV.2.3** : Evolution de la déformation en fonction de la contrainte de cisaillement : a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag.

IV.2.1.2 Comparaison entre les deux modèles (H-B) et (Pap)

Les données expérimentales de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de cisaillement ont été ajustées par les modèles (H-B) et (Pap), pour étudier l'effet de la concentration de bentonite sur les paramètres des deux modèles qui sont mentionnés dans les figures IV.2.4.

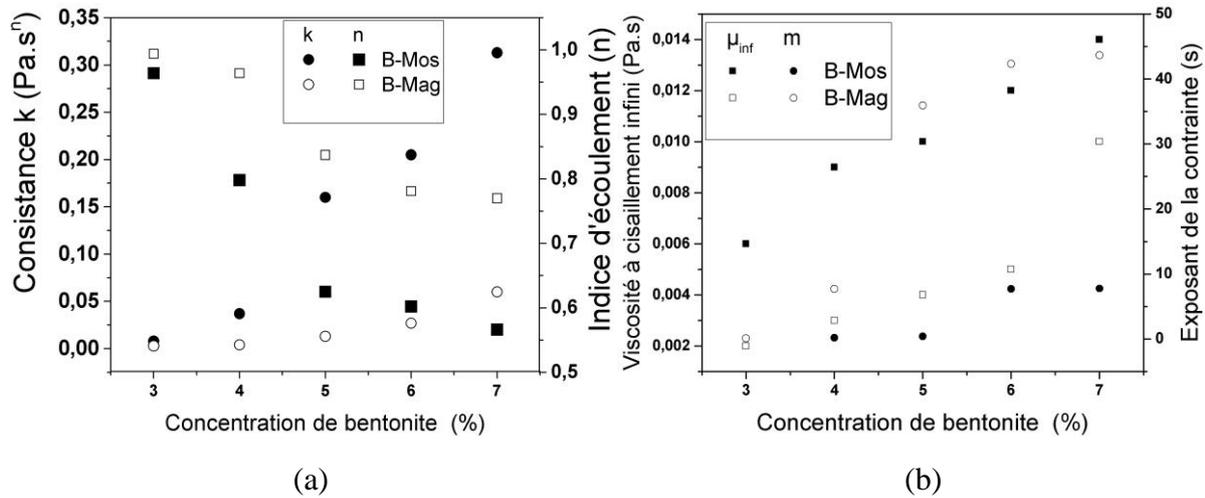


Figure IV.2.4 : Evolution des paramètres des deux modèles en fonction de la concentration en bentonite : a) paramètres du modèle (H-B), b) paramètres du modèle (Pap).

Les résultats montrent que la viscosité à cisaillement infini ( $\mu_{\infty}$ ), qui est calculée à des taux de cisaillement très élevés, est très faible ce qui indique la détérioration des interactions interparticulaires des dispersions de bentonite à des vitesses de cisaillement élevées. La contrainte seuil ( $\tau_c$ ) est le seuil minimal requise pour initier l'écoulement du fluide et pour les fluides de forage, cette contrainte seuil des dispersions de bentonite indique la capacité de soulever les déblais de forage à la surface. L'indice de consistance ( $k$ ) et l'exposant de la contrainte ( $m$ ) augmentent avec l'augmentation de la concentration des deux bentonites et ces paramètres ont une grande importance pour la détermination des propriétés de rhéofluidification. On peut constater que l'exposant de la contrainte varie dans un intervalle compris entre 0 et 44 s pour (B-Mag), tandis que pour (B-Mos), cet intervalle est beaucoup plus bas, entre 0 et 8 s. Par ailleurs, on peut également noter deux concentrations critiques correspondant au changement brusque de cet exposant de contrainte compris entre 5% à 6% pour (B-Mos) et entre 4% à 5% pour (B-Mag).

Aux faibles taux de cisaillement, on constate une augmentation de la contrainte de cisaillement avec l'augmentation de la concentration en bentonite. Cette augmentation de la contrainte de cisaillement est attribuée à la gélification de particules de bentonite dans le milieu aqueux et à l'augmentation des associations de particules.

D'après les résultats de la modélisation, il a été constaté, d'une part, que les valeurs les plus élevées du coefficient de corrélation (Tab. IV.2.1) montrent le meilleur ajustement du modèle de (Pap) sur une vaste plage du taux de cisaillement pour les deux dispersions de bentonite car il reproduit les points expérimentaux d'une façon satisfaisante par rapport au modèle (H-B). D'une autre part, si on compare la contrainte seuil déterminée à partir de la courbe  $\gamma = f(\tau)$  et

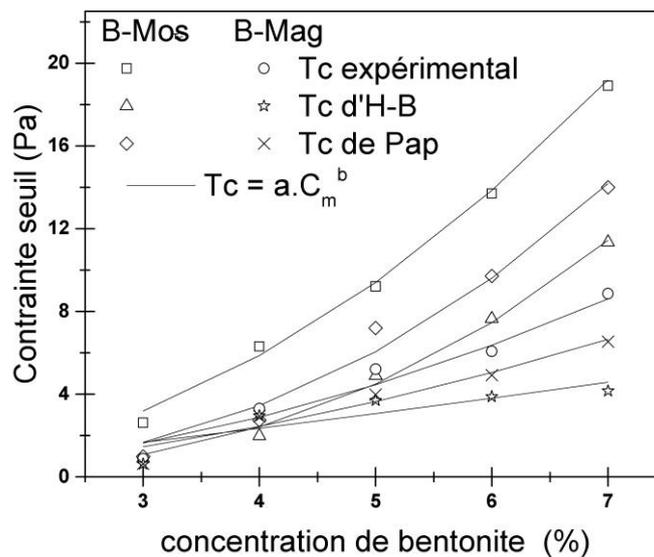
celles obtenues par les deux modèles pour les deux types de bentonite, on constate que, les contraintes seuils calculées par le modèle de Pap sont beaucoup plus proches de celles calculées expérimentalement (**Fig. IV.2.5**).

**Tableau IV.2.1** : Coefficients de corrélation pour les deux modèles.

$C_m$ (%)	Suspension B–Mos		Suspension B–Mag	
	$R^2$ (H–B)	$R^2$ (Pap)	$R^2$ (H–B)	$R^2$ (Pap)
3	0.985	0.998	0.785	0.999
4	0.979	0.988	0.757	0.986
5	0.939	0.986	0.833	0.998
6	0.997	0.935	0.750	0.995
7	0.993	0.900	0.993	0.814

Par ailleurs, la contrainte seuil peut être décrite par l'expression de la loi de puissance (**Berthier et Flaud, 1995; Laribi et al., 2005**) qui est :

$$\tau_c = a \cdot C_m^b \quad (\text{IV.2.2})$$



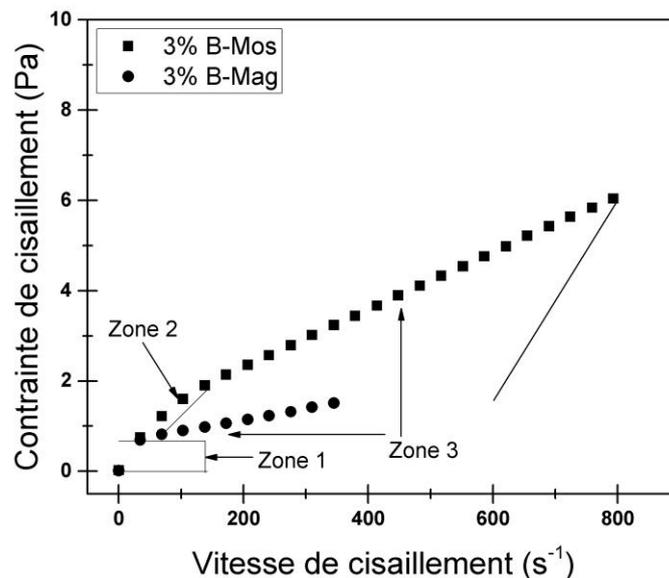
**Figure IV.2.5** : Comparaison des contraintes seuils obtenues expérimentalement et à partir des deux modèles des suspensions de B–Mos et B–Mag.

A partir des résultats obtenus, les courbes d'écoulement des suspensions de B–Mos peuvent être décomposées en trois états (**Fig. IV.2.6**) :

- (i) La première zone est caractérisée par un seuil d'écoulement apparent. Il n'y a pas d'écoulement, qui reflète un comportement solide des suspensions de bentonite. Selon **Russel (1980)** et **Tsenoglou (1990)** ce comportement peut être lié aux interactions entre particules. Ces forces de cohésion et d'interaction renforcent la structure tridimensionnelle en la rendant plus résistante, par la formation de flocs ou d'agrégats de particules, mais en même temps, cette structure tridimensionnelle est déformable. Il est remarquable aussi que cette première zone ne dépend que de la concentration en bentonite.

- (ii) La deuxième zone correspond à une rupture progressive des liaisons ioniques et électrostatiques entre particules et agrégats de particules. Selon Coussot et al., (2002) ce comportement peut être lié à une transition de phase induite par le cisaillement et / ou à une transition dans l'arrangement des particules. Gûven (1992), rapporte que ce phénomène correspond à une succession de ruptures et de restructurations des liaisons sous l'effet de contrainte de cisaillement. Des transferts d'énergie ont été effectués lors de la rupture et de la reconstitution des liaisons. La vitesse de cisaillement augmente et la viscosité diminue au moment de la rupture. En revanche, le gradient de vitesse diminue et la viscosité augmente lors de la reconstitution des liaisons.
- (iii) Dans la troisième zone, lorsque la contrainte de cisaillement est suffisante pour maintenir un écoulement, le taux de cisaillement augmente brusquement. Il s'agit d'un comportement rhéofluidifiant. Pendant cette phase, les agrégats de particules sont pratiquement tous détruits et les particules s'orientent selon les lignes de courant.

Pour les suspensions de B–Mag, la deuxième zone n'existe plus, il y a que la première et la troisième zone (Fig. IV.2.6), ce qui confirme qu'il n'y a pas une phase transitoire pour ce type de bentonite, dès que l'écoulement s'initie, on passe directement à la rhéofluidification sans qu'il y ait une reconstitution des liaisons entre les particules, c'est-à-dire, une fois les liaisons sont détruites, elles ne se reconstituent pas.



**Figure IV.2.6 :** Décomposition schématique de l'écoulement des suspensions de B–Mos et B–Mag.

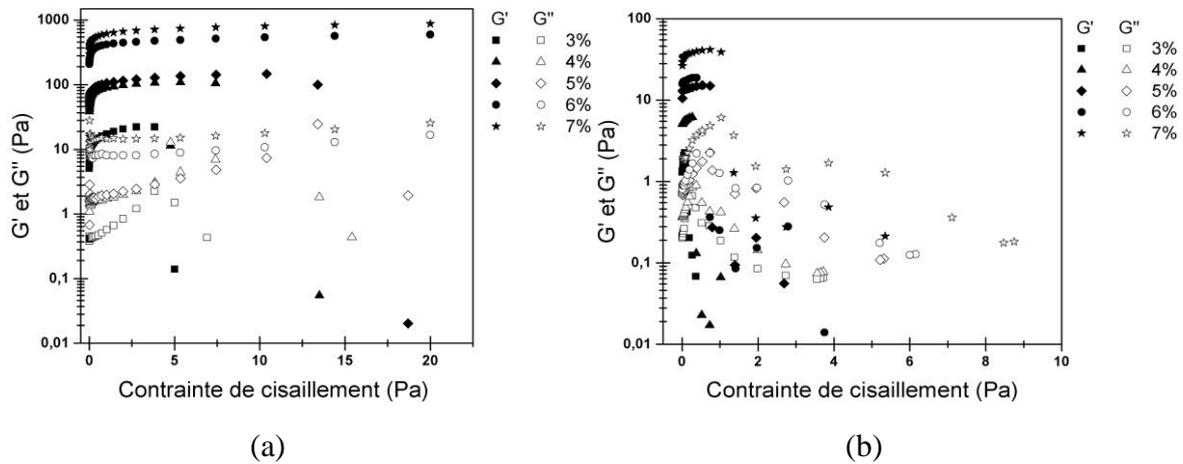
## IV.2.2 Modélisation rhéologique en régime dynamique

### IV.2.2.1 Balayage en fréquence

Des essais de balayage en fréquence qui consistent à mesurer l'évolution des deux modules de conservation ( $G'$ ) et de perte ( $G''$ ) en fonction de la fréquence ont été réalisés pour les différentes suspensions de bentonites sur une plage de fréquence comprise entre 0.01 et 100

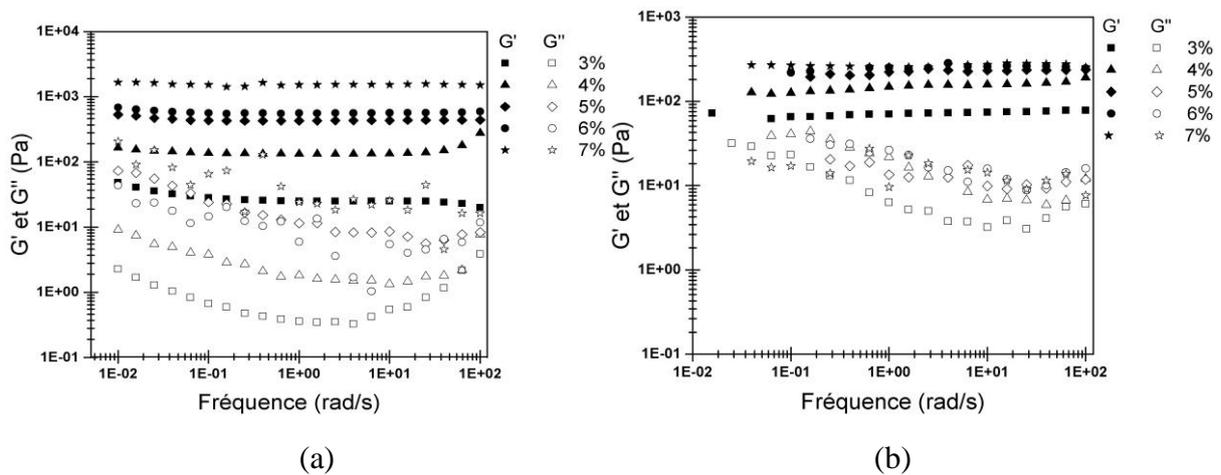
rad/s et pour une contrainte appartenant au domaine linéaire déterminée par un essai de balayage en contrainte (Fig. IV.2.7).

Les essais dynamiques ont été réalisés à  $25 \pm 0.1$  °C pour étudier l'effet de la concentration en bentonite sur les propriétés rhéologiques de ces suspensions.  $G'$  indique l'élasticité des dispersions de bentonite, il est supérieur à  $G''$  pour les deux types de bentonite et sa valeur augmente avec l'augmentation de la concentration en bentonite comme illustré dans la figure IV.2.8. Ceci est la signature d'un comportement de solide élastique avec une stabilité structurelle élevée et des résultats similaires ont été rapportés dans la littérature (Galindo-Rosales et Rubio-Hernandez, 2006).



**Figure IV.2.7 :** Balayage en contrainte pour différentes concentrations : a) suspensions de B-Mos, b) suspensions de B-Mag.

L'augmentation des propriétés rhéologiques avec la concentration en bentonite est probablement attribuée à la présence d'oxyde de fer, comme le montre la composition chimique indiquée précédemment dans le chapitre III (Tab. III.1.1).



**Figure IV.2.8 :** Balayage en fréquence pour différentes concentrations : a) suspensions de B-Mos, b) suspensions de B-Mag.

Les particules d'oxyde de fer constituent des agrégations sous la forme d'un réseau tridimensionnel qui limite le mouvement des plaquettes d'argile chargées négativement. Un

réseau tridimensionnel est formé par les particules d'oxyde de fer qui agissent comme des ponts entre les surfaces de bentonite chargées négativement, ce qui améliore les propriétés rhéologiques (Agha et al., 2016).

**- Modélisation du module complexe de cisaillement**

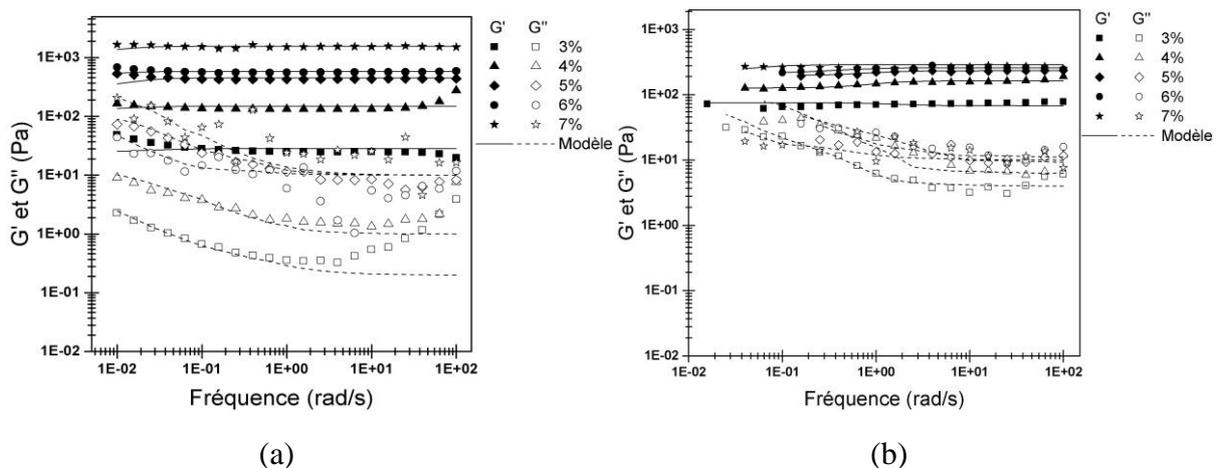
Nous avons analysé les essais de balayage en fréquence liés au comportement solide de nos suspensions en utilisant le modèle de Zenner-Maxwell (Z-M). Dans ce modèle, les modules de conservation  $G'$  et de perte  $G''$  sont exprimés par les relations **II.2.8** et **II.2.9** mentionnées dans le chapitre II.

L'application de ce modèle permet d'identifier les paramètres du modèle  $G_0$ ,  $G_1$ ,  $\Theta_1$  et  $\eta_1$  tel que  $\Theta_1 = \frac{\eta_1}{G_1}$ , (**Tab. IV.2.2**) :

**Tableau IV.2.2** : Estimation des paramètres du modèle de Zenner-Maxwell pour les suspensions de B-Mos et B-Mag.

Cm (%)	B-Mos				B-Mag			
	$G_0$ (Pa)	$G_1$ (Pa)	$\Theta_1$ (s)	$\eta_1$ (Pa.s)	$G_0$ (Pa)	$G_1$ (Pa)	$\Theta_1$ (s)	$\eta_1$ (Pa.s)
3	25.060	3.287	36.749	120.794	67.150	8.582	0.614	5.269
4	133.368	16.066	58.475	939.459	127.995	36.55	1.112	40.644
5	310.161	144.708	69.938	10120.588	198.562	36.048	1.227	44.231
6	430.742	148.735	85.931	12780.947	219.284	40.72	2.396	97.565
7	1120.758	346.934	90.793	31499.179	234.973	56.079	17.909	1004.319

La **figure IV.2.9** montre l'ajustement des courbes de balayage en fréquence par le modèle de (Z-M) pour les suspensions de B-Mos et B-Mag. L'analyse de ces courbes permet de dire que tous les paramètres augmentent en fonction de la concentration, notamment pour la viscosité  $\eta_1$  de l'élément de Maxwell et sont aussi significatifs pour les suspensions de B-Mos que celles de B-Mag. Ces résultats sont en parfait accord avec ceux obtenus en régime stationnaire.



**Figure IV.2.9** : Ajustement des courbes de balayage en fréquence par le modèle de (Z-M) :  
 a) pour les suspensions de B-Mos, b) pour les suspensions de B-Mag.

#### IV.2.2.2 Balayage en temps (suivi cinétique)

Pour mieux contrôler les propriétés rhéologiques d'un matériau dans le temps, il faut tout d'abord bien comprendre les mécanismes de structuration ou de restructuration des particules et des agrégats constituant ce matériau. Ces mécanismes ont été appréhendés par un suivi cinétique qui consiste à observer l'évolution des modules de conservation ( $G'$ ) et de perte ( $G''$ ) en fonction du temps environ 5 h. Les résultats obtenus pour les concentrations massiques (4, 5, 6 et 7%) de B-Mos présentent un comportement de gel à l'état initial ( $G'$  demeure supérieur à  $G''$ ). Par contre, pour la suspension 3%, celle-ci présente un temps de gel environ 109 s, représentant l'instant où le croisement des modules viscoélastiques se réalise. Ce temps de gel représente physiquement le passage de l'état liquide à l'état solide (Tung et Dynes, 1982). A titre illustratif, les courbes de balayage en temps des suspensions de B-Mos sont représentées dans la figure IV.2.10.

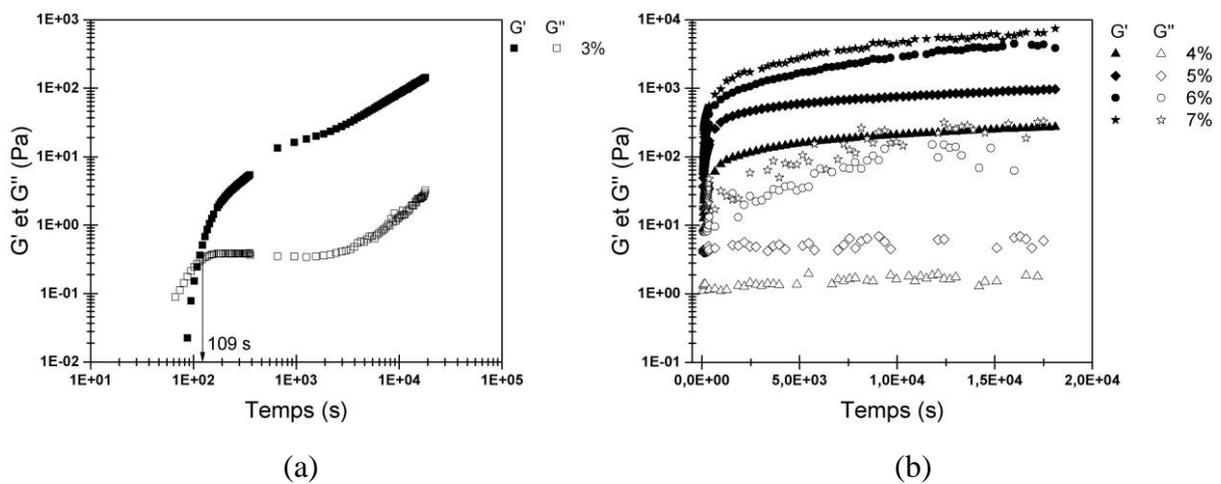


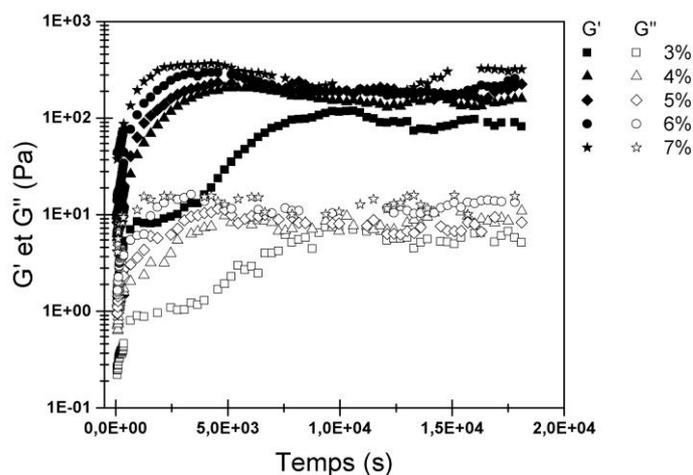
Figure IV.2.10 : Suivi cinétique des suspensions de B-Mos : a) 3%, b) 4–7%.

Pour les suspensions de B-Mos de 4, 5, 6 et 7%, on peut remarquer que le module de perte ( $G''$ ) oscille mais tend à se stabiliser à une valeur moyenne qui est dû au phénomène de résonance acoustique (Kaldasch et al., 1998), tandis que le module de conservation évolue peu et se stabilise. Cela montre que la cinétique de structuration de ces suspensions est très rapide. Par contre, pour les suspensions diluées telles que la suspension de 3%, la cinétique de structuration est plus significative et on peut remarquer de plus la transition liquide-solide. Les auteurs Overlaz et Coussot (2007) ont expliqué cet effet à travers un phénomène de percolation : l'augmentation initiale de  $G''$  indique la formation progressive d'agrégats solides dans le fluide; Lorsque la fraction volumique des agrégats atteint une concentration critique, les agrégats forment alors un réseau solide continu qui est renforcé dans le temps (induisant une augmentation brutale de  $G'$ ). Le matériau devient alors vieillissant tandis que  $G''$  décroît.

Toutes les suspensions de de B-Mag (3, 4, 5, 6 et 7%) se comportent comme un gel dès le début, ce comportement peut être expliqué par le fait que les couches de B-Mag sont en quelque sorte cimentées par suite du processus d'activation (Heinz et al. 2004). Cette cimentation des couches ne favorise pas l'adsorption d'une grande quantité d'eau ce qui provoque un autre phénomène qui est la sédimentation des particules et l'apparition d'un surnageant dont l'épaisseur augmente avec la diminution de la concentration en bentonite, ce phénomène qui

peut être dû aussi aux grosses particules que contient la B-Mag (la taille des particules est mentionnées dans la partie de l'analyse granulométrique, **Chap. III**) va provoquer des instabilités et par la suite on aura une diminution du module de conservation  $G'$ . Pour mieux illustrer ça, on représente dans la **figure IV.2.11** les courbes de balayage en temps des suspensions de B-Mag.

Malgré que les suspensions de B-Mag ne présentent pas la transition liquide-solide (Elles démarrent directement à un état gel) pour les différentes concentrations, l'ordre de grandeur des deux modules de conservation ( $G'$ ) et de perte ( $G''$ ) reste toujours inférieur à celui de B-Mos. On constate aussi pour cette bentonite que la différence entre les deux modules est plus restreinte.



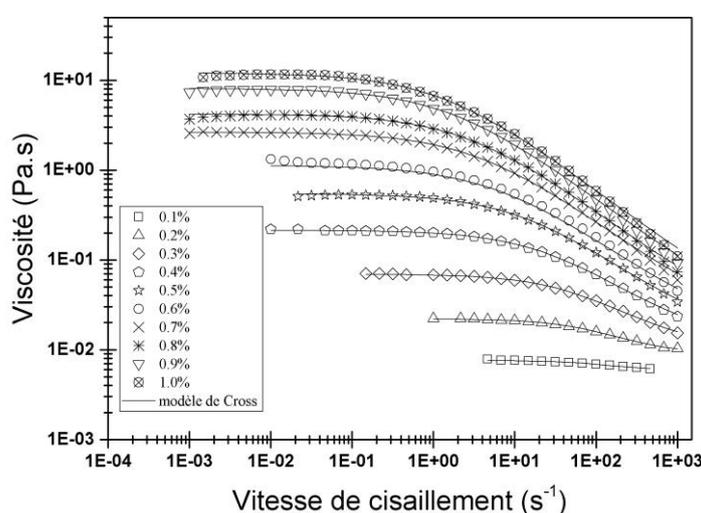
**Figure IV.2.11** : Suivi cinétique des suspensions de B-Mag (3 à 7%).

Les résultats obtenus en régime dynamique pour les suspensions de B-Mos et B-Mag confirment bien ceux retrouvés précédemment en régime stationnaire. Le comportement de ces suspensions est celui d'un solide élastique même aux faibles concentrations (3%). De plus, les propriétés rhéologiques des suspensions de B-Mos sont plus importantes que celles de B-Mag.

### IV.3. Comportement rhéologique des solutions aqueuses de HEC

#### IV.3.1 Description des courbes d'écoulement

La **figure IV.3.1** représente les courbes de viscosité en fonction de la vitesse de déformation pour les différentes concentrations des solutions aqueuses de HEC prédites par le modèle de Cross. À partir de cette figure, il est noté que le comportement de ces solutions est Newtonien à faible vitesse de cisaillement, suivi d'un comportement rhéofluidifiant à partir d'un taux de cisaillement critique ( $\dot{\gamma}_{crt}$ ) qui diminue lorsque la concentration en HEC augmente. Ce comportement rhéofluidifiant est dû à l'étirement et l'alignement des chaînes moléculaires du polymère qui forment des couches parallèles dans la solution. L'alignement moléculaire facilite le glissement entre les chaînes polymériques entraînant la réduction de la viscosité (Clasen et Kulicke, 2001). Absolument, aucun comportement rhéoépaississant n'est observé, ce qui est en bon accord avec les résultats rapportés dans la littérature (Castelain et al., 1987 ; Opong et de Bruyn, 2010 ; Wang et al., 2015).



**Figure IV.3.1 :** Courbes de viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement pour les solutions de HEC (0.1 – 1.0%) corrélées par le modèle de Cross.

Le modèle de Cross (1965) reproduit d'une manière satisfaisante les données expérimentales des solutions de HEC. Les paramètres de ce modèle tels que :  $\eta_0$ ,  $\eta_\infty$ ,  $\lambda$  et  $n$  sont mentionnés dans le **tableau IV.3.1**. D'une part, il est clair que  $\eta_0$ ,  $\eta_\infty$  et  $\lambda$  augmentent avec l'augmentation de la concentration de HEC. L'augmentation de ces paramètres peut être attribuée à la densification des chaînes de polymères qui permet de renforcer l'enchevêtrement (interactions locales polymère-polymère) des longues chaînes polymériques. Ce comportement est aussi relié à la formation d'un réseau tridimensionnel. D'une autre part, l'indice  $n$  diminue, Ce paramètre indique un degré de dépendance de la viscosité au taux de cisaillement dans la région de rhéofluidification, il tend vers l'unité pour un fort comportement rhéofluidifiant.

Les mesures rhéologiques en régime permanent nous a permis de déterminer la viscosité intrinsèque ainsi que la concentration critique  $C^*$  des solutions de HEC.

## Comportement rhéologique des solutions aqueuses de HEC

**Tableau IV.3.1** : Paramètres du modèle de Cross des solutions de HEC (0.1–1.0%)

HEC (%)	$\eta_0$ (Pa.s)	$\eta_\infty$ (Pa.s)	$\lambda$ (s)	$n$ (-)	$R^2$
0.1	0.0076	0.0059	0.0016	1.3213	0.9724
0.2	0.0220	0.0090	0.0070	1.0498	0.9984
0.3	0.0695	0.0105	0.0290	0.8442	0.9991
0.4	0.2140	0.0121	0.0788	0.7603	0.9994
0.5	0.5450	0.0137	0.1352	0.7387	0.9983
0.6	1.1290	0.0142	0.2607	0.6961	0.9664
0.7	2.6450	0.0179	0.3778	0.7043	0.9996
0.8	4.1999	0.0182	0.4515	0.7102	0.9949
0.9	8.0900	0.0191	0.6470	0.7063	0.9973
1.0	12.0600	0.0194	0.7789	0.7054	0.9963

### IV.3.1.1 Détermination de la viscosité intrinsèque

Les mesures de la viscosité intrinsèque des solutions macromoléculaires ont été décrites en détail ailleurs ([Harding, 1997](#)). De nombreuses relations ont été développées, décrivant la viscosité intrinsèque  $[\eta]$  en terme de viscosité spécifique et inhérente ( $\eta_{sp}$  et  $\eta_{inh}$ ). Parmi celles-ci, les plus largement acceptées sont celles attribuées à [Huggins \(1942\)](#) :

$$\frac{\eta_{sp}}{c} = [\eta] + k'[\eta]^2 C \quad (\text{IV.3.1})$$

Où  $k'$  est la constante de Huggins, qui pour de nombreux polymères dans le benzène à 25 °C, vaut  $0.4 \pm 0.1$  ([Rodriguez, 1983](#)), et aussi les relations de [Kraemer \(1938\)](#) :

$$\frac{\ln \eta_r}{c} = [\eta] - k''[\eta]^2 C \quad (\text{IV.3.2})$$

Où  $k''$  est une constante qui vaut  $0.05 \pm 0.05$  pour une large gamme de polymères solubles dans l'eau.

Il est aussi possible de déterminer la viscosité intrinsèque à partir des mesures des courbes d'écoulement. Tout d'abord, la viscosité relative est mesurée en fonction de la concentration en polymère par la relation suivante:

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_s} \quad (\text{IV.3.3})$$

Où  $\eta_r$  est la viscosité relative,  $\eta$  est la viscosité de la solution de polymère et  $\eta_s$  est la viscosité du solvant.

A partir de la viscosité relative, on peut obtenir la viscosité spécifique et inhérente, en utilisant les relations suivantes :

$$\eta_{sp} = (\eta_r - 1) \quad (\text{IV.3.4})$$

$$\eta_{inh} = \frac{\ln \eta_r}{c} \quad (\text{IV.3.5})$$

Et à partir de la viscosité spécifique, il est possible d'obtenir la viscosité réduite ( $\eta_{red}$ ) par l'expression suivante :

$$\eta_{red} = \frac{\eta_{sp}}{c} \quad (IV.3.6)$$

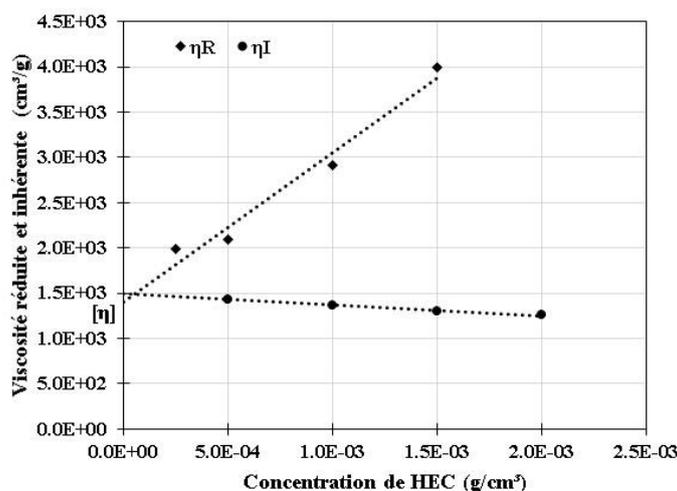
En raison des effets de la non-idéalité et / ou des phénomènes associatifs,  $\eta_{red}$  et  $\eta_{inh}$  dépendent de la concentration (Harding, 1997). Donc, la viscosité intrinsèque est définie comme une limite de  $\eta_{red}$  et  $\eta_{inh}$  quand  $C \rightarrow 0$  :

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0}(\eta_{red}) = \lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\eta_{sp}}{c} \right) \quad (IV.3.7)$$

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0}(\eta_{inh}) = \lim_{c \rightarrow 0} \left( \frac{\ln \eta_r}{c} \right) \quad (IV.3.8)$$

Par conséquent, les courbes de  $\eta_{red}$  et  $\eta_{inh}$  en fonction de la concentration permet de déterminer la viscosité intrinsèque en extrapolant une droite à  $C = 0$ .

La **figure IV.3.2** illustre les résultats obtenus pour l'échantillon de HEC utilisé. On peut noter que la viscosité intrinsèque de HEC étudié égale à  $1505 \text{ cm}^3/\text{g}$  ( $\sim 15.05 \text{ dl/g}$ ). En utilisant cette valeur, il est possible à partir de la relation de Kraemer d'estimer une valeur de  $k''$  de 0.0062, qui est compris dans l'intervalle cité précédemment.



**Figure IV.3.2** : Détermination de la viscosité intrinsèque de l'échantillon de HEC utilisant les viscosités réduite et inhérente.

### IV.3.1.2 Relation entre la viscosité intrinsèque et le poids moléculaire ( $[\eta]-M_w$ )

Il est bien connu que le poids moléculaire des polymères est le paramètre le plus important qui affecte leurs propriétés rhéologiques (Kulicke et Kniewske, 1984 ; Grigorescu et Kuliche, 2000). Dans ce fait, la détermination de ce paramètre est cruciale.

La relation entre la viscosité intrinsèque et le poids moléculaire est donnée par l'équation de Mark-Houwink comme suit :

$$[\eta] = k M^a \quad (IV.3.9)$$

Où  $k$  et  $a$  sont des constantes pour un polymère donné dans un solvant particulier à une température donnée.

Brown et al., (1963) ont déterminé les valeurs  $k$  et  $a$  d'un échantillon de HEC dans l'eau à 25 °C, donc l'équation IV.3.9 peut être écrite en utilisant les valeurs de  $k$  et  $a$  déterminées comme suit :

$$[\eta] = 9.49 \times 10^{-5} M^{0.87} \quad (\text{IV.3.10})$$

En utilisant cette équation, il s'avère que le poids moléculaire de HEC étudié est de  $9.5 \times 10^5$  g/mol. La valeur obtenue montre que cet échantillon a un poids moléculaire élevé, ce qui peut expliquer les valeurs élevées de viscosité apparente, de viscosité à cisaillement nul et à de cisaillement infini trouvées dans les mesures des courbes d'écoulement.

### IV.3.1.3 Concentration critique ( $C^*$ )

Différentes définitions de la concentration critique peuvent être trouvées dans la littérature. Selon Graessley (1980), la concentration de recouvrement critique est la concentration à laquelle l'espacement moyen des chaînes est égal au double du rayon de giration à une concentration de zéro : alors  $C^* \sim 0.77/[\eta]$ . En supposant que le volume moyen des coils sphériques englobées soit hexagonal packing, donne  $C^* \sim 1.1/[\eta]$  (Simha et Zakin, 1960), par contre, si les coils occupent le volume total disponible, cela donne  $C^* \sim 1.5/[\eta]$  (Morris et al., 1980).

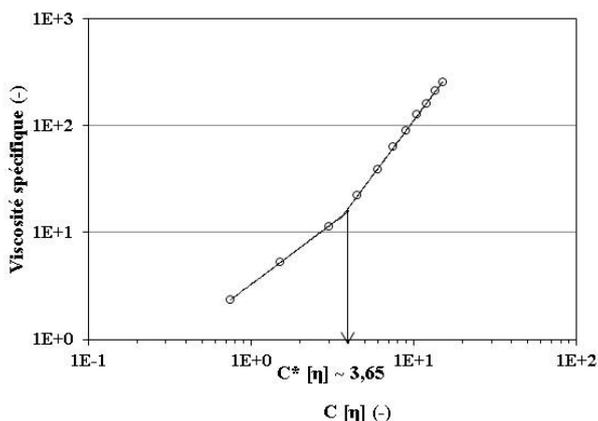
L'importance de la concentration critique ( $C^*$ ) ne peut être négligée car les changements dans les propriétés rhéologiques, y compris le mécanisme de viscosification, sont observées à des concentrations supérieures à  $C^*$ .

Pour  $C < C^*$ , la courbure des lignes de flux autour des coils de polymère individuelles est responsable de l'augmentation de la viscosité, par contre pour  $C > C^*$ , le réseau composé de coils en recouvrement résiste à l'écoulement (Wang, 2015).

La concentration de recouvrement critique ( $C^*$ ) peut être déterminée en utilisant plusieurs méthodes. Dans cette thèse, ce paramètre est déterminé à l'aide de deux méthodes.

#### a- Méthode 1

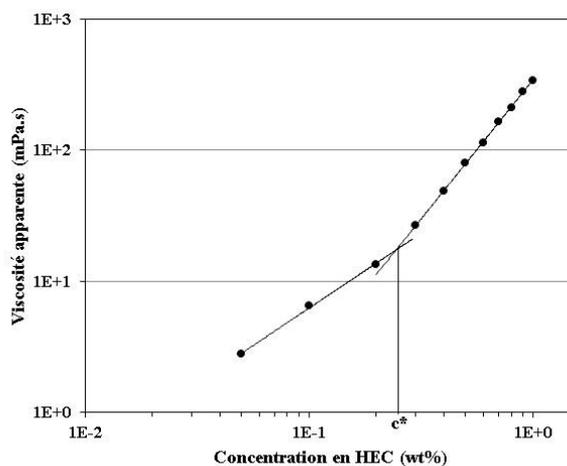
Le résultat de détermination de ( $C^*$ ), en utilisant la viscosité intrinsèque est mentionné dans la figure IV.3.3. Cette figure représente la viscosité spécifique ( $\eta_{sp}$ ) en fonction du paramètre de recouvrement ( $C \cdot [\eta]$ ). Ce résultat indique que la pente de la courbe change à une valeur de  $C \cdot [\eta]$  égale à 3.659, ce qui indique l'existence d'une concentration critique de HEC. En utilisant, la valeur de la viscosité intrinsèque trouvée précédemment, la concentration critique sera ( $C^* \sim 0.243\%$ ), à cette concentration, la transition où le passage du domaine dilué vers le domaine semi-dilué va apparaître.



**Figure IV.3.3** : Viscosité spécifique en fonction du paramètre de recouvrement pour différentes concentrations de HEC.

**a- Méthode 2**

Pour conforter le résultat obtenu par la méthode 1, une autre méthode est utilisée pour déterminer la concentration critique de HEC étudié. Pour cette méthode,  $C^*$  est obtenue en traçant la courbe de la viscosité apparente en fonction de la concentration du polymère à une vitesse de cisaillement spécifique dans une échelle logarithmique (**Fig. IV.3.4**). Comme illustré dans la **figure IV.3.4**, deux régions peuvent être identifiées, ce qui réfère au domaine dilué et semi-dilué. Dans ce cas, la concentration critique est déterminée par l'intersection des deux pentes de la courbe de viscosité apparente en fonction de la concentration en polymère tracée dans une échelle logarithmique. Les résultats obtenus sont mentionnés dans le **tableau IV.3.2**. Il a été constaté que la concentration critique se converge vers la valeur 0.24% pour les différentes vitesses de cisaillement, ce qui confirme le résultat précédent.



**Figure IV.3.4** : Concentration critique de HEC à une vitesse de cisaillement de  $215 \text{ s}^{-1}$ .

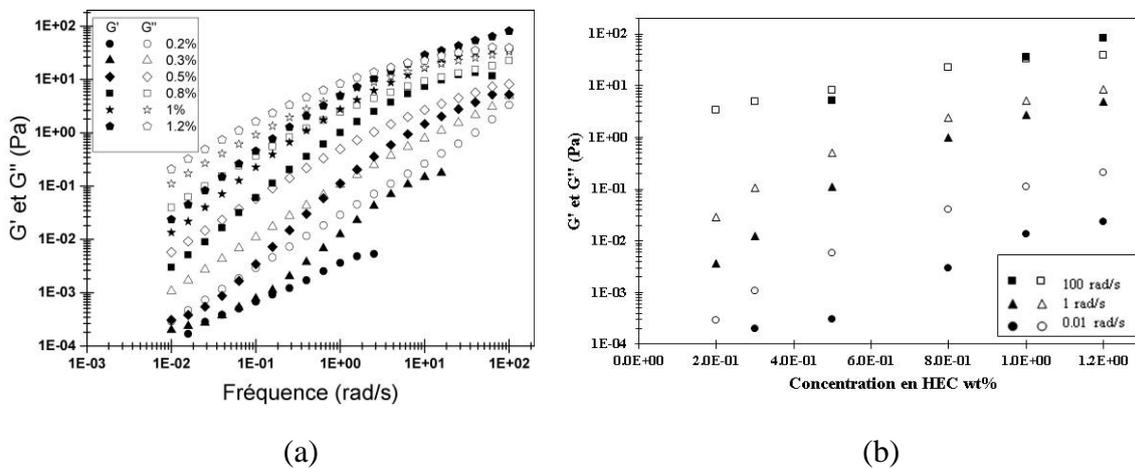
**Tableau IV.3.2** : Concentration critique de HEC à différentes vitesses de cisaillement

Vitesse de cisaillement ( $\text{s}^{-1}$ )	147	215	316	464
Concentration critique (%)	0.237	0.244	0.240	0.235

### IV.3.2 Mesures rhéologiques en régime oscillatoire

Afin d'analyser les propriétés viscoélastiques linéaires de l'échantillon de HEC, des expériences de balayage en fréquence ont été réalisées, qui ont permis d'étudier l'évolution des modules de conservation ( $G'$ ) et de perte ( $G''$ ) en fonction de la fréquence. Il est très intéressant d'examiner l'effet de la concentration de HEC sur les changements de la position relative de  $G'$  et  $G''$ . Cette position relative permet aux ingénieurs de forage de déterminer si le fluide de forage est de nature liquide ou solide. De plus, on peut conclure s'il existe un mécanisme de gélification à partir de cette position. Cette information est essentielle pour que les ingénieurs de boue puissent développer et entretenir les propriétés du fluide de forage conformément aux spécifications requises.

A partir de la **figure IV.3.5a**, on peut noter que  $G''$  reste supérieur à  $G'$  pour les faibles concentrations de HEC (0.2, 0.3, 0.5 et 0.8%). Cela signifie que le comportement visqueux est plus dominant que le comportement élastique. Alors que pour une concentration de 1%, le comportement viscoélastique des solutions de HEC change et devient plus complexe. A partir de cette concentration, deux régimes de fréquence peuvent être distingués. Aux hautes fréquences, le comportement élastique est dominant ( $G' > G''$ ), tandis qu'aux basses fréquences  $G''$  devient supérieur à  $G'$ , indiquant un retour au comportement visqueux des solutions HEC. Ce changement démontre que le réseau de polymères est transitoire plutôt que permanent à des concentrations plus élevées et qu'un réarrangement, et donc un écoulement en masse, peut se produire lorsque la période d'oscillation est longue par rapport à la durée de vie de l'interaction moléculaire (Morris et al., 1980).



**Figure IV.3.5 :** a) Courbes de balayage en fréquence des solutions de HEC pour différentes concentrations, b) Evolution des modules de conservation et de perte en fonction de la concentration de HEC à différentes fréquences.

D'autres polymères présentent un comportement similaire et il est généralement attribué à l'enchevêtrement de coils de polymère (Bueche, 1962 ; Ferry, 1970 ; Graessley, 1974). La transition d'une réponse élastique à une réponse visqueuse passe par un point d'intersection [ $G'(w) = G''(w)$ ], qui correspond à un temps caractéristique. Ce temps caractéristique fait référence à une relaxation, qui devient plus difficile avec l'augmentation de la concentration en raison de la densification des chaînes de polymères (Clasen et Kulicke, 2001). On peut

également remarquer que le point d'intersection [ $G'(w) = G''(w)$ ] se déplace vers les basses fréquences à mesure que la concentration augmente, c'est-à-dire, le point d'intersection est marqué à  $w \sim 6,5$  rad/s et à  $w \sim 10.2$  rad/s, pour une concentration de 1.2 et 1% respectivement).

Sur la base des résultats obtenus, on peut également remarquer que la concentration de 1%, qui correspond aux modifications des propriétés viscoélastiques des solutions de HEC, peut faire référence à une autre concentration critique ( $C^{**}$ ). Cette concentration critique ( $C^{**}$ ) délimite deux états différents de la solution de polymère, régime semi-dilué et régime concentré (Grigorescu et Kuliche, 2000). Pour confirmer que la concentration de 1% représente réellement  $C^{**}$ , les modules  $G'$  et  $G''$  sont représentés en fonction de la concentration de HEC à différentes fréquences, 0.01, 1 et 100 rad/s (Fig. IV.3.5b). Il est clair qu'une transition apparaît lorsque la concentration en HEC se ferme à 1% aux fréquences les plus élevées (100 rad/s), où le module de conservation s'avère supérieur au module de perte. Par conséquent, la concentration critique ( $C^{**}$ ) peut être considérée comme la concentration à laquelle des propriétés viscoélastiques dans les solutions de polymère seront observées.

### IV.4. Modification de la rhéologie des suspensions de bentonite Algérienne par l'ajout de HEC

Dans ce volet, nous nous intéressons à l'étude de l'influence de HEC sur la rhéologie de suspensions de bentonite Algérienne (B–Mos) avec pour objectif de comprendre l'origine des changements du comportement rhéologique induites par l'addition de ce polymère, Cela aidera les ingénieurs de forage à mieux comprendre les interactions argile-polymère et contribuera à une meilleure formulation du fluide. À partir des résultats obtenus précédemment, nous avons choisi la B–Mos comme bentonite performante pour l'utilisation dans les formulations des fluides de forage dont la concentration de base sera 3% à laquelle on rajoutera le polymère HEC de concentrations variables. Cette concentration est très souvent utilisée pour formuler la boue à base d'eau (Park et al., 1960 ; Elward-Berry et Darby, 1997 ; Kumar et al., 2003 ; Mahto et Sharma, 2004; Yan et al., 2007). Les résultats obtenus précédemment ont confirmé que le comportement de cette suspension de bentonite est celui d'un solide élastique. La concentration de HEC ajoutée aux suspensions de bentonite varie de 0.02 à 0.2%. Par conséquent, la teneur maximale en solides n'est que 3.2%. Selon Lyons (2009), cette valeur est généralement classée comme un fluide de forage à faible teneur en solide. Les avantages d'une faible teneur en solide pour les fluides de forage est d'obtenir un taux de pénétration élevé, une stabilité énorme des argiles, une fine couche de filtration et un faible frottement à la surface des équipements de pompage.

Pour ce faire, nous allons caractériser les suspensions de mélange bentonite–HEC en cisaillement simple puis en régime oscillatoire. Pour renforcer les résultats rhéologiques obtenus, une analyse par diffraction des rayons X est effectuée sur le mélange. Ces essais combinés permettent de corrélérer les modifications induites par l'addition du polymère non ionique sur les propriétés rhéologiques et colloïdales des suspensions de bentonite.

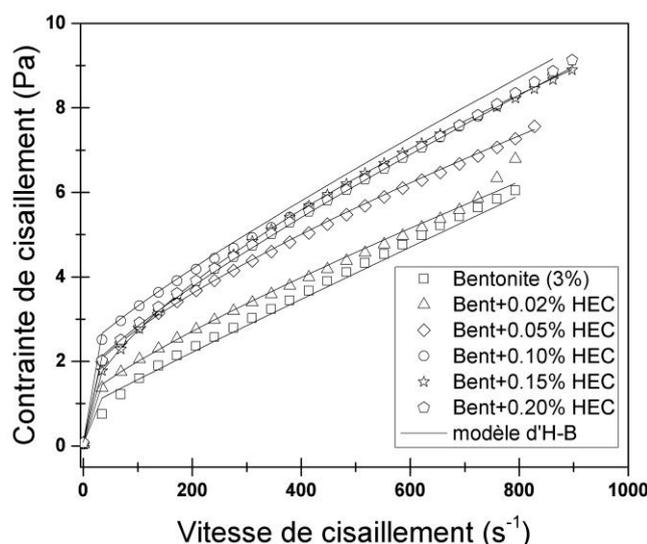
#### IV.4.1 Effet du HEC sur la contrainte seuil et la viscosité apparente des suspensions de bentonite

Les courbes d'écoulement de la suspension de bentonite de base contenant les différentes concentrations de HEC sont illustrées dans la **figure IV.4.1**. À partir de ces courbes, il est clair que la contrainte de cisaillement augmente avec l'augmentation de la concentration de HEC, indiquant qu'une force plus importante est nécessaire pour initier l'écoulement du fluide. Cette augmentation est attribuée au HEC hautement enchevêtré, qui peut lier des particules de bentonite et par conséquent, un réseau tridimensionnel flexible est formé dans tout le système du fluide. La contrainte de cisaillement atteint le maximum à 0.1% de HEC. Au-dessus de cette concentration, une diminution de la contrainte de cisaillement est observée.

Le modèle (H–B), (**Eq. II.1.3**) est utilisé pour ajuster les courbes de contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de cisaillement. Les résultats (**Tab. IV.4.1**) montrent que toutes les suspensions du mélange bentonite–HEC ont un comportement rhéofluidifiant avec une contrainte seuil. La contrainte seuil maximale est atteinte à une concentration en HEC de 0.1%. L'augmentation de la contrainte seuil est due aux enchevêtrements de macromolécules de polymères, qui sont adsorbés sur les surfaces des particules d'argile. Cette adsorption favorise

## Modification de la rhéologie des suspensions de bentonite Algérienne par l'ajout de HEC

la floculation ou la stabilisation stérique du système bentonite–HEC (Tunç et Duman, 2008). Cependant, selon Güngör et Ece (1999), une floculation par pontage est induite à de très faibles concentrations en polymère. Au-delà de 0.1%, on observe une diminution de la contrainte seuil avec l'augmentation de la concentration en HEC, indiquant que 0.1% est une concentration critique. Au-dessus de cette valeur, des phénomènes de mousse et de synérèse apparaissent dans le mélange bentonite–HEC, ce qui provoque la diminution de la contrainte seuil. Ces phénomènes peuvent être attribués à la nature de HEC, qui favorise la formation de la mousse lorsque sa concentration augmente (Hori et al., 1985 ; Veillon, 2001).



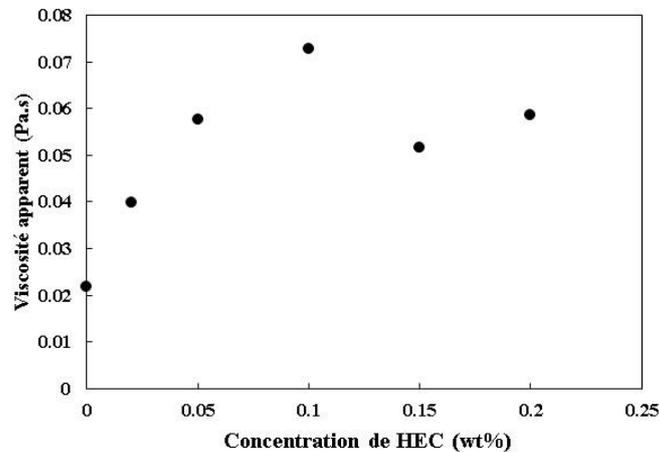
**Figure IV.4.1 :** Courbes d'écoulement du mélange bentonite–HEC ajustées par le modèle (H–B).

Une augmentation significative de l'indice de consistance ( $k$ ) de 0.008 à 0.042 Pa.s<sup>n</sup> est observée en ajoutant 0.05% de HEC à la suspension de bentonite de base, ce qui indique que la résistance du système bentonite–HEC à la force appliquée (contrainte de cisaillement) augmente, mais cette augmentation de l'indice de consistance fluctue avec l'augmentation de la concentration de HEC. Les valeurs de l'indice d'écoulement ( $n$ ) sont inférieures à 1, ce qui confirme le comportement rhéofluidifiant du mélange bentonite–HEC.

**Tableau IV.4.1 :** Paramètres du modèle (H–B) pour les suspensions de mélange bentonite–HEC

Formulation	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$
3% Bentonite + 0.0% HEC	0.892	0.008	0.964	0.976
3% Bentonite + 0.02% HEC	1.080	0.02	0.831	0.970
3% Bentonite + 0.05% HEC	1.510	0.042	0.738	0.971
3% Bentonite + 0.10% HEC	2.238	0.02	0.865	0.938
3% Bentonite + 0.15% HEC	0.792	0.097	0.651	0.996
3% Bentonite + 0.20% HEC	1.620	0.028	0.819	0.979

D'après les résultats (**Fig. IV.4.2**), on peut également constater que l'addition de petites quantités de HEC de 0.02 à 0.1% à la suspension de bentonite de base augmente considérablement la viscosité du mélange, ce qui permet aux fluides de forage de transporter davantage de déblais et par conséquent, cette formulation de fluide de forage est très performante pour le transport des déblais.



**Figure IV.4.2** : Evolution de la viscosité apparente du mélange bentonite–HEC en fonction de la concentration de HEC.

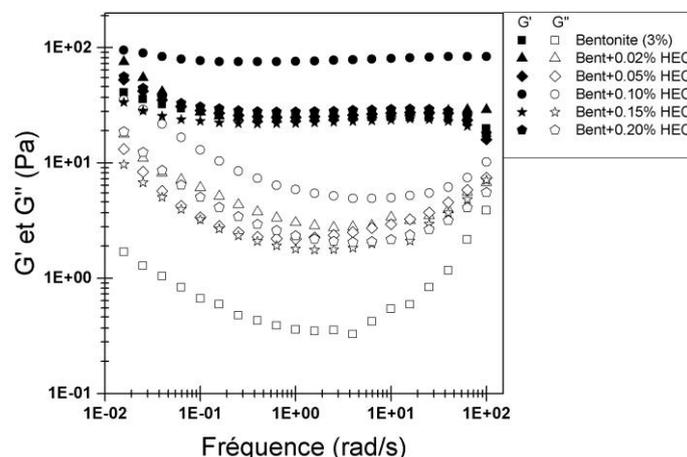
Cette augmentation de la viscosité apparente du mélange peut être due aux liaisons hydrogène construites entre l'hydrogène et l'hydroxyle de l'argile et celles du groupe hydroxyéthyl éther de la molécule HEC, ou encore au nombre d'enchevêtrements causés par les longues chaînes de polymère. En revanche, au-delà d'une concentration en HEC de 0.1%, une diminution de la viscosité apparente est observée. Cette diminution de la viscosité apparente du mélange bentonite–HEC est due à la formation de la mousse dans le mélange et au phénomène de synérèse. Cette mousse altère le comportement rhéologique des fluides de forage selon [Lee et al., \(1989\)](#).

### IV.4.2 Effet du HEC sur le module complexe du cisaillement des suspensions de bentonite

L'évolution des modules de conservation et de perte en fonction de la fréquence est illustrée dans la **figure IV.4.3**. Il est clair pour toutes les formulations que le module de conservation est toujours supérieur au module de perte, ce qui indique que les suspensions se comportent comme un solide élastique. Sur cette figure, on peut également remarquer que l'addition de HEC à la suspension de bentonite de base avec une concentration inférieure à 0.1% augmente l'élasticité du système colloïdal combiné, c'est-à-dire que les modules de conservation et de perte augmentent avec l'augmentation de HEC au-dessous d'une concentration de 0.1%. En général, l'adsorption d'une macromolécule sur une surface colloïdale permet d'interconnecter plusieurs particules. Ces liaisons créées entre les particules augmentent les propriétés viscoélastiques ( $G'$  et  $G''$ ) du système ([M'bodj et al., 2004](#)).

Plusieurs paramètres peuvent influencer sur la floculation des suspensions colloïdales, tels que la dimension et la flexibilité de la molécule du polymère. Ils sont fortement liés à la longueur de la persistance. Du fait des longues chaînes de HEC, la formation de pontage interparticulaire

est réalisée lorsque ce polymère est adsorbé sur la surface des particules d'argile, elles favorisent également les interactions particule-particule, qui augmentent les modules élastique et de perte. Au-dessus d'une concentration en HEC de 0.1%, une diminution des modules de conservation et de perte est observée, ce résultat montre que la rigidité du système est réduite, cette réduction est attribuée à la formation des bulles d'air (mousse) dans le système, qui empêche les particules de s'interconnecter avec les autres.



**Figure IV.4.3** : Evolution du module complexe de cisaillement en fonction de la fréquence du système bentonite-HEC.

À partir des mesures précédentes, il est possible d'estimer les variations du module élastique en fonction de la concentration en HEC (**Tab. IV.4.1**). Ce module élastique est défini par la relation suivante :

$$G_0 = \lim_{w \rightarrow 0} G'(w) \quad (\text{IV.4.1})$$

Où  $w$  est la fréquence angulaire (rad/s) et  $G_0$  est le module élastique (Pa). D'après le **tableau IV.4.2**, il est évident que le module élastique atteint le maximum à une concentration en HEC de 0.1% ; au-dessus de cette valeur, il a tendance à diminuer. En effet, les résultats obtenus en régime dynamique sont en bon accord avec ceux trouvés précédemment en cisaillement simple, qui révèlent que 0.1% est une concentration critique pour le HEC étudié, au-delà de cette valeur, une diminution des propriétés rhéologiques du mélange bentonite-HEC est observée.

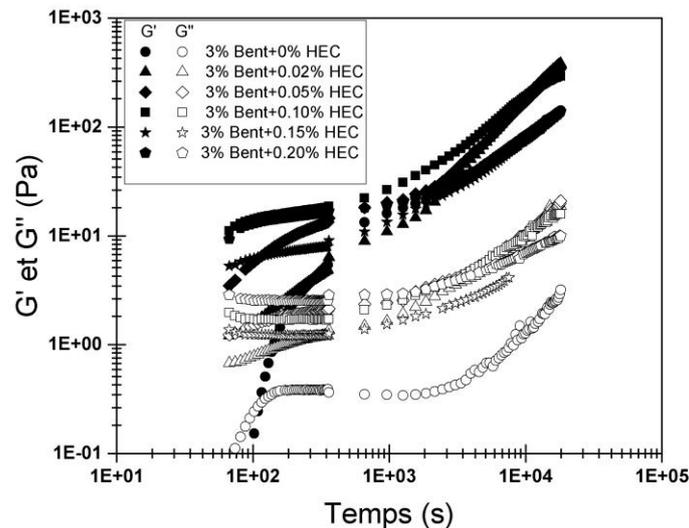
**Tableau IV.4.2** : Evolution du module élastique des suspensions de mélange bentonite-HEC en fonction de la concentration de HEC

Echantillon: (3% bent) + C% (HEC)	0.0	0.02	0.05	0.10	0.15	0.20
Module élastique $G_0$ (Pa)	40.945	75.438	80.456	94.979	33.661	56.076

### IV.4.3 Effet du HEC sur la structure cinétique des suspensions de bentonite

Pour mettre en évidence l'effet de la concentration en HEC sur le mécanisme de gélification du mélange bentonite-HEC, on suit l'évolution des modules de conservation et de perte en fonction du temps pendant 5 h. Pour assurer le domaine de la viscoélasticité linéaire, les mesures sont effectuées à une fréquence et une contrainte égales à 10 rad / s et 0.15 Pa respectivement.

D'une part, les résultats (**Fig. IV.4.4**) montrent que l'ajout de HEC à la suspension de bentonite de base permet d'accélérer le temps de gélification du mélange, c'est-à-dire que, pour la suspension basique de bentonite, il s'est avéré que le temps de gélification est de 109 s (Il est déterminé par croisement des modules,  $G' = G''$  selon [Tung et Dynes, 1982](#)), alors que cette transition de l'état liquide à l'état solide n'existe pas pour tous les mélanges bentonite-HEC, car ces mélanges se comportent comme un gel dès le début. On peut dire que l'HEC accélère la cinétique d'agrégation des particules d'argile. En se basant sur ces résultats, on peut conclure que la disparition du temps de gel en ajoutant du HEC à la suspension de bentonite de base (comportement du gel au début) est due au pontage des particules d'argile, ce phénomène favorise la floculation du système tout en augmentant la concentration en HEC et par conséquent la rigidité du mélange est renforcée. D'une autre part, on observe toujours que les deux modules ( $G'$  et  $G''$ ) augmentent avec l'augmentation de la concentration en HEC au-dessous d'une concentration de 0.1% ; au-delà de cette valeur, ils diminuent à cause des phénomènes de mousse et de synérèse. Si ces modules sont analysés en fonction du temps, nous pouvons constater qu'ils tendent vers l'infini, ce qui indique que la rigidité du système augmente avec le temps.



**Figure IV.4.4** : Cinétique de structuration pour les suspensions de mélange bentonite-HEC.

### IV.4.4 Effet du HEC sur l'espace basal des suspensions de bentonite (essai de DRX)

Les diffractogrammes de la suspension de bentonite de base et des mélanges de bentonite-HEC révèlent que l'espace interlamellaire ( $d_{001} = 12.36 \text{ \AA}$ ) augmente légèrement à 12.72, 13.47, 14.00, 13.96 et 13.67  $\text{\AA}$  lors de l'ajout d'une concentration de HEC de 0.02, 0.05, 0.1, 0.15 et 0.2% à la suspension basique de bentonite, respectivement.

Les résultats obtenus peuvent être expliqués comme suit : l'augmentation de ( $d_{001}$ ) pour des concentrations de HEC ( $\leq 0.1\%$ ) est attribuée à l'intercalation des chaînes de polymères entre les feuillets d'argile, qui est rendue possible par la présence de groupes polaires dans HEC ([Alekseeva et al., 2017](#)). La quantité de polymère intercalée entre les feuillets d'argile est réduite à des concentrations en HEC de 0.15 et 0.2%, ce qui peut être attribué à la création de mousse, c'est-à-dire qu'une quantité de HEC ajouté est transformée en mousse et le reste est intercalé entre les feuillets de bentonite. À ces concentrations (0.15 et 0.2%), la mousse créée

induit un désordre au sein des particules d'argile, ce qui entraîne une réduction de la quantité adsorbée de HEC.

Selon [Mortland \(1970\)](#), les polymères non ioniques peuvent agir sur la surface d'argile par deux types de mécanismes: d'une part, des interactions ion-dipôle peuvent être induites, le cation saturant à la surface de l'argile servant de site d'adsorption pour les molécules polaires non ioniques. D'autre part, les polymères non ioniques peuvent interagir avec la surface de l'argile par liaison hydrogène. Cette dernière se forme soit par interaction directe entre le polymère adsorbé et les oxygènes (ou hydroxyles) de la surface d'argile, soit par l'intermédiaire d'un pont d'eau entre la surface d'argile et le polymère. Dans le cas du polymère HEC, les résultats de DRX ont montré que les molécules de polymère peuvent se fixer à la surface des particules de bentonite ou s'insérer entre les particules de bentonite.

On peut également constater que l'augmentation de l'espace basal n'est pas significative, ceci est dû à la faible quantité de HEC ajoutée et à la nature de la bentonite étudiée, qui contient une teneur en CaO relativement élevée de 3.95%. Les résultats de la littérature publiés par [Greenland \(1963\)](#), ont confirmé que l'accès aux régions interlamellaires est plus limité avec la montmorillonite calcique qu'avec la montmorillonite sodique. Alors que [Ahmed et al., \(1981\)](#), avaient découvert que l'ajout de HEC avec une substitution molaire de 2.0 à la suspension de bentonite augmente considérablement l'espace interlamellaire de 13 à 25 Å, mais ces auteurs ne précisaient pas la nature de la bentonite et la concentration de HEC qui avait été utilisée. Les résultats de DRX obtenus confirment bien ceux de la rhéologie.

En résumé, les changements du comportement rhéologique et de la stabilité du mélange bentonite-HEC sont conduites par la nature structurale de ce polymère et ses mécanismes d'interaction avec les particules d'argile.

Dans ce cas, il convient mieux d'utiliser une concentration en HEC égale ou inférieure à 0.1% pour assurer de bonnes propriétés rhéologiques et une forte stabilité du mélange bentonite-HEC. Par conséquent, les fonctions principales du fluide de forage, telles que le transport des déblais de forage depuis le trou, la prévention de l'endommagement de la formation, la suspension des déblais et le maintien des parois du trou, sont assurées.

### IV.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié le comportement rhéologique des suspensions de bentonite Algériennes (B-Mos et B-Mag), des solutions aqueuses de HEC et des suspensions de mélange bentonite-HEC. Dans un premier temps, les résultats de cette étude ont montré que l'échantillon de suspensions de B-Mos est celui qui convient le mieux aux applications de fluides de forage à base d'eau par rapport à l'échantillon de suspensions de B-Mag, car il présente des propriétés rhéologiques très intéressantes (viscosité, contrainte seuil et modules viscoélastiques), ce qui permet de dire que les bentonites naturelles sodiques sont plus performantes que les bentonites calciques activées. Dans un second temps, il a été constaté que les solutions aqueuses de HEC présentent un comportement rhéofluidifiant avec une bonne prédiction des mesures expérimentales par le modèle de Cross.

L'étude de l'effet de HEC d'un poids moléculaire de  $9.5 \times 10^5$  g/mol sur le comportement rhéologique des suspensions de bentonite Algériennes a révélé que l'addition de HEC à la suspension de bentonite de base augmente la contrainte seuil, la viscosité apparente et le module d'élasticité. Ces propriétés atteignent le maximum à une concentration critique en HEC proche de 0.1%. Au-delà de cette concentration, une diminution de ces propriétés rhéologiques a été observée. L'amélioration des propriétés rhéologiques du mélange bentonite-HEC est due aux liaisons hydrogènes, qui ont été construites entre l'hydrogène et l'hydroxyle de l'argile et ceux du groupe hydroxyéthyl éther des molécules de HEC. Alors que la diminution au-delà d'une concentration en HEC proche de 0.1% est due à la formation de la mousse dans le mélange et à un phénomène de synergie. L'indice de consistance déterminé par le modèle (H-B) augmente avec l'augmentation de la concentration en HEC, indiquant que la résistance du système bentonite-HEC à la force appliquée (contrainte de cisaillement) a augmenté, contrairement à l'indice d'écoulement, qui diminue. L'analyse par diffraction des rayons X a révélé que le polymère HEC peut s'insérer dans l'espace interfoliaire de bentonite, mais cette intercalation est limitée à plus de 0.1% de HEC. Par conséquent, l'ajout de HEC à la suspension de bentonite en dessous de la concentration critique pourrait améliorer de manière adéquate les propriétés rhéologiques des fluides de forage.

Sur la base de ces résultats, une amélioration de cette formulation de fluide de forage sera retenue dans le prochain chapitre en ajoutant un autre polymère, à savoir le polyéthylène glycol (PEG), au mélange bentonite-HEC. Ce polymère empêchera les phénomènes de mousse et de synergie en convertissant le système bentonite-HEC en mélanges compatibles lors de l'utilisation d'une concentration en HEC supérieure à 0.1%.

### Références bibliographiques

- Abu-Jdayil, B. Rheology of sodium and calcium bentonite – water dispersions: Effect of electrolytes and aging time. *Int. J. Miner. Process.* 98: 208–213, (2011).
- Agha, M.A., Ferrell, R.E., Hart, G.F., et al., Physical properties and Na-activation of Egyptian bentonitic clays for appraisal of industrial applications. *Appl. Clay Sci.* 131: 74–83, (2016).
- Ahmed, H., Glass, J.E., McCarthy, G.J. Adsorption of Water-Soluble Polymers on High Surface Area Clays. SPE paper 10101, presented at the 56th Annual Fall Technical Conference and Exhibition of the Society of Petroleum Engineers of AIME, held in San Antonio, Texas, October 5–7, (1981).
- Alderman, N.J., Gavignet, A., Guillot, D., Maitland, G.C. High-temperature, High-pressure rheology of water-based muds. SPE 18035, 63 rd ANN. Tech. Conf. Houston, p. 187–195, (1988).
- Alekseeva, O.V., Rodionova, A.N., Bagrovskaya, N.A., Agafonov, A.V., Noskov, A.V. Hydroxyethyl cellulose/bentonite/magnetite hybrid materials: structure, physicochemical properties, and antifungal activity. *Cellulose.* 24: 1825–1836, (2017).
- Ali, L., and Barrufet, M.A. Using centrifuge data to investigate the effects of polymer treatment on relative permeability. *J. Pet. Sci. Eng.* 29(1): 1–16, (2001).

- Anyanwu, C., and Mustapha Unubi, M. Experimental Evaluation of Particle Sizing in Drilling Fluid to Minimize Filtrate Losses and Formation Damage. SPE-184303-MS, presented at SPE Nigeria international conference and exhibition held in Lagos, (2016).
- Baba Hamed, S., and Belhadri, M. Rheological Properties of Biopolymers Drilling Fluids. *J. Pet. Sci. Eng.* 67: 84–90, (2009).
- Benna, M., Kbir-Arigoib Magnin, A., Bergaya, F. Effect of pH on rheological properties of purified sodium bentonite suspensions. *J. Colloid Interface Sci.* 218: 442–455, (1999).
- Berthier, P., Flaud, P. Rheological behavior of concentrated silica-bentonite dispersion: predictive modeling and aspects. *Books of rheology. Vol XII (4):* 119–127, (1995).
- Brown, W., Henley, D., Öhman, J. Studies on cellulose derivatives. Part II. The influence of solvent and temperature on the configuration and hydrodynamic behaviour of Hydroxyethyl cellulose in dilute solution. *Makromol. Chem.* 64: 49–67, (1963).
- Bueche, F. *Physical Properties of Polymers.* Interscience, New York, (1962) .
- Carico, R.D., and Bagshaw, F.R. Description and use of polymers used in drilling, work-overs and completions. Paper SPE 7747 presented at the SPE production technology symposium, Hobbs, NM, (1978).
- Cartalos, U., Baylocq, P., Lecourtier, J., Piau, J.M. Rheological characterization and structural modeling of the systems clay-polymers, application to the drilling fluids. *Review of the French Petroleum Institute.* 52(3): 285–297, (1997).
- Castelain, C., Doublie, J.L., Lefebvre, J. A study of the viscosity of cellulose derivatives in aqueous solutions. *Carbohydrate polymers.* 7: 1–16, (1987).
- Choo, K.Y., Bai, K. Effects of bentonite concentration and solution pH on the rheological properties and long-term stabilities of bentonite suspensions. *Appl. Clay Sci.* 108: 182–190, (2015).
- Clasen, C., and Kulicke, W.-M. Determination of viscoelastic and rheo-optical material function of water-soluble cellulose derivatives. *Prog. Polym. Sci.* 26: 1839–1919, (2001).
- Cole, R.C., Ali, S.A., Foley, K.A. A new environmentally safe crosslinked polymer for fluid-loss control. Paper SPE 29525 presented at the SPE production operations symposium, Oklahoma City, (1995).
- Coussot, P. *Mud flow Rheology and Dynamics.* Balkema IAHR AIRH 255 pp, (1997).
- Coussot, P., Nguyen, Q.D., Huynh, H.T., Bonn, D. Viscosity bifurcation in thixotropic, yielding fluids. *J. Rheol.* 46: 573–589, (2002).
- Coussot, P. The Mechanics of Yield Stress Fluids: Similarities, Specificities and open Questions. 16th Australasian Fluid Mech. Conf., Crown Plaza, Gold Coast, Australia, 54–58, (2007).
- Cross, M.M. Rheology of non-Newtonian fluids: A new flow equation for pseudoplastic systems. *Journal of colloid science.* 20: 417–437, (1965).
- Elward-Berry, J., and Darby, J.B. Rheologically stable, nontoxic, high temperature, water based drilling fluid. *SPE Drill. Complet.* 158–162, (1997).
- Fan, J., Zhu, H., Li, R., Chen, N. Montmorillonite Modified by Cationic and Nonionic Surfactants as High-Performance Fluid-Loss-Control Additive in Oil-based Drilling Fluids. *J. Dispers. Sci. Technol.* 36: 569–576, (2015).
- Ferry, J.D. *Viscoelastic Properties of Polymers.* Wiley, New York, (1970).

- Galindo-Rosales, F.J., Rubio-Hernandez, F.J. Structural breakdown and build-up in bentonite dispersions. *Appl. Clay Sci.* 33: 109–115, (2006).
- Gareche, M., Zeraibi, N., Allal, A., Amoura, M. The influence of low molecular weight polymer on the rheological behavior of bentonite suspensions. *Pet. Sci. Technol.* 30: 1981–1989, (2012).
- Graessley, W.W. *The Entanglement Concept in Polymer Rheology. Advances in Polymer Science*, 16, Springer-Verlag, Berlin, (1974).
- Graessley, W.W. Polymer chain dimensions and the dependence of viscoelastic properties on concentration, molecular weight and solvent power. *Polymer.* 21: 258–262, (1980).
- Grigorescu, G., and Kuliche W.-M. Prediction of viscoelastic properties and shear stability of polymers in solution. *Advances in polymer science.* 152: 1–40, (2000).
- Greenland, D.J. Adsorption of polyvinyl alcohols by montmorillonite. *J. colloid sci.* 18: 647–664, (1963).
- Güngör, N., and Ece, O.I., Effect of the adsorption of non-ionic polymer polyvinyl/pyrrolidone on the rheological properties of Na-activated bentonite. *Mater. Lett.* 39: 1–5, (1999).
- Güven, N. Molecular aspects of clay-water interactions. C.M.S workshop lectures, volume 4 clay water interface and its rheological implication. 2–79, (1992).
- Harding, S.E. the intrinsic viscosity of biological macromolecules. Progress in measurement, interpretation and application to structure in dilute solution. *Prog. Biophys. Molec. Biol.* 68(2/3): 207–262, (1997).
- Heinz, A., Stengele, R.H., Plötze, M. Rheological properties of bentonite suspensions modified with polymers. *Annual Transactions of the Nordic Rheology Society.* 12: 221–226, (2004).
- Hori, Y., Nishimura, Y., Takahashi, F. Fluid composition for drilling. US patent, 4519923, (1985).
- Huggins, M.L. The viscosity of dilute solutions of long-chain molecules. IV. Dependence on concentration. *J. Am. Chem. Soc.* 64(11): 2716–2718, (1942).
- Jung, Y., Son, Y.H., Lee, J.K., Phuoc, T.X., Soong, Y., Chyu, M.K. Rheological Behavior of Clay– Nanoparticle Hybrid-Added Bentonite Suspensions: Specific Role of Hybrid Additives on the Gelation of Clay-based Fluids. *ACS Appl. Mater. Interfaces.* 3: 3515–3522, (2011).
- Kaldasch, J., Laven, J., Stein, H.N. Shear thickening as a consequence of an acoustic resonance in shear colloidal crystals. *J. Rheol.* 42 (6): 1285–1301, (1998).
- Kelessidis, V.C., Maglione, R. Modeling rheological behavior of Bentonite suspensions as Casson and Robertson–Stiff fluids using Newtonian and true shear rates in Couette viscometry. *Powder Technol.* 168: 134–147, (2006).
- Kelessidis, V., Maglione, R. Yield stress of water-bentonite dispersions. *Colloids Surfaces A: Physicochem Eng. Aspects.* 31: 217–226, (2008).
- Kelessidis, V.C., Poulakakis, E., Chatzistamou, V. Use of Carbopol 980 and Carboxymethyl Cellulose Polymers as Rheology Modifiers of Sodium-Bentonite Water Dispersions. *Appl. Clay Sci.* 54: 63–69, (2011).
- Khalil, M., and Mohamed Jan, B. Viscoplastic Modeling of a Novel Lightweight Biopolymer Drilling Fluid for Underbalanced Drilling. *Ind. Eng. Chem. Res.* 51: 4056–4068, (2012).
- Kok, M.V. Rheological and thermal analysis of bentonites for water base drilling fluids. *Energy Sources A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects.* 26 (2): 145–151, (2004).

- Kosynkin, D.V., Ceriotti, G., Wilson, K.C., Lomeda, J.R., Scorsone, J.T., Patel, A.D., Friedheim, J.E., Tour, J.M. Graphene Oxide as a High-Performance Fluid-Loss-Control Additive in Water-based Drilling Fluids. *ACS Appl. Mater. Interfaces*. 4: 222–227, (2011).
- Kraemer, E.O. Molecular weights of celluloses and cellulose derivatives. *Ind. Eng. Chem.* 30(10): 1200–1203, (1938).
- Kulicke, W.-M., and Kniewske, R. The shear viscosity dependence on concentration, molecular weight, and shear rate of polystyrene solutions. *Rheol. Acta*. 23: 75–83, (1984).
- Kumar, A.S., Mahto, V., Sharma, V.P. Behavior of organic polymers on the rheological properties of Indian bentonite-water based drilling fluid system and its effect on formation damage. *Indian J. Chem. Technol.* 10: 525–530, (2003).
- Laribi, S., Fleureau, J.M., Grossiord, J.L., Kbir-Arighuib, N. Comparative yield stress determination for pure and interstratified smectite clays. *Rheol. Acta*. 44: 262–269, (2005).
- Lee, P.M., David, K.J., et al. Defoamer composition for use in water based drilling fluids. European patent application, 0339762 A2, (1989).
- Levenberg, K. A Method for the Solution of Certain Non-Linear Problems in Least Squares. *The Quarterly of Applied Mathematics*. 2: 164–168, (1944).
- Li, M., Wu, Q., Song, K., Qing, Y., Wu, Y. Cellulose nanoparticles as modifiers for rheology and fluid loss in bentonite water-based fluids. *ACS Appl. Mater. Interfaces*. 7: 5006–5016, (2015).
- Lyons, W. *Working Guide to Drilling Equipment and Operations*. Gulf Professional Publishing: Houston, TX, (2009).
- Mahto, V., and Sharma, V.P. Rheological study of a water based oil well drilling fluid. *J. Petrol. Sci. Eng.* 45: 123–128, (2004).
- M'bodj, O., Kbir Arighuib, N., Trabelsi Ayadi, M., Magnin, A. Plastic and elastic properties of the systems interstratified clay–water–electrolyte–xanthan. *J. Colloid Inter Sci.* 273: 675–684, (2004).
- Mewis, J. Thixotropy—a general review. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* (6) 1: 1–20, (1979).
- Morris, E.R., Rees, D.A., Welsh, E.J. Conformation and dynamic interactions in hyaluronate solutions. *J. Mot Biol.* 138: 383–400, (1980).
- Mortland, M.M. Clay-Organic Complexes and Interactions. *Adv. Agronomy*. 22: 75–117, (1970).
- Okon, A.N., Udoh, F.D., Bassey, P.G. Evaluation of Rice Husk as Fluid Loss Control Additive in Water-based Drilling Mud. SPE Paper No. 172379, Nigeria Annual International Conference and Exhibition, Lagos, Nigeria, London, August 5–7, (2014).
- Oppong, F.K., and de Bruyn, J.R. Microrheology and dynamics of an associative polymer. *Eur. Phys. J. E*. 31: 25–35, (2010).
- Ovarlez, G., Coussot, P. The physical age of soft-jammed systems. *Phys. Rev. E*. 76(1): 11406, (2007).
- Park, A., Scott, Jr. P.P., Lummus, J.L. Maintaining low solids drilling fluids. *Oil Gas J.* 81–84, (1960).
- Pignon, F., Magnin, A., Piau, J.M. Processus de désagrégation dans les gels d'argile thixotropes sous écoulement de cisaillement. *Les Cahiers de la Rhéologie XV* (12) : 294 – 300, (1996).
- Rodriguez, F. *Principles of Polymer Systems*. Chemical Engineering Series, McGraw-Hill, New York, (1983).

- Russel, W.B. Review of the Role of Colloidal Forces in the Rheology of Suspensions. *J. Rheol.* 24: 287–317, (1980).
- Simha, R., and Zakin, J.L. Compression of Flexible Chain Molecules in Solution. *J. Chem. Phys* 33: 1791, (1960).
- Song, K., Wu, Q., Li, M., Ren, S., Dong, L., Zhang, X., Lei, T., Kojima, Y. Water-based bentonite drilling fluids modified by novel biopolymer for minimizing fluid loss and formation damage. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects.* 507: 58–66, (2016).
- Sosio, R., Crosta, G.B. Rheology of concentrated granular suspensions and possible implication for debris flow modeling. *Water Resour. Res.* 45, W03412, (2009).
- Temraz, M.G., and Hassanien, I. Mineralogy and rheological properties of some Egyptian bentonite for drilling fluids. *J. Nat. Gas Sci. Eng.* 31: 791–799, (2016).
- Tiner, R. Polymers and their use in the oilfield. Proc., Southwestern Petroleum Short Course, Lubbock, TX, (1976).
- Tsenoglou, C. Scaling concepts in suspension rheology. *J. Rheol.* 34: 15–24, (1990).
- Tunç, S., and Duman, O. The effect of different molecular weight of poly(ethylene glycol) on the electrokinetic and rheological properties of Na-bentonite suspensions. *Colloids & Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects.* 317: 93–99, (2008).
- Tung, C.Y.M., Dynes, P.J. Relationship between Viscoelastic Systems. *J. Appl. Polm. Sci.* 27: 569–574, (1982).
- Vali, H., Bachmann, L. Ultrastructure and flow behavior of colloidal smectite dispersions. *J. Colloid Interface Sci.* 126: 278–291, (1988).
- Veillon, D. La liaison couche-trou. Editions technip. Ecole du pétrole et des moteurs, IFP school. 27, rue Ginoux 75737 Paris cedex 15, France, (2001).
- Wan, T., Yao, J., Zishun, S., Li, W., Juan, W. Solution and Drilling Fluid Properties of Water Soluble AM-AA-SSS Copolymers by Inverse Microemulsion. *J. Pet. Sci. Eng.* 78: 334–337, (2011).
- Wang, W., Li, F., Yu, J., Navard, P., Budtova, T. Influence of substitution on the rheological properties and gelation of hydroxyethyl cellulose solution in NaOH–water solvent. *Carbohydrate polymers.* 124: 85–89, (2015).
- Weiss, A., Frank, R. Über den Bau der Gerüste in thixotropen Gelen. *Z. Naturforsch.* 16b: 141–142, (1961).
- William, J.K.M., Ponmani, S., Samuel, R., Nagarajan, R., Sangwai, J.S. Effect of CuO and ZnO Nano Fluids in Xanthan Gum on Thermal, Electrical and High Pressure Rheology of Water-based Drilling Fluids. *J. Pet. Sci. Eng.* 117: 15–27, (2014).
- Yan, L., Wang, C., Xu, B., Sun, J., Yue, W., Yang, Z. Preparation of a Novel Amphiphilic Comb-like Terpolymer as Viscosifying Additive in Low-Solid Drilling Fluid. *Mater. Lett.* 105: 232–235, (2013).
- Yan, Y.K., Liang, L.P., Feng, W.Q. Rheological study on natural heteropolysaccharide based drilling fluid. *J. Cent. South Univ. Technol.* 0188–04: 188–191, (2007).

## Chapitre V

# Estimation et amélioration des paramètres rhéologiques d’un fluide de forage écologique en utilisant des méthodes d’optimisation

### V.1. Introduction

Les limitations des boues de forage bentonitiques telles que, l’endommagement de la formation, la diminution de la vitesse d’avancement de l’opération de forage et le coincement des équipements de forage, nécessitent l’utilisation de divers additifs pour assurer le bon fonctionnement de ce fluide. Inconvenablement, l’utilisation des additifs peut entraîner encore des problèmes de forage. Cela est dû d’une part, à l’incompatibilité des additifs avec les autres composants de la boue et d’autre part à un effet direct sur les propriétés de la boue. Comme on a vu dans le chapitre précédent, l’addition de HEC à la boue bentonitique Algérienne crée la mousse en-dessus d’une concentration de 1%, cet effet peut être atténué par l’ajout de PEG de poids moléculaire intermédiaire au système (Glass, 1985). Ce polymère est efficace pour prévenir la mousse et la synérèse s’il est introduit dans le système bentonite–HEC (Glass, 1985). Une étude de la littérature montre que le nouveau système (bentonite–HEC–PEG) est performant, ce qui se traduit par une vitesse de forage élevée, une viscosité élevée, une faible perte de fluide et de telles propriétés dans un environnement de puits salin (Glass, 1985).

Dans l’industrie pétrolière, l’étude expérimentale combinée à la modélisation du système permet d’obtenir une caractérisation rhéologique presque optimale et une meilleure compréhension de la performance globale du fluide. Les spécialistes des fluides de forage ont étudié et généré divers modèles rhéologiques pour décrire le comportement rhéologique du fluide de forage, tels que le modèle de Bingham (Briscoe et al., 1994), le modèle en loi de puissance (Walker et Korry, 1974), le modèle de Herschel-Bulkley. (Alderman et al., 1988; Kenny et al., 1994), les modèles de Casson et Robertson – Stiff (Kelessidis et Maglione, 2006). Parmi ces différents modèles, celui de (H–B) est le mieux adapté et le plus utilisé dans la prédiction du comportement rhéologique des fluides de forage (Fordham et al., 1991; Hemphil et al., 1993; Maglione et Ferrario, 1996; Maglione et Romagnoli, 1998; Kok et al., 2000). Cependant, en raison de la complexité de l’obtention des paramètres du modèle, il n’était pas très utilisé dans le passé (Nguyen et Boger, 1983; Hemphil et al., 1993).

Les paramètres du modèle (H–B) sont généralement estimés à l’aide de la régression non linéaire (NL). Cette dernière donne généralement des paramètres optimaux avec un bon coefficient de corrélation, mais dans certains cas, il en résulte des valeurs négatives de la contrainte seuil qui n’ont pas un sens physique (Rooki et al., 2012). Dans ce cas, l’utilisation de l’algorithme génétique (AG) pour optimiser les paramètres du modèle rhéologique est nécessaire. L’AG fournit de meilleures solutions que la régression NL et il en résulte toujours des solutions optimales et physiquement acceptables.

Dans ce chapitre, nous allons optimiser les paramètres rhéologiques du modèle (H–B) d’un fluide de forage écologique formulé avec une bentonite Algérienne (B–Mos) et deux polymères

hydrosolubles, à connaître HEC avec un poids moléculaire de  $9.5 \times 10^5$  g/mol et PEG avec un poids moléculaire de 6000 g/mol. Une AG simple est utilisée pour estimer les paramètres rhéologiques du fluide et les résultats sont comparés avec ceux obtenus en utilisant la régression NL. En outre, les valeurs estimées de la contrainte seuil dans le cas des fluides de forage formulés avec du chlorure de sodium (NaCl) sont comparées à celles obtenues à partir des essais oscillatoires. Les essais en écoulement et dynamique ont été effectués avec différentes concentrations de HEC, différentes températures, différentes valeurs du pH et différentes concentrations du NaCl. Ces essais ont été choisis afin d’examiner la performance du fluide de forage écologique (bentonite–HEC–PEG) et pour estimer sa contrainte seuil à partir des essais en écoulement et dynamiques.

## V.2. Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H–B) en utilisant l’AG

### V.2.1 Description de la technique d’AG

L’AG est une approche utilisée dans différentes industries dans le but d’optimiser les problèmes. Elle a été développée pour la première fois par [Holland \(1975\)](#) pour la conception et la performance des systèmes adaptatifs robustes ([Michalewicz, 1996](#)), elle utilise le principe de la génétique naturelle et de la sélection naturelle comme un mécanisme de travail. L’AG peut résoudre des fonctions hautement non linéaires en déterminant des solutions optimales, en se basant sur la probabilité, inversement aux méthodes conventionnelles, y compris la régression NL, qui utilise des règles de transition déterministes ([Goldberg, 1989](#); [Man et al., 1996](#)).

Comme le montre la **figure V.2.1**, l’AG commence par l’initialisation d’une population de solutions, suivie par les étapes de sélection et de reproduction (crossover et mutation). Tout d’abord, une population initiale représentant de nombreuses solutions individuelles a été générée. Les solutions individuelles sont sélectionnées de manière stochastique et en fonction de leurs valeurs de fitness, qui sont calculées à partir de la fonction objective du problème donné et supportent les opérateurs génétiques (crossover et mutation) pour produire une nouvelle génération. La somme des erreurs aux carrées est utilisée comme fonction objective et l’inverse de cette fonction objective correspond au fitness. Deux nouveaux individus sont produits par l’opérateur crossover. Dans ce processus, les individus sont organisés au hasard en couples et coupés et divisés au hasard. Afin de ne pas rester bloqué dans les minimums locaux, le processus de mutation injecte périodiquement de nouvelles informations génétiques. Au cours de ce processus, les vraies solutions sont sélectionnées et les solutions les moins réalisables sont rejetées. Sur plusieurs générations, une évolution artificielle de la population est attendue et la solution quasi optimale sera touchée. D’après [Goldberg \(1989\)](#); [Man et al., \(1996\)](#) et [Michalewicz \(1996\)](#), le processus de génération doit être répété jusqu’à ce qu’une convergence soit obtenue ou qu’un nombre fixe de générations soit atteint.

Dans ce chapitre, une optimisation globale est appliquée à l’aide de l’AG toolbox, à une population qui se dérive de données rhéométriques (contrainte de cisaillement-taux de cisaillement) pour diverses formulations de fluides de forage dans un logiciel Matlab multi purpose afin d’obtenir les paramètres rhéologiques du modèle (H–B). Les données du taux de cisaillement et de contrainte de cisaillement générées expérimentalement, servent comme

## Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H-B) en utilisant l'AG

entrée à l'algorithme définie pour déterminer les trois paramètres de (H-B), ( $\tau_c$ ,  $k$  et  $n$ ) avec une taille de population de 20 et la méthode de détermination de la population suivante est sélectionnée dans le toolbox par défaut, méthode de crossover. Dans le toolbox, les paramètres de l'AG sont modifiés automatiquement jusqu'à obtenir des résultats optimaux. Pour un bon ajustement utilisant la modélisation par l'AG, la somme des erreurs aux carrées (SSE) est utilisée comme fonction objective, elle est définie comme suit :

$$SSE = \sum_1^N (\tau_i - \hat{\tau}_i)^2 \quad (\text{V.2.1})$$

Cette fonction objective est soumise aux conditions,  $\tau_c$ ,  $k$  et  $n \geq 0$ , avec ( $\tau_i$ ) et ( $\hat{\tau}_i$ ) indiquent la contrainte de cisaillement mesurée et prévue respectivement et (N) est le nombre de données. En plus de la SSE, le coefficient de corrélation ( $R^2$ ) est également utilisé comme autre indicateur statistique. Il est défini par :

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_1^N (\tau_i - \hat{\tau}_i)^2}{\sum_1^N (\hat{\tau}_i - \bar{\tau}_a)^2} \quad (\text{V.2.2})$$

avec ( $\bar{\tau}_a$ ) est la contrainte de cisaillement moyenne prédite pour chaque formulation.

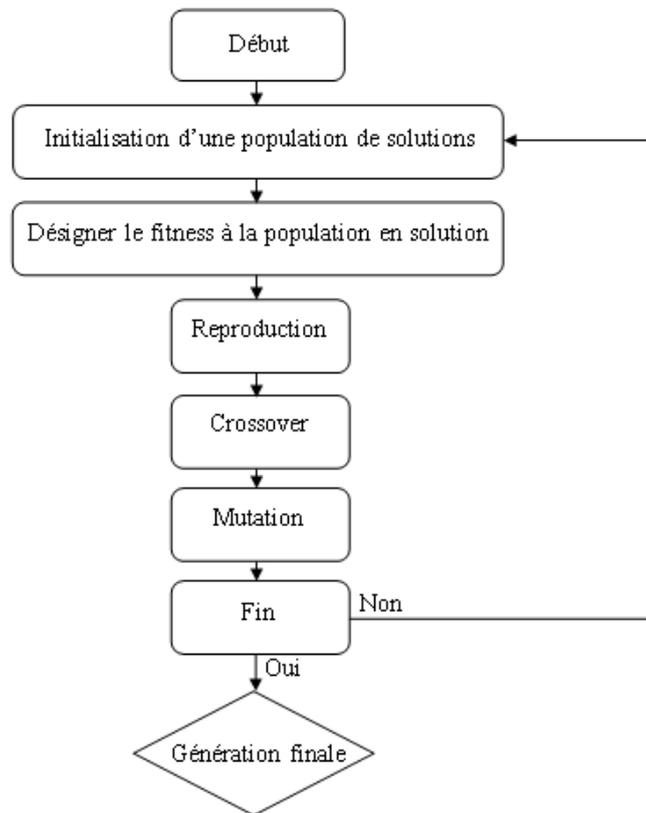


Figure V.2.1 : Organigramme de l'algorithme génétique.

### V.2.2 Analyse des données

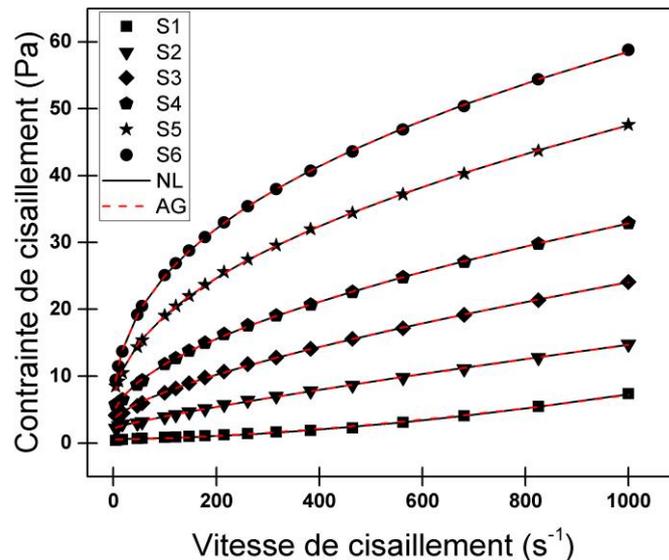
La technique de l'AG est utilisée pour optimiser les paramètres rhéologiques du modèle (H-B) et les résultats sont comparés avec ceux obtenus en utilisant la technique de régression NL. Il y

aura quatre types de données à analyser selon les formulations des fluides de forage. Le premier groupe représente les fluides de forage formulés avec différentes concentrations de HEC, le deuxième groupe représente les fluides de forage testés avec différentes températures, le troisième représente les fluides de forage ayant différentes valeurs du pH et le dernier groupe représente les fluides de forage avec différentes concentrations du NaCl. Pour les trois premiers groupes de données à analyser, la régression NL donne des contraintes seuils positives, par conséquent, l'AG est utilisée dans ce cas pour tester la validité de cette technique, par contre pour le quatrième groupe, la régression NL donne des contraintes seuils négatives, donc l'AG dans ce cas sert à estimer des solutions optimales et à se rapprocher de la réalité. La comparaison entre les résultats obtenus par les deux techniques est faite en calculant la somme des erreurs aux carrées (SSE) et le coefficient de corrélation ( $R^2$ ). Pour valider les résultats, les contraintes seuils estimées par l'AG pour le quatrième groupe ont été comparées avec celles obtenues à partir des essais oscillatoires.

### V.2.3 Résultats et discussion

#### V.2.3.1 Effet de la concentration en HEC sur les paramètres rhéologiques de (H-B) estimés en utilisant l'AG

Les échantillons utilisés dans cette section ont été formulés avec différentes concentrations en HEC comprises entre 0.2 et 0.6 wt%. La **figure V.2.2** montre les courbes d'écoulement de ces formulations ajustées par le modèle de (H-B) en utilisant l'AG et la régression NL. On peut noter que l'addition du HEC à la suspension de base (3 % Bentonite + 0.2 % PEG) permet d'augmenter la contrainte de cisaillement. Cette augmentation est attribuée au HEC hautement enchevêtré, qui peut lier des particules de bentonite et par conséquent, un réseau tridimensionnel flexible est formé dans tout le système du fluide.



**Figure V.2.2 :** Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H-B) obtenues à l'aide de la méthode de régression NL et l'AG pour les formulations S1-S6.

## Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H–B) en utilisant l’AG

Les paramètres rhéologiques du modèle (H–B) déterminés en utilisant l’AG et la régression NL sont mentionnées dans le **tableau V.2.1**. Les deux techniques donnent le même ordre de grandeur des paramètres.

**Tableau V.2.1** : Paramètres rhéologiques de (H–B) dérivés à partir des techniques de l’AG et NL pour les formulations S1–S6

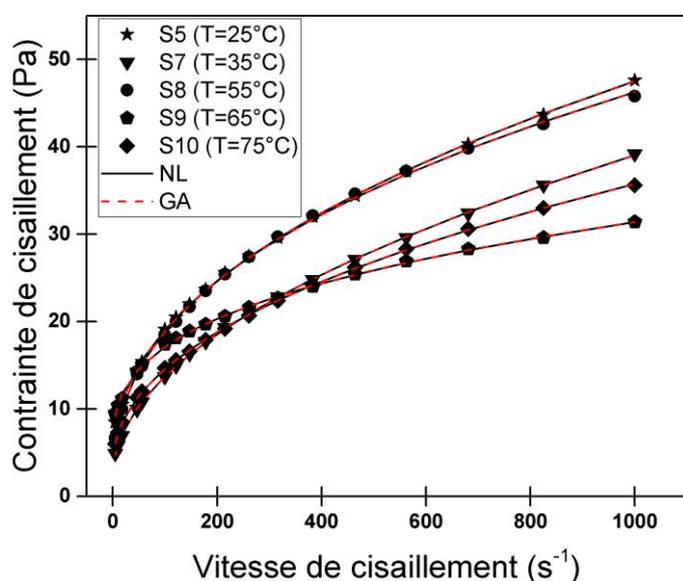
Echantillon et méthodes	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	R <sup>2</sup>	SSE (Pa <sup>2</sup> )
S1 (3% Bent+0.2%PEG)					
NL	0.6248	5.30E-05	1.6997	0.9966	0.2194
AG	0.5542	1.27E-04	1.5723	0.9955	2.85E-01
S2 (3% Bent+0.2%PEG+0.2%HEC)					
NL	2.2022	0.0369	0.8433	0.9989	0.2477
AG	2.2022	0.0369	0.8433	0.9989	2.47E-01
S3 (3% Bent+0.2%PEG+0.3%HEC)					
NL	3.4127	0.1767	0.6892	0.9993	0.4458
AG	3.4129	0.1767	0.6892	0.9993	0.4458
S4 (3% Bent+0.2%PEG+0.4%HEC)					
NL	3.8945	0.5898	0.5636	0.9994	0.6478
AG	3.8941	0.5899	0.5636	0.9994	0.6475
S5 (3% Bent+0.2%PEG+0.5%HEC)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
AG	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S6 (3% Bent+0.2%PEG+0.6%HEC)					
NL	2.7606	3.5431	0.3990	0.9999	0.3323
AG	2.7608	3.5431	0.3990	0.9999	0.3308

D’après ces résultats, il est évident que la contrainte seuil ( $\tau_c$ ) et l’indice de consistance ( $k$ ) augmentent avec l’augmentation de la concentration en HEC, sauf pour une concentration de 0.6 % où une diminution de la contrainte seuil est observée. Contrairement à l’indice d’écoulement ( $n$ ) qui diminue. L’augmentation de ( $\tau_c$ ) et ( $k$ ) est due à l’enchevêtrement des macromolécules de HEC, qui sont adsorbées à la surface d’argile. Cette adsorption favorise la floculation ou la stabilisation stérique du système bentonite / PEG / HEC comme il est mentionné dans le chapitre précédent. En raison de son poids moléculaire élevé, l’HEC agit comme un flocculant (Al-Marhoun et Rahman, 1988). En conséquence, un phénomène de pontage des molécules de HEC entre les particules de bentonite ou une interpénétration des

couches de polymère adsorbé est apparu (Tadros, 1996; Zhou et al., 2001). Ces phénomènes maintiennent des valeurs élevées de contrainte seuil. La diminution de la contrainte seuil pour 0.6 % de HEC peut être due à la prédominance du comportement rhéologique de la solution de polymère. La diminution de l’indice d’écoulement à des valeurs  $<1$  indique que l’addition du HEC au système bentonite / PEG peut transformer le comportement du fluide de dilatant en rhéofluidifiant.

### V.2.3.2 Effet de la température sur les paramètres rhéologiques de (H–B) estimés en utilisant l’AG

Afin de mettre en évidence l’effet de la température sur les trois paramètres rhéologiques de (H–B), une formulation de fluide de forage (S5) est choisie. Les courbes d’écoulement de cette formulation (Fig. V.2.3) ont été obtenues à différentes températures allant de 25 à 75 °C. On peut constater que les contraintes de cisaillement convergent à faible taux de cisaillement et qu’elles sont différentes pour un taux de cisaillement élevé pour les températures testées.



**Figure V.2.3** : Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l’aide de la méthode de régression NL et l’AG pour les formulations S7–S10.

Le **tableau V.2.2** montre l’évolution des paramètres du modèle (H–B) en fonction de la température. Les deux techniques (AG et régression NL) donnent les mêmes valeurs de ces paramètres. On constate que la contrainte seuil décroît avec l’augmentation de la température jusqu’à une température de 55 °C. Cette contrainte seuil atteint un maximum à 65 °C et tend à diminuer après cette valeur de température. D’une part, la diminution de la contrainte seuil indique une défloculation du système et d’autre part, l’augmentation de ce paramètre montre qu’une floculation se produit (Annis, 1967). Ces observations indiquent aussi que le comportement thermique du mélange est contrôlé par HEC, ce polymère comme d’autres dérivés de cellulose a une température caractéristique désignée par la région de gélification ou le point de trouble. À cette température une séparation de phase s’est produit pour le polymère et il devient plus résistant à l’écoulement. L’augmentation de la température entraîne une augmentation des interactions hydrophobes entre les chaînes macromoléculaires, ce qui

## Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H–B) en utilisant l’AG

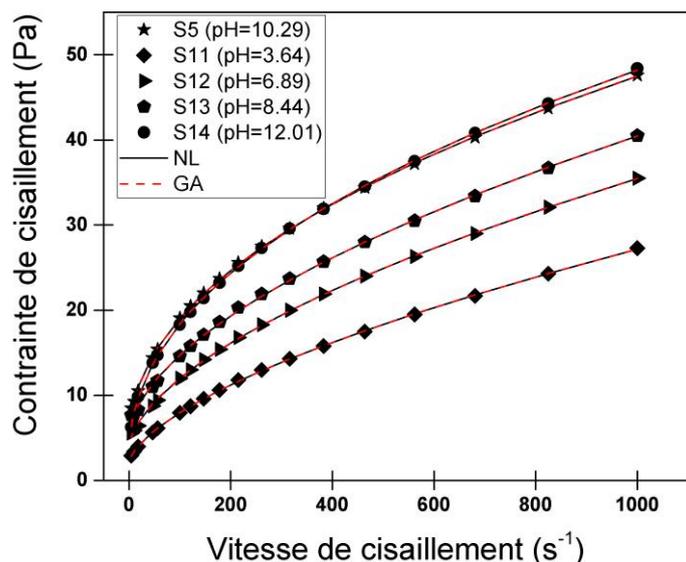
entraîne une modification de la structure interne des macromolécules autour de la température critique, d'où l'apparition d'une séparation de phase. D'un autre côté, la diminution de la contrainte seuil jusqu'à une certaine valeur de la température au-delà de laquelle, elle augmente considérablement, peut être attribuée à une augmentation du volume libre moléculaire et à une diminution simultanée des interactions intermoléculaires et / ou intramoléculaires (Abraham et al., 2008; Gentile et al., 2010; Bahlouli et al., 2013). Tandis que la diminution de la contrainte seuil de nouveau au-delà de la température de 65 °C indique la destruction de la structure du gel. Il a été mentionné dans la littérature que le point de trouble est compris entre 60 et 80 °C pour chaque polymère et pour les solutions de carboxyméthyl cellulose (CMC) et entre 40 et 60 °C pour les dispersions de bentonite et CMC (Benslimane et al., 2016), ce qui est en bon accord avec nos résultats. En conclusion, l'augmentation de la contrainte seuil pour une température de 65 °C (température de gélification) est due à un mécanisme de gélification. Pour l'indice d'écoulement, il atteint un minimum à la température de 65 °C, ce qui explique que le fluide devient encore plus rhéofluidifiant à cette valeur de température.

**Tableau V.2.2** : Paramètres rhéologiques de (H–B) dérivés à partir des techniques de l’AG et NL pour les formulations S7–S10

Echantillon et méthodes	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	R <sup>2</sup>	SSE (Pa <sup>2</sup> )
S5 (T= 25°C)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
AG	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S7 (T= 35°C)					
NL	2.3610	1.0930	0.5086	0.9999	0.1865
AG	2.3613	1.0930	0.5086	0.9999	0.1865
S8 (T= 55°C)					
NL	1.2697	2.7016	0.4072	0.9994	1.3508
AG	1.2696	2.7016	0.4072	0.9994	1.3497
S9 (T= 65°C)					
NL	4.7866	2.6452	0.3341	0.9991	0.6430
AG	4.7856	2.6457	0.3341	0.9991	0.6426
S10 (T= 75°C)					
NL	3.3830	1.3395	0.4610	0.9999	0.1433
AG	3.3830	1.3395	0.4610	0.9999	0.1433

### V.2.3.3 Effet du pH sur les paramètres rhéologiques de (H–B) estimés en utilisant l’AG

La **figure V.2.4** montre les courbes d'écoulement de la formulation (S5) avec des ajustements du pH modélisés par le modèle de (H–B) en utilisant l’AG et la régression NL. À partir de ces résultats, on peut noter que la contrainte de cisaillement diminue avec la diminution du pH des échantillons et atteint un minimum à un pH de 3.64.



**Figure V.2.4 :** Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l’aide de la méthode de régression NL et l’AG pour les formulations S11–S14.

Les paramètres rhéologiques de (H–B) dérivés par les techniques d’AG et de la régression NL des formulations S11–S14 sont mentionnés dans le **tableau V.2.3**, les mêmes résultats ont été obtenus avec ces deux techniques. La contrainte seuil et l’indice de consistance sont minimaux dans la région du pH bas compris entre 3 et 7. Ensuite, cette contrainte seuil augmente au maximum à pH = 8.44, tandis que l’indice de consistance atteint son maximum à pH = 12.01. Par contre, l’indice d’écoulement augmente dans la région du pH bas et diminue dans l’autre région du pH. D’autres auteurs ([Kelessidis et al., 2007](#)), ont trouvé que la contrainte seuil maximale est localisée à pH = 8.7 et à pH compris entre 8.6 et 8.9 pour des dispersions de bentonite de 5 et 6.42 % respectivement, et ils ont également constaté que les valeurs très élevées de ( $k$ ) sont observées pour une valeur du pH plus élevée d’environ 10.5 pour les mêmes dispersions de bentonite. La localisation de la contrainte seuil et l’indice de consistance maximaux à des valeurs de pH élevées peuvent être expliqués comme suit, la bentonite étudiée contient une teneur en CaO relativement élevée de 3.95 %. Les ions solubles de  $Ca^{2+}$  pousseront La localisation de la contrainte seuil maximale à un pH alcalin en raison de la formation d’un produit d’hydrolyse de  $Ca^{2+}$  pontant plus fortement les particules ([Mpfu et al., 2003](#); [Avadiar et al., 2014](#); [Zhu et al., 2016](#)).

Les auteurs [Laribi et al., \(2006\)](#), ont attribué la localisation de la contrainte seuil maximale à pH de 7.0 et 8.5 à l’association (bords-bords) entre les bords positifs et négatifs. Cependant, d’autres chercheurs ont signalé et suggéré des structures en bande résultant de l’association FF (Face-to-Face), qui donne des floes plus gros et des gels plus forts ([Norrish, 1954](#); [Callaghan et Ottewill, 1974](#); [de Kretser et al., 1998](#); [Luckham et Rossi, 1999](#) ; [Duran et al., 2000](#); [Tombácz et Szekeres, 2004](#)).

Sur la base de ces résultats, nous pouvons conclure que le pH alcalin conduit à la formation d’un réseau tridimensionnel plus fort et conduit à des gels plus résistants, qui permettent d’obtenir des valeurs de contrainte seuil et d’indice de consistance élevés.

## Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H–B) en utilisant l’AG

**Tableau V.2.3** : Paramètres rhéologiques de (H–B) dérivés à partir des techniques de l’AG et NL pour les formulations S11–S14

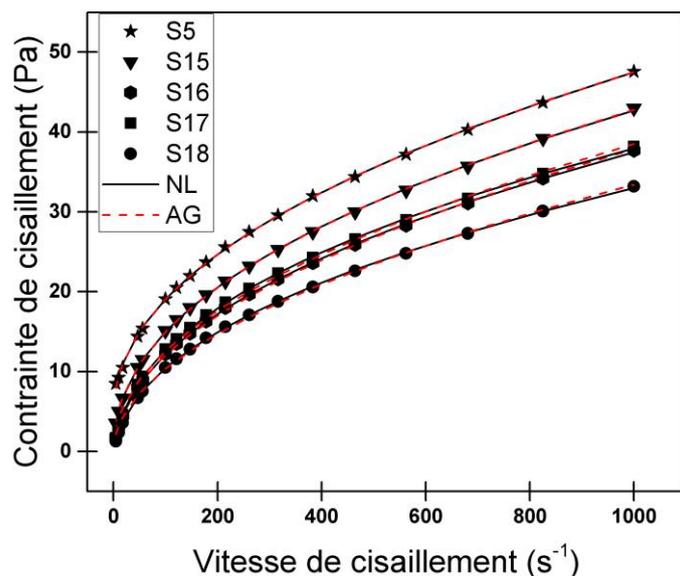
Echantillon et méthodes	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	R <sup>2</sup>	SSE (Pa <sup>2</sup> )
S5 (pH= 10.29)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
AG	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S11 (pH= 3.64)					
NL	1.9749	0.3404	0.6231	0.9999	0.0908
AG	1.9749	0.3404	0.6231	0.9999	0.0907
S12 (pH= 6.89)					
NL	3.7405	0.5592	0.5847	0.9997	0.4874
AG	3.7406	0.5592	0.5847	0.9997	0.4874
S13 (pH= 8.44)					
NL	5.2489	0.6896	0.5694	0.9991	1.5080
AG	5.2489	0.6896	0.5694	0.9991	1.51E+00
S14 (pH= 12.01)					
NL	2.4445	1.9365	0.4579	0.9999	0.1886
AG	2.4446	1.9364	0.4579	0.9999	0.1886

### V.2.3.4 Effet du NaCl sur les paramètres rhéologiques de (H–B) estimés en utilisant l’AG

Le chlorure de sodium (NaCl) est l’un des sels les plus couramment utilisés dans la formulation des fluides de forage utilisés en industrie du pétrole et du gaz (Amani et al., 2015). L’ajout du sel aux fluides de forage a pour but de minimiser le problème de rhéoépaississement causé par une forte concentration en argile et de stabiliser et de contrôler le gonflement des argiles. L’ion de chlorure (Cl<sup>-</sup>) provient du chlorure de sodium empêche l’eau de pénétrer dans la matrice d’argile (Caenn et Chillingar, 1996). En outre, le sel est également nécessaire pour stabiliser la structure des biopolymères. Sans sel, de nombreux types de polysaccharides seront dénaturés. Ceci est dû à la diminution de la longueur de la chaîne des biopolymères où les macromolécules ont tendance à adopter une conformation plus enroulée (Caenn et Chillingar, 1996). Dans cette section, du NaCl de différentes concentrations comprises entre 0.5 et 2.0 wt% sont ajoutées au fluide de forage (formulation S5) afin de mettre en évidence l’effet de ce type de sel sur le comportement rhéologique de ce fluide, et optimisant ainsi la concentration du NaCl à ajouter afin d’éviter la dégradation des propriétés rhéologiques.

La **figure V.2.5** représente les courbes d’écoulement des différents fluides formulés avec du NaCl, ajustées par le modèle de (H–B), en utilisant les techniques de l’AG et de la régression NL. Les résultats montrent que l’ajout du NaCl aux fluides de forage réduit les propriétés rhéologiques de ces derniers.

Les résultats d’estimation des trois paramètres du modèle de (H–B) en utilisant l’AG et la régression NL sont montrés dans le **tableau V.2.4**.



**Figure V.2.5 :** Superposition des données rhéologiques et des courbes du modèle (H–B) obtenues à l’aide de la méthode de régression NL et l’AG pour les formulations S15–S18.

Pour ce type de fluide de forage, les résultats obtenus par les deux méthodes sont différents. On peut remarquer que les contraintes seuils obtenues par l’AG sont égales à 0 Pa pour tous les fluides contenant du NaCl, alors que la régression NL donne des contraintes seuils négatives. Nous pouvons dire que la régression NL ne donne pas de solutions optimales pour ce type de fluide de forage car les contraintes seuils négatives n’ont aucune signification physique. Des résultats similaires ont été rapportés dans la littérature par [Chauhan et al., \(2018\)](#), pour l’optimisation des paramètres de (H–B) d’un polymère visqueux de "Karaya".

Sur la base des résultats de l’AG, on constate que l’ajout du NaCl au fluide de forage élimine la contrainte seuil, ce qui est une évaluation plus réaliste, mais ces résultats suggèrent que ces fluides de forage montrent un comportement pseudo-plastique plutôt qu’un comportement rhéofluidifiant avec une contrainte seuil, recommandant la loi de puissance (LP) comme un modèle optimal pour ces formulations particulières. La question qui se pose alors, est de savoir si la LP est le meilleur modèle rhéologique pour décrire le comportement de ces formulations particulières ?

Plusieurs auteurs ont montré que le comportement rhéologique de la plupart des fluides de forage doit être ajusté par le modèle de (H–B) et que l’ajout du sel aux fluides de forage réduit la contrainte seuil mais ne l’élimine pas. [Kelessidis et al., \(2007\)](#) ont observé une forte diminution de la contrainte seuil des dispersions de bentonite à 0.5 M et 1.0 M du NaCl à des valeurs très significatives. [Abu-Jdayil \(2011\)](#) a également constaté que l’addition de 0.1 et 0.2 M du NaCl à la bentonite sodique réduit, voire même élimine la contrainte seuil de ces dispersions. Par conséquent, la contrainte seuil estimée en ajustant un modèle mathématique doit être considérée comme un paramètre du modèle plutôt que la vraie contrainte seuil du fluide, qui reflète la véritable nature de l’échantillon. Cette contrainte seuil est considérée comme la contrainte seuil dynamique, c’est-à-dire la contrainte seuil minimale requise pour maintenir l’écoulement du fluide, au lieu de la contrainte seuil statique, qui est plus importante pour le pompage du fluide et la suspension des déblais de forage ([Chauhan et al., 2018](#)). Pour

## Estimation des paramètres rhéologiques du modèle (H–B) en utilisant l’AG

résoudre ce problème, la contrainte seuil statique (contrainte requise pour initier l’écoulement) des fluides contenant du NaCl est estimée à l’aide des essais oscillatoires permettant de confirmer si le fluide est rhéofluidifiant ou non.

**Tableau V.2.4** : Paramètres rhéologiques de (H–B) dérivés à partir des techniques de l’AG et NL pour les formulations S11–S14

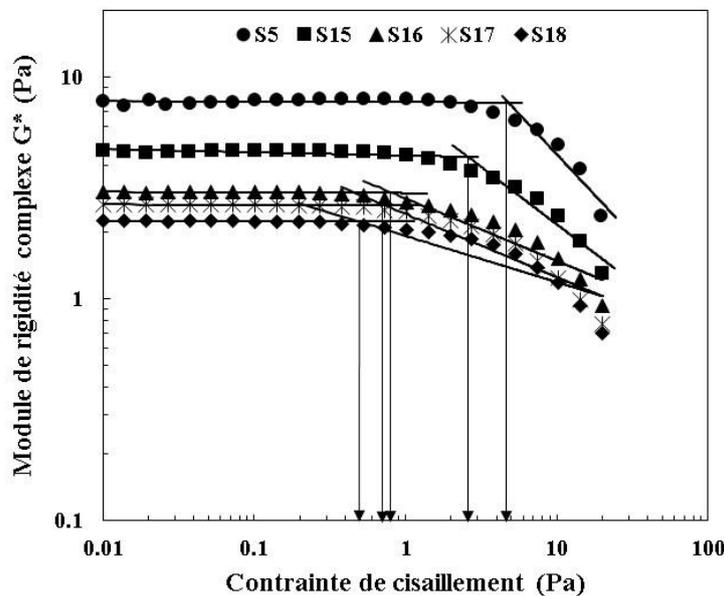
Echantillon et méthodes	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$	SSE
S5 (3% Bent+0.2%PEG+0.5%HEC)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
AG	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S15 (3% Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+0.5%NaCl)					
NL	-0.3530	1.9423	0.4486	0.9999	0.2976
AG	0.0	1.8270	0.4565	0.9998	0.3692
Loi de puissance (LP), $\tau = k \cdot \dot{\gamma}^n$	0.0	1.8270	0.4565	0.9998	0.3692
S16 (3% Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+1.0%NaCl)					
NL	-1.8364	1.7607	0.4496	0.9999	0.2123
AG	0.0	1.2157	0.4978	0.9990	2.4296
LP	0.0	1.2157	0.4978	0.9990	2.4296
S17 (3% Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+1.5%NaCl)					
NL	-2.6720	2.2049	0.4218	0.9999	0.2959
AG	0.0	1.3414	0.4860	0.9981	4.4262
LP	0.0	1.3414	0.4860	0.9981	4.4262
S18 (3% Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+2.0%NaCl)					
NL	-1.897	1.5249	0.4532	0.9999	0.2229
AG	0.0	0.9819	0.5106	0.9985	2.7028
LP	0.0	0.9819	0.5106	0.9985	2.7028

### V.2.3.5 Estimation des contraintes seuils des fluides contenant du NaCl utilisant des essais de balayage en contrainte

La **figure V.2.6** illustre l’évolution du module de rigidité complexe en fonction de la contrainte à une fréquence de 10 rad/s pour les formulations S5 et S15–S18. La contrainte seuil dans ce cas correspond à la fin de la région de viscoélasticité linéaire, elle est déterminée par l’intersection des deux droites ajustées sur le diagramme log-log du module complexe en fonction de la contrainte (Graef et al., 2011; Dinkgreve et al., 2016).

Les résultats montrent que la contrainte seuil diminue avec l'augmentation de la concentration en NaCl. Cet effet peut être dû à la compression de la double couche électrique de la bentonite (Permien et Lagaly, 1994a). La compression de la double couche électrique empêche l'eau et le polymère de pénétrer dans les couches intermédiaires de bentonite et de lier les particules de bentonite et par conséquent, la consistance du système est réduite. Ces résultats indiquent aussi que l'ajout du NaCl au système bentonite / HEC / PEG détruit le réseau tridimensionnel, ce qui entraîne une réduction de la contrainte seuil et cette réduction devient plus significative avec l'augmentation de la concentration en NaCl.

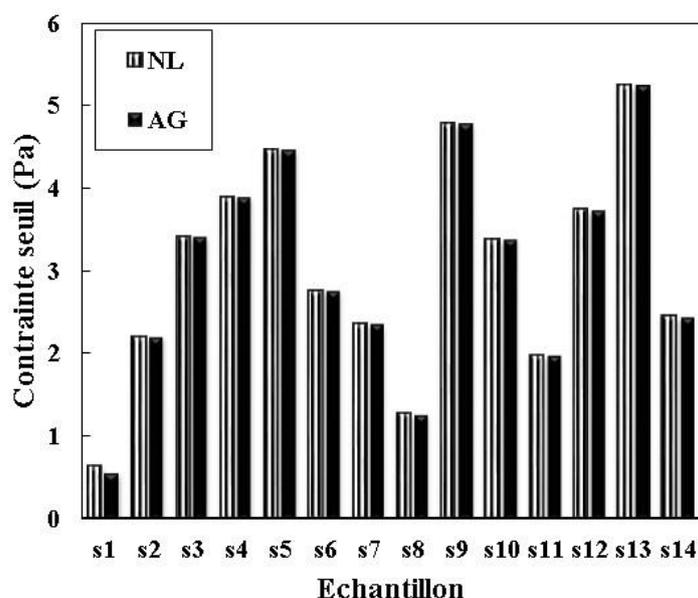
D'autres auteurs, Chang et Leong (2014) ont assumé une contrainte seuil nulle en raison de la détérioration de la structure des gels et la formation d'une couche de liquide par séparation de phases pour le système bentonite / NaCl et ils ont également signalé que la contrainte seuil des gels de bentonite diminue avec l'augmentation de la concentration en NaCl, indiquant que le NaCl réduit la force d'attraction interparticulaire. Les résultats obtenus montrent également que la configuration des polyélectrolytes devient plus compacte à forte force ionique en raison de l'effet de screening. De plus, Zhou et al., (2001) ont révélé que la compression de la double couche diminue la fraction volumique effective lorsque la concentration en électrolyte augmente. Un isolement des agrégats est induit par la force de répulsion entre eux. Par conséquent, l'adsorption ou l'interpénétration du HEC sur ou entre les agrégats empêche tout contact entre eux et par conséquent, une discontinuité dans le réseau tridimensionnel apparaît. En conséquence, le réseau se détruit et l'isolation des particules facilite le cisaillement, conduisant à la diminution de la contrainte seuil.



**Figure V.2.6 :** Estimation de la contrainte seuil en utilisant des essais oscillatoires pour les formulations S5 et S15–S18 à une fréquence de 10 rad/s.

**V.2.3.6 Comparaison entre les contraintes seuils obtenues à partir des courbes ajustées au modèle de (H-B) utilisant la régression NL et l'AG et à partir des essais oscillatoires**

Pour le premier groupe, concernant les formulations S1-S14 où les fluides de forage sont formulés avec la bentonite, PEG et HEC, une comparaison des contraintes seuils obtenues à partir des courbes ajustées au modèle de (H-B) en utilisant la régression NL et l'AG est faite. Nous constatons que les valeurs des contraintes seuils estimées (Fig. V.2.7) sont les mêmes pour les deux méthodes, ce qui prouve la validité de l'AG lors du traitement de bonnes données rhéologiques. Des résultats similaires ont été rapportés dans la littérature (Rooki et al., 2012; Chauhan et al., 2018).

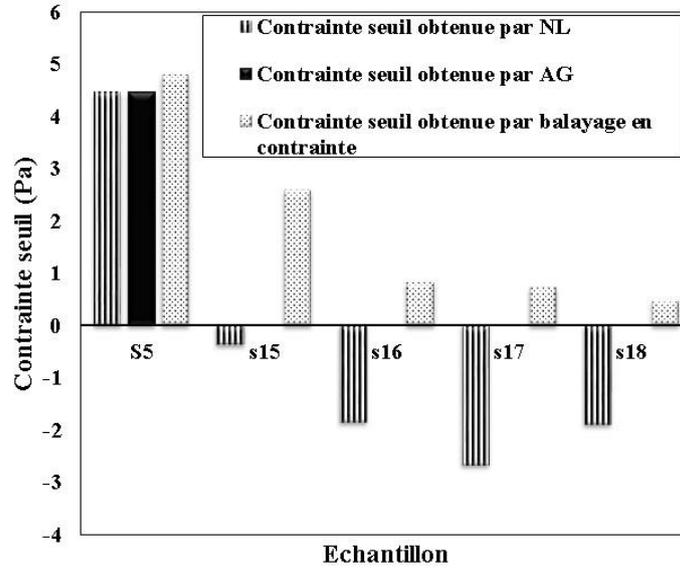


**Figure V.2.7 :** Comparaison des contraintes seuils obtenues à partir la régression NL et l'AG pour le premier groupe (S1-S14).

Pour le deuxième groupe, les résultats des contraintes seuils calculées par les essais oscillatoires ont été comparés avec celles estimées à partir de l'ajustement des courbes d'écoulement en utilisant la régression NL et l'AG (Fig. V.2.8).

Dans ce cas, les contraintes seuils obtenues par la régression NL sont négatives pour toutes les formulations, alors que celles calculées avec l'AG sont nulles. De plus, les contraintes calculées à l'aide des essais dynamiques sont positives et diminuent avec l'augmentation de la concentration du NaCl. Par conséquent, l'AG permet d'évaluer des contraintes seuils plus réalistes tout en maintenant un bon degré de précision pour l'ajustement des courbes de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de cisaillement et elle se rapproche de la réalité, car l'ajout du NaCl diminue réellement la contrainte seuil des fluides de forage comme il a été confirmé par les essais oscillatoires. De ce fait, on peut dire que l'AG prédit un bon résultat, qui a une signification physique, mais ce résultat doit être considéré comme un paramètre du modèle et non pas comme un paramètre réel du fluide. Par conséquent, il est

préférable d'utiliser les essais oscillatoires, ce qui conduit à une estimation réelle de la contrainte seuil du fluide.



**Figure V.2.8** : Comparaison des contraintes seuils obtenues à partir de l'ajustement des courbes utilisant les l'AG et la régression NL et à partir de l'essai oscillatoire pour le deuxième groupe (S5 et S15–S18)

### **V.3. Comparaison entre l'effet du NaCl et du KCl sur le comportement rhéologique du fluide de forage écologique**

Le sel est ajouté aux fluides de forage afin d'inhiber les argiles et pour faire face aux formations salines. Le forage à travers ces dernières peut réussir si et seulement si les propriétés essentielles de ces formations qui peuvent causer des instabilités sont bien comprises. La nature et la concentration du sel à ajouter sont choisies en prenant en compte les caractéristiques de la formation (activité de l'eau de formation argileuse, dissolution des formations salines).

La salinité de la phase aqueuse est choisie en fonction des caractéristiques de la formation traversée. En effet, [Chenevert \(1989\)](#) a montré que la force ionique de la phase aqueuse du fluide doit être égale à celle de l'eau présente dans les argiles de la formation afin d'éviter toute réaction d'échange. Une diffusion de molécules d'eau vers la formation pourrait conduire à un gonflement des argiles et par suite à une déstabilisation des parois du puits et à l'inverse, une perte d'eau entraînerait une déstabilisation des parois par « cracking ». Bien que l'ion  $\text{Na}^+$  ne soit pas aussi un bon inhibiteur que l'ion  $\text{K}^+$ , l'utilisation du NaCl possède certains avantages sur celui du KCl. NaCl peut réduire l'invasion du filtrat dans les argiles. En effet, proche de la saturation, une solution de NaCl conduit à de grandes viscosités et à une activité de l'eau plus faible que celles observées avec les solutions concentrées de KCl ([Khodja, 2008](#)).

Dans cette partie, nous allons comparer entre l'effet des deux types du sel, NaCl et KCl sur le comportement rhéologique du fluide de forage formulé à partir de la bentonite, HEC et PEG.

#### **V.3.1 Effet du KCl sur les paramètres rhéologiques de (H-B)**

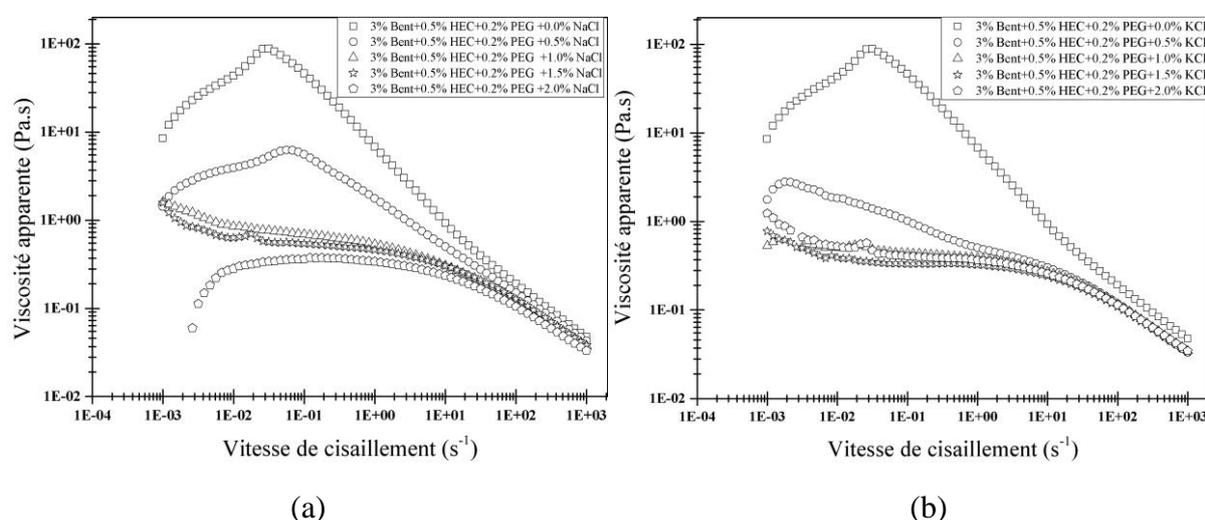
Nous avons trouvé précédemment que l'ajout du NaCl au fluide de forage étudié réduit la contrainte seuil et l'indice de consistance de ce dernier. A partir du **tableau V.3.1** qui montre les paramètres du modèle de (H-B) du fluide de forage contenant du KCl, on peut remarquer que ce dernier a le même effet que NaCl sur la contrainte seuil et l'indice de consistance. La différence entre les deux types du sel est que le NaCl réduit plus la contrainte seuil alors que le KCl réduit plus l'indice de consistance. Ces résultats montrent que l'ajout du NaCl détruit le réseau tridimensionnel, ce qui entraîne une réduction importante de la contrainte seuil ([Ouaer et al., 2018](#)), mais l'ajout du KCl réduit le gonflement de la bentonite en empêchant l'eau et le polymère de pénétrer entre les feuillets de la bentonite, ce qui réduit considérablement l'indice de consistance.

**Tableau V.3.1** : Paramètres du modèle de (H-B) pour les fluides de forage contenant du KCl

Formulation du fluide de forage	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$
3%Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+0.0%KCl	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997
3%Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+0.5%KCl	2.4239	0.7592	0.5378	0.9893
3%Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+1.0%KCl	2.3540	0.6902	0.5510	0.9892
3%Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+1.5%KCl	1.9657	0.6343	0.5691	0.9912
3%Bent+0.2%PEG+0.5%HEC+2.0%KCl	1.9685	0.6968	0.5599	0.9916

### V.3.2 Effet du NaCl et du KCl sur la viscosité du fluide de forage écologique

Les figures V.3.1a et b montrent l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la concentration du NaCl et du KCl respectivement. D'après ces figures, il est évident que l'addition du sel aux fluides de forage a pour effet de réduire la viscosité de ces fluides, quel que soit le type du sel. Cependant, le degré de réduction de la viscosité varie en fonction du type du sel. Elle décroît de façon significative lors de l'ajout du KCl, en modifiant le comportement rhéologique du fluide de forage du rhéoépaississant vers un plateau newtonien à faible taux de cisaillement à une concentration de 0.5%. La diminution de la viscosité reste constante lorsque la concentration en KCl augmente de 1.0 à 2.0 %. Alors que l'ajout du NaCl conduit à un plateau newtonien au lieu d'un comportement rhéoépaississant à faible vitesse de cisaillement à une concentration de 1.0 %. La diminution de la viscosité est continue avec l'augmentation de la concentration du NaCl.



**Figure V.3.1 :** Effet de la concentration du NaCl et du KCl sur la viscosité du fluide de forage écologique (B–Mos + HEC + PEG).

Les résultats montrent que l'ajout du NaCl et/ou KCl au fluide de forage détruit le réseau tridimensionnel, ce qui conduit à la diminution de la viscosité du système. Cette diminution de viscosité devient plus importante dans le cas du KCl. Ce dernier effet peut être dû à la nature du  $K^+$ , qui est un cation moins hydraté et occupe moins d'espace dans l'espace interfoliaire (Benyounes et Benmounah, 2015), ce qui entraînera des variations dans le gonflement de la bentonite. La stabilisation de la viscosité après l'ajout d'une certaine concentration de NaCl / KCl au fluide de forage (B–Mos + HEC + PEG) peut être due à la limitation d'échange de cations car l'espace interfoliaire de la couche de bentonite est saturé.

### V.4. Conclusion

Dans le présent chapitre, nous avons abordé divers aspects du comportement rhéologique d'un fluide de forage écologique formulé à partir de la bentonite (B–Mos), l'HEC et le PEG, sous différents taux de cisaillement, en mettant l'accent sur la détermination des trois paramètres du modèle rhéologique de (H–B). Les résultats ont été examinés en profondeur incluant, les effets du taux de cisaillement, de la concentration en HEC, de la température, du pH, du sel (NaCl et

## Comparaison entre l'effet du NaCl et du KCl sur le comportement rhéologique du fluide de forage écologique

---

KCl) et des techniques d'optimisation sur les paramètres rhéologiques du modèle de (H-B). Le fluide de forage étudié montre un comportement rhéofluidifiant avec une augmentation de la contrainte seuil et de l'indice de consistance en augmentant la concentration de HEC. La température, le pH et le NaCl affectent le comportement rhéologique du fluide de forage formulé comme suit : la contrainte seuil et l'indice de consistance diminuent en fonction de la température jusqu'à une valeur de température critique indiquée comme la température de gélification et proche de 65 °C ensuite, ils augmentent brusquement à cette température critique et ils diminuent également avec la diminution du pH et l'augmentation de la concentration en NaCl. Alors que l'indice d'écoulement évolue inversement que la contrainte seuil et l'indice de consistance.

Les données rhéologiques (contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement) ont été bien ajustées par le modèle de (H-B) en utilisant la régression NL, mais cette dernière aboutie à des contraintes seuil négatives pour le fluide de forage contenant du NaCl. Ces contraintes négatives n'ont pas un sens physique. Par conséquent, la technique de régression NL ne peut pas toujours conduire à des solutions optimales. Pour éliminer l'inconvénient de la régression NL, une approche basée sur la technique de l'AG a été présentée. L'objectif de la procédure d'optimisation de cette technique est de déterminer les paramètres de (H-B) avec un minimum d'erreur, en notant que la SSE est considérée comme une fonction objective. En plus de la fonction objective, certaines contraintes ont été ajoutées pour éviter les valeurs négatives pour les variables du modèle. Par conséquent, l'AG fournit des solutions optimales pour les différents fluides étudiés et entraîne une SSE similaire à celle de la régression NL pour tous les fluides, sauf pour les fluides contenant du NaCl, où la différence de SSE n'est pas significative malgré tout. De plus, cette technique suggère le modèle de LP comme étant le meilleur modèle rhéologique pour les fluides contenant du NaCl, ce qui pourrait ne pas être vrai, car la plupart des comportements rhéologiques des fluides de forage ont été bien décrit par le modèle de (H-B). Comme révélé par les essais oscillatoires que l'addition du NaCl au fluide de forage réduit la contrainte seuil de ce fluide.

Une comparaison entre l'effet du NaCl et du KCl sur le comportement rhéologique du fluide de forage écologique a révélé une dégradation des propriétés rhéologiques de ce fluide avec l'augmentation de la concentration des deux types du sel. Il est à noter aussi que la réduction de la viscosité apparente est plus importante dans le cas de l'ajout du KCl, ce qui est attribuée aux variations du gonflement de la bentonite créées par le cation moins hydraté «K<sup>+</sup>».

Sur la base de ces résultats, nous constatons que le fluide de forage écologique (bentonite-HEC-PEG) présente une thermogélification à des températures élevées et se comporte comme des gels à pH alcalin, ce qui le rend idéal pour les applications du fluide de forage, et plus particulièrement pour le transport et la suspension des déblais de forage. Il est également recommandé d'utiliser une concentration du NaCl et du KCl ne dépassant pas 1 % pour éviter la dégradation des paramètres rhéologiques des fluides de forage. La formulation proposée (bentonite / HEC / PEG) peut améliorer les fluides de forage pour l'exploration et la production du pétrole et du gaz et peut être utilisée dans les puits géothermiques. Elle peut offrir la viscosité requise à des températures élevées, ce qui est une caractéristique avantageuse des fluides de

forage: une viscosité élevée avec une contrainte seuil aux faibles taux de cisaillement indiquant une grande capacité de transport des déblais loin du trépan. En plus, l'utilisation de fortes concentrations de NaCl ou KCl aux températures ambiantes (de surface) permet de réduire la viscosité et de réduire la contrainte seuil, ce qui est souhaitable pour faciliter la séparation des déblais ramenés à la surface par les tamis vibrants.

## **Références bibliographiques**

- Abraham, T.N., Ratna, D., Siengchin, S., Karger-Kocsis, J. Rheological and thermal properties of poly(ethylene oxide)/multiwall carbon nanotube composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 110: 2094–2101, (2008).
- Abu-Jdayil, B. Rheology of sodium and calcium bentonite – water dispersions: Effect of electrolytes and aging time. *International Journal of Mineral Processing.* 98: 208–213, (2011).
- Alderman, N.J., Gavignet, A., Guillot, D., Maitlan, G.C. High-Temperature, High-Pressure rheology of water-based muds. Paper SPE 18035 presented at the SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, 2–5 October. 187–195, (1988).
- Al-Marhoun, M.A., Rahman, S.S. Optimizing the properties of water-based polymer drilling fluids for penetrating formations with electrolyte influx. *Erdol Erdgas Journal.* 318–323, (1988).
- Amani, M., Retnanto, A., Yrac, R., Shehada, S., Ghamary, M.H., Khorasani, M.H.M., Abu Ghazaleh, M. Effect of salinity on the viscosity of water based drilling fluids at elevated pressures and temperatures. *International Journal of Engineering and Applied Sciences.* 7 (04): 30–52, (2015).
- Annis, M.R. High-Temperature flow properties of water-base drilling fluids. *J. Pet. Technol.* 1074–1080, (1967).
- Avadiar, L., Leong, Y., Fourie, A., Nugraha, T., Clode, P.L. Source of Unimin kaolin rheological variation-Ca<sup>2+</sup> concentration. *Colloids Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects.* 459: 90–99, (2014).
- Bahlouli, M.I., Bekkour, K., Benchabane, A., Hemar, Y., Nemdili, A. The effect of temperature on the rheological behavior of polyethylene oxide (PEO) solutions. *Appl. Rheol.* 23: 13435, (2013).
- Benslimane, A., Bahlouli, M.I., Bekkour, K., Hammiche, D. Thermal gelation properties of carboxymethyl cellulose and bentonite-carboxymethyl cellulose dispersions: Rheological considerations. *Appl. Clay sci.* 132–133: 702–710, (2016).
- Benyounes, K., Benmounah, A. Rheological and Electrokinetic Characterization of Bentonite Particles in Aqueous Phase in Presence of KCl. *Particulate Science and Technology.* (2015). DOI: 10.1080/02726351.2015.1042563
- Briscoe, B.J., Luckam, P.F., Ren, S.R. The properties of drilling muds at high pressures and high temperatures. *Philos. Trans. R. Soc. Lond. Ser. A: Math. Phys. Sci.* 348: 179–207, (1994).

- Caenn, R., Chillingar, G.V. Drilling fluids: state of the art. *J. Petrol. Sci. Eng.* 14: 221–230, (1996).
- Callaghan, I.C., Ottewill, R.H. Interparticle forces in montmorillonite gels. *Discuss. Faraday Soc.* 57: 110–118, (1974).
- Chang, W.-Z., Leong, Y.-K. Ageing and collapse of bentonite gels—effects of Li, Na, K and Cs ions. *Rheol Acta.* 53: 109–122, (2014).
- Chauhan, G., Verma, A., Das, A., Ojha, K. Rheological studies and optimization of Herschel-Bulkley flow parameters of viscous karaya polymer suspensions using GA and PSO algorithms. *Rheol Acta.* (2018). <https://doi.org/10.1007/s00397-017-1060-x>.
- Chenevert, M.E. Glycerol mud additive provides shale stability. *Oil Gas J.* 87(29): 60–64, (1989)
- de Kretser, R.G., Scales, P.J., Boger, D.V. Surface chemistry– rheology inter-relationships in clay suspensions. *Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp.* 137: 307–318, (1998).
- Dinkgreve, M., Paredes, J., Denn, M.M., Bonn, D. On different ways of measuring the yield stress. *J Non-Newtonian Fluid Mech.* 238: 233–241, (2016).
- Duran, J.D.G., Ramos-Tejada, M.M., Arroyo, F.J., Gonzalez-Caballero, F. Rheological and electrokinetic properties of sodium montmorillonite suspensions. *J. Colloid Interface Sci.* 229: 197–117, (2000).
- Fordham, E.J., Bittleston, S.H., Tehrani, M.A. Viscoplastic flow in centered annuli, pipes and slots. *Ind. Eng. Chem. Res.* 29: 517–524, (1991).
- Gentile, L., De Luca, G., Antunes, F.E., Rossi, C.O., Ranieri, G.A. Thermogelation analysis of F127-water mixtures by physical chemistry techniques. *Appl. Rheol.* 20: 1–9, 52081, (2010).
- Glass, Jr, J.E. HEC-bentonite compatible blends. US patent, 4561985, (1985).
- Goldberg, D. Genetic algorithms in search optimization and machine learning. Kluwer Academic Publishers, Boston, (1989).
- Graef, V.D., Depypere, F., Minnaert, M., Dewettinck, K. Chocolate yield stress as measured by oscillatory rheology. *Food Res Int.* 44(9): 2660–2665, (2011).
- Hemphill, T., Campos, W., Pilehvari, A. Yield-power law model accurately predicts mud rheology. *Oil Gas J.* 91: 45–50, (1993).
- Holland, J.H. *Adaptation in natural and artificial Systems: An introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence.* University of Michigan Press, Ann Arbor, MI, (1975).
- Kelessidis, V.C., Maglione, R. Modeling rheological behavior of bentonite suspensions as Casson and Robertson–Stiff fluids using Newtonian and true shear rates in Couette viscometry. *Powder Technology.* 168: 134–147, (2006).
- Kelessidis, V.C., Tsamantaki, C., Dalamarinis, P. Effect of pH and electrolyte on the rheology of aqueous Wyoming bentonite dispersions. *Appl. Clay Sci.* 38: 86–96, (2007a).
- Kenny, P., Hemphill, T., Bell, G. Unique hole cleaning capabilities of ester-based drilling fluid system. Paper SPE 28308 presented at the SPE Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, 25–28 September, (1994).
- Khodja, M. *Les fluides de forage: étude des performances et considérations environnementales.* Thèse de doctorat de l'Université de Toulouse (2008).

- Kok, M.V., Batmaz, T., Gücüyener, I.H. Rheological behavior of bentonite suspensions. *Petroleum Science and Technology*. 18 (5 & 6): 519–536, (2000).
- Laribi, S., Fleureua, J.M., Grossiord, J.L., Kbir-Arighuib, N. Effect of pH on the rheological behavior of pure and interstratified smectite clays. *Clays Clay Miner.* 54: 29–37, (2006).
- Luckham, P.F., Rossi, S. The colloidal and rheological properties of bentonite suspensions. *Adv. Colloid Interface Sci.* 82, 43–92, (1999).
- Maglione, R., Ferrario, G. Equations determine flow states for yield-pseudoplastic drilling fluids. *Oil and Gas J.* 63: 63–65, (1996).
- Maglione, R., Romagnoli, R. The role of rheology optimization in the drilling mud design. *GEAM Bulletin of the Polytechnic of Turin.* 94: 123–132, (1998).
- Man, K.F., Tang, K.S., Kwong, S. Genetic algorithms: concepts and applications. *IEEE trans on industrial. Electronics.* 43:519–534, (1996).
- Michalewicz, Z. *Genetic Algorithms + Data Structures = Evolution Programs*. 3rd edition, Springer - Verlag, New York, 387, (1996).
- Mpofu, P., Addai-Mensah, J., Ralston, J. Influence of hydrolyzable metal ions on the interfacial chemistry, particle interactions, and dewatering behavior of kaolinite dispersions. *J. Colloid Interface Sci.* 261: 349–359, (2003).
- Norrish, K. The swelling of montmorillonite. *Discuss. Faraday Soc.* 18: 120–134, (1954).
- Nguyen, Q.D., Boger, D.V. Yield stress measurements for concentrated suspensions. *J. Rheol.* 27: 321–349, (1983).
- Ouaer, H., Gareche, M., Rooki, R. Rheological studies and optimization of Herschel-Bulkley parameters of an environmentally friendly drilling fluid using genetic algorithm. *Rheol. Acta.* 57: 693–704, (2018). <https://doi.org/10.1007/s00397-018-1110-z>.
- Permien, T., Lagaly, G. The rheological and colloidal properties of bentonite dispersions in the presence of organic compounds: I. Flow behaviour of sodium-bentonite in water–alcohol. *Appl. Clay Sci.* 29: 751–760, (1994a).
- Rooki, R., Ardejani, F.D., Moradzadeh, A., Mirzaei, H., Kelessidis, V., Maglione, R., Norouzi, M. Optimal determination of rheological parameters for herschel–bulkley drilling fluids using genetic algorithms (GAs). *Korea-Australia Rheology Journal.* 24(3): 163–170, (2012).
- Tadros, Th.F. Correlation of viscoelastic properties of stable and flocculated suspensions with their interparticle interactions. *Adv. Colloid Interface Sci.* 68: 97–200, (1996).
- Tombácz, E., Szekeres, M. Colloidal behavior of aqueous montmorillonite suspensions: the specific role of pH in the presence of indifferent electrolytes. *Appl. Clay Sci.* 27: 75–94, (2004).
- Walker, R.E., Korry, D.E. Field Method of Evaluating Annular Performance of Drilling Fluids. *Pet. Tech.* 167–173, (1974).
- Zhou, Z., Scales, P.J., Boger, D.V. Chemical and physical control of the rheology of concentrated metal oxide suspensions. *Chem. Eng. Sci.* 56 (9): 2901–2920, (2001).
- Zhu, S., Avadiar, L., Leong, Y.K. Yield stress- and zeta potential-pH behavior of washed  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  suspensions with relatively high Ca(II) and Mg(II) concentrations: hydrolysis product and bridging. *Int. J. Miner. Process.* 148: 1–8, (2016).

---

## Conclusion générale

Cette thèse portant sur l'étude des suspensions de bentonite seules et en présence d'additifs (HEC et PEG) utilisées comme fluides de forage à base d'eau de haute performance et respectueux de l'environnement a permis de montrer clairement les mécanismes mis en jeu entre les particules de bentonite, les polymères non ioniques et les sels, par le couplage des analyses de diffraction par rayons X et la granulométrie aux résultats obtenus en rhéométrie.

Après une revue bibliographique concernant la microstructure de la bentonite, quelques polymères utilisés dans les formulations des fluides de forage, les interactions dans le système ternaire (eau-bentonite-polymère) et la rhéologie des fluides de forage, la littérature rapporte une riche contribution dans ce domaine. Néanmoins, le choix du type, de la concentration et de la taille des additifs à base de polymères correspondant le mieux aux conditions requises pour les différentes opérations de forage reste un domaine d'investigation le moins maîtrisé.

Dans cette optique, nous avons d'abord présenté les matériaux à étudier suivi des méthodes expérimentales à élaborer de façon rigoureuse pour la caractérisation des différents systèmes : les suspensions de bentonite, les solutions de HEC et les mélanges bentonite-HEC.

L'étude comparative menée sur les deux types de bentonite B-Mos et B-Mag provenant des gisements Algériens a montré une augmentation en fonction de la concentration des paramètres tels que : la contrainte seuil, la viscosité à cisaillement infini, l'indice de consistance, l'exposant de la contrainte et les modules viscoélastiques. On note que cette augmentation est plus significative pour les suspensions de B-Mos qui montre une association tridimensionnelle bord à bord et bord à face des particules de bentonite. Par ailleurs, le modèle de Papanastasiou à trois paramètres reproduit de façon satisfaisante les courbes d'écoulement par rapport au modèle de Herschel-Bulkley le plus souvent utilisé dans la littérature. En effet, le constat a été fait sur l'estimation de la contrainte seuil de Papanastasiou plus proche de celle déduite expérimentalement par rapport à l'autre modèle (H-B). Par ailleurs, cette étude comparative nous a permis de déduire que les suspensions de B-Mos sont plus appropriées aux applications de fluides de forage à base d'eau par rapport aux suspensions de B-Mag, car elles présentent des propriétés rhéologiques très intéressantes. Nous pouvons dire alors que les bentonites naturelles sodiques sont plus performantes que les bentonites calciques activées.

Pour l'étude des solutions aqueuses de HEC, celles-ci ont montré un double comportement rhéologique : Newtonien pour les faibles taux de cisaillement et rhéofluidifiant pour les taux de cisaillement élevés. La prédiction de leur comportement par le modèle de Cross a été très satisfaisante. L'augmentation des paramètres du modèle tels que,  $\eta_0$ ,  $\eta_\infty$  et  $\lambda$ , en fonction de la concentration en HEC, peut être attribuée à la densification des chaînes de polymères qui permet de renforcer l'enchevêtrement des longues chaînes polymériques. Les mesures en régime dynamique ont montré que les solutions de HEC présentent un comportement élastique

aux hautes fréquences à une concentration proche de 1%. Cette concentration sépare entre le régime semi-dilué et le régime concentré des solutions de HEC.

Pour l'étude des mélanges (bentonite-HEC), l'ajout de HEC à la suspension de bentonite de base de 3 % augmente les propriétés rhéologiques de cette suspension telles que : la contrainte seuil, la viscosité apparente et les modules viscoélastiques. Ces propriétés atteignent des valeurs maximales à une concentration critique de HEC proche de 0.1 %. Au-delà de cette concentration une diminution des propriétés rhéologiques a été observée. L'augmentation des propriétés rhéologiques du mélange bentonite-HEC est due aux liaisons hydrogène construites entre l'hydrogène et l'hydroxyle de l'argile et celles du groupe hydroxyéthyl éther de la molécule HEC, et encore au nombre d'enchevêtrements causés par les longues chaînes de polymère. En revanche, la diminution de ces propriétés est due à la formation de la mousse dans le mélange et au phénomène de synérèse. Les résultats de DRX ont montré que les molécules de polymère peuvent se fixer à la surface des particules de bentonite ou s'intercaler entre les particules de bentonite.

Le dernier chapitre de la partie expérimentale est consacré d'une part, à l'amélioration des propriétés rhéologiques du fluide de forage formulé par l'ajout du HEC, et en utilisant l'algorithme génétique pour l'optimisation de ces paramètres. D'une autre part, nous avons examiné la performance du fluide de forage formé par le système (B-Mos-HEC-PEG) sous différentes contraintes : effet de la température, effet du pH (alcalinité, acidité) et effet du sel (contamination par NaCl ou KCl). Les résultats obtenus ont montré, que l'ajout du PEG dans les formulations de fluide de forage améliore les propriétés du mélange (bentonite-HEC) en éliminant les phénomènes de mousse et de synérèse. Ces mêmes propriétés peuvent être dégradées lors du passage à travers les formations salines et cette dégradation en terme de viscosité peut être plus importante dans le cas du KCl que le NaCl, qui peut être attribué aux variations du gonflement de la bentonite créées par le cation moins hydraté  $K^+$ .

L'AG a fourni des solutions optimales pour les différentes formulations de fluides étudiées et entraîne une SSE similaire à celle de la régression NL pour tous les fluides, sauf pour les fluides contenant du NaCl, mais la différence de SSE reste toujours non significative. L'avantage de l'AG par rapport à la régression NL est de donner des solutions plus réalistes (positives) et non pas des solutions négatives comme dans notre cas, une contrainte seuil négative n'ayant pas un sens physique. En effet cette technique a suggéré le modèle en LP le plus adéquat pour les fluides de forage contenant du NaCl (La présence du NaCl altère les propriétés rhéologiques, notamment la contrainte seuil). Ce résultat numérique a été conforté et prouvé par les essais rhéologiques effectués (oscillatoire) qui ont révélé effectivement que l'ajout du NaCl au fluide de forage tend à réduire de façon significative voire même la faire disparaître cette contrainte seuil d'écoulement.

Cette thèse donne un nouveau point de vue sur la combinaison et les applications des polymères non ionique. C'est donc, une contribution et une initiative, visant à utiliser le HEC et le PEG comme des additifs fonctionnels dans les fluides de forage à base de bentonite. Il est à noter que le fluide de forage écologique (bentonite-HEC-PEG) présente une thermogélation à des températures élevées et se comporte comme des gels à pH alcalin, ce qui le rend idéal pour les applications de fluide de forage, et plus particulièrement pour le transport et la suspension des

déblais dans un puits de forage. Cette formulation proposée peut améliorer certaines fonctions lors de la phase d'exploration et la production du pétrole et du gaz et peut être aussi utilisée dans les puits géothermiques. En effet, elle peut offrir la viscosité requise à des températures élevées, ce qui est une caractéristique avantageuse des fluides de forage: une viscosité élevée avec une contrainte seuil au faible taux de cisaillement indiquant une grande capacité de transport des déblais loin du trépan. De plus, l'utilisation de fortes concentrations de NaCl ou KCl aux températures ambiantes (de surface) permet de réduire la viscosité ainsi que la contrainte seuil, ce qui est souhaitable pour faciliter la séparation des déblais ramenées à la surface par les tamis vibrants.

Certains points restent à éclaircir pour compléter ce travail. En effet, une investigation plus approfondie est nécessaire pour confirmer les conclusions de cette thèse. Nous recommandons alors, de coupler aux essais rhéologiques d'autres analyses telles que : la zêtamétrie, FTIR, MET ainsi que des essais de filtration pour confirmer que le fluide est performant et peut contrôler le filtrat. Nous estimons que ces essais complémentaires pourront combler le vide observé en termes de l'analyse de la microstructure du système ternaire eau-bentonite-polymère.

*Liste des travaux  
scientifiques*

## Publications

- Ouaer, H., Gareche, M. The rheological behaviour of a water-soluble polymer (HEC) used in drilling fluids. *J. Braz. Soc. Mech. Sci. Eng.* 40: 380, (2018). <https://doi.org/10.1007/s40430-018-1301-7>.
- Ouaer, H., Gareche, M., Rooki, R. Rheological studies and optimization of Herschel-Bulkley parameters of an environmentally friendly drilling fluid using genetic algorithm. *Rheol. Acta.* 57: 693–704, (2018). <https://doi.org/10.1007/s00397-018-1110-z>.
- Ouaer, H., Gareche, M., Allal, A. Rheological study of concentrated dispersions. Application to the drilling fluid. *IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series* 1045 (2018) 012033. Doi: 10.1088/1742-6596/1045/1/012033.
- Ouaer, H., Gareche, M. Hydroxyethyl cellulose as a rheology modifier for water-based drilling fluids formulated with Algerian bentonite. *J. Braz. Soc. Mech. Sci. Eng.* 41: 123, (2019).

## Communications

- Communication 1: "Rheological Study of Concentrated Dispersions. Application to the drilling Fluid." a été effectuée à la Hongrie "3rd International Conference on Rheology and modeling of materials, Miskolc-Lillüfered October, 02-06, 2017".
- Communication 2: "Study of the Rheological Behavior of Hydroxyethyl Cellulose (HEC) for Drilling Fluids Application." a été effectuée à Biskra "First Arab Conference on Mechanical Engineering (ARCME'17), Biskra, Algeria, December 10-11, 2017".
- Communication 3: "The influence of water-soluble polymer on the rheological behavior of Algerian bentonitic muds." a été effectuée à Skikda "International Conference on Nanomaterials and Renewable Energies (ICNRE 2018), Skikda, Algeria, 15-17 October 2018".

# *The rheological behaviour of a water-soluble polymer (HEC) used in drilling fluids*

**Hocine Ouaer & Mourad Gareche**

**Journal of the Brazilian Society of  
Mechanical Sciences and Engineering**

ISSN 1678-5878

Volume 40

Number 8

J Braz. Soc. Mech. Sci. Eng. (2018) 40:1-8

DOI 10.1007/s40430-018-1301-7



**Your article is protected by copyright and all rights are held exclusively by The Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering. This e-offprint is for personal use only and shall not be self-archived in electronic repositories. If you wish to self-archive your article, please use the accepted manuscript version for posting on your own website. You may further deposit the accepted manuscript version in any repository, provided it is only made publicly available 12 months after official publication or later and provided acknowledgement is given to the original source of publication and a link is inserted to the published article on Springer's website. The link must be accompanied by the following text: "The final publication is available at [link.springer.com](http://link.springer.com)".**



# The rheological behaviour of a water-soluble polymer (HEC) used in drilling fluids

Hocine Ouaer<sup>1</sup> · Mourad Gareche<sup>1</sup>Received: 28 October 2017 / Accepted: 9 July 2018 / Published online: 17 July 2018  
© The Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering 2018

## Abstract

The rheological properties of drilling fluids have been always considered as critical aspects to the success of drilling operations; in this fact, the control of these properties was of paramount importance. In this paper, the rheological behaviour of a water-soluble polymer, namely hydroxyethyl cellulose (HEC) used in drilling fluids, was investigated. Steady-state shear rheology and frequency experiment were carried out on the sample at different concentrations ranging from 0.1 to 1.2 wt% and constant temperature of  $25 \pm 0.1$  °C using a controlled-rate rheometer. The HEC solutions showed a shear thinning behaviour that was successfully fitted using the Cross model, where its parameters were found to increase with the HEC concentration. The steady-state shear rheological data allowed determining the intrinsic viscosity of the polymer ( $\sim 15.05$  dl/g) in distilled water; thereafter, an estimation of the molecular weight of HEC using the Mark–Houwink equation indicated that the studied sample was of high molecular weight ( $9.5 \times 10^5$  g/mol), which gave it good rheological properties for drilling fluid applications. The critical overlap concentration was found to be  $\sim 0.24$  wt% using two methods, the intrinsic viscosity and the plot of the apparent viscosity versus the polymer concentration at specific shear rate. The frequency sweep measurements allowed confirming the viscoelastic behaviour of the polymer; HEC solutions behaved either as viscous or as elastic materials at low and high frequencies, respectively. This information is essential for mud engineers to develop and maintain the properties of drilling fluid to the required specifications.

**Keywords** Hydroxyethyl cellulose · Intrinsic viscosity · Overlap concentration · Viscoelasticity · Drilling fluid

## List of symbols

### Roman symbols

$a$	Mark–Houwink constant
$C$	Concentration (%)
$C^*$	Overlap concentration (%)
$C^{**}$	Second critical concentration (%)
$C.[\eta]$	Overlap parameter
CMC	Carboxymethyl cellulose
$G'$	Storage modulus (Pa)
$G''$	Loss modulus (Pa)

HEC	Hydroxyethyl cellulose
hmHEC	hydrophobically modified hydroxyethyl cellulose
$k$	Constant of the Mark–Houwink relationship (dl/g)
$k'$	Huggins constant
$k''$	Constant
$M$	Molecular weight (g/mol)
$n$	Dimensionless constant
$W$	Frequency (rad/s)

### Greek symbols

$\dot{\gamma}$	Shear rate ( $s^{-1}$ )
$\lambda$	Time constant (s)
$\eta$	Viscosity of the polymer solution (Pa s)
$\eta_s$	Viscosity of the solvent (Pa s)
$\eta_0$	Zero shear rate viscosity (Pa s)
$\eta_\infty$	Infinite shear rate viscosity (Pa s)
$[\eta]$	Intrinsic viscosity ( $cm^3/g$ )
$\eta_{app}$	Apparent viscosity (Pa.s)
$\eta_{inh}$	Inherent viscosity ( $cm^3/g$ )

Technical Editor: Cezar Negrao.

✉ Hocine Ouaer  
ouaerhocin91@gmail.com<sup>1</sup> Laboratory of Hydrocarbons Physical Engineering, Faculty of Hydrocarbons and Chemistry, University of M'Hamed Bougara Boumerdes, Independence Avenue, 35000 Boumerdes, Algeria

$\eta_r$	Relative viscosity
$\eta_{red}$	Reduced viscosity ( $\text{cm}^3/\text{g}$ )
$\eta_{sp}$	Specific viscosity

## 1 Introduction

Water-soluble polymers are used extensively in various phases of drilling of oil and gas wells [4, 28]. Their introduction in the oilfield was not for the purpose of selling something competitive to bentonite. Rather, their purpose has been to improve operations so that wells can be drilled in less time and completed with minimum formation damage [9, 21, 29]. These materials may be extremely efficient viscosifiers or they may be used primarily to reduce filter loss by forming a filter cake on the wall of the well bore. Among the linear polymers used to build viscosity and form fluid-loss control pills is hydroxyethyl cellulose (HEC). HEC is generally accepted as a polymer fluid affording minimal permeability damage during drilling and completion operations [8]. This polymer is a cellulose ether, which is essentially non-ionic in nature and is widely used as a rheology modifier or stabilizer in drilling, completion and work-over fluids. To ensure the optimum choice of HEC concentration to be used and understand the performance of this polymer in drilling fluids applications, it is necessary to characterize this material from rheological point of view.

The rheological behaviour of HEC solutions is largely documented in the literature. Chatterji and Borchardt [6] have investigated the viscosity-concentration and viscosity-temperature dependence of water-soluble polymers used in oilfield, and they have confirmed that solution viscosities of cellulose derivatives, including HEC, decrease with temperature; nevertheless, these polymers have shown stability to thermal degradation induced by oxidation. Castelain et al. [5] have studied the viscosity of two cellulose derivatives, namely HEC and carboxymethyl cellulose—CMC—within a wide concentration range ( $0.05\text{--}20\text{ g l}^{-1}$ ). They have reported that the flow curves were characterized by the limiting viscosity at zero shear rate ( $\eta_0$ ), and above a critical concentration  $c_s$ , by a relaxation time ( $t = \frac{1}{\dot{\gamma}_c}$ ) corresponding to the shear rate above which the apparent viscosity became shear rate dependent (shear thinning behaviour). Laschet et al. [22] have established the effect of solely inter-molecular interactions on the flow behaviour of hydrophobically modified hydroxyethyl cellulose (hmHEC) solutions via comparison of the structure–property relationships of hmHECs and HECs based on the overlap parameter  $c[\eta]$ . Knowing that hmHEC is an amphiphilic derivative of HEC and it is synthesized by

grafting hydrophobic ‘sticker’ groups across the hydrophilic backbone of HEC. For this study, the authors have reported that the hydrophobic modification of HEC leads to the build-up of supramolecular structures in an aqueous solution. The existence of these supramolecular structures is reflected in the increase in the zero shear viscosity for hmHEC in comparison with unmodified HEC. Wang et al. [31] have investigated the influence of substitution on the rheological properties and gelation of HEC solution in NaOH–water solvent. The authors have found that both the intrinsic viscosity and the gelation time of HEC solutions decrease with temperature. However, the gelation kinetics, ‘especially at higher molar substitution’, is much slower than that of microcrystalline cellulose solutions in the same solvent.

The above investigations on the rheological behaviour of HEC solutions did not make relationships between the obtained results and their application in the field. In this fact, the present work intends to fill-in these gaps by performing a complete and comprehensive rheological study of HEC solutions in steady state and dynamic shear rheology and extracting from the obtained results some information about HEC applications in the drilling of oil and gas wells. The extracted information is significant, which include the selection of an appropriate HEC concentration to be used in drilling fluid to maintain hole stability and optimize hydraulics and drilling rate. The selected concentration is used for polymers-based drilling fluids or added to the bentonite slurries for bentonitic muds, and consequently, a knowledge of physicochemical phenomena responsible for the changes induced by adding a non-ionic polymer on the rheological properties of bentonite suspensions will be performed too. In addition, some information on the Cross model parameters that is used to describe the rheological behaviour of the fluid is also important. In this model, the zero shear viscosity ( $\eta_0$ ) and the infinite shear viscosity ( $\eta_\infty$ ) allow drilling engineers to estimate the viscosity at low and high shear rates, respectively. Therefore, predict the viscosity: firstly, when the fluid passes through pumps and valves, in this case, the viscosity should be minimal in order to facilitate the flow. Secondly, when the drilling fluid circulation stops, in this case, the fluid viscosity must be sufficient to sustain the rock cuttings. Meanwhile, the knowledge on the other fluid parameters, the dimensionless constant ( $n$ ) and the reciprocal of the time constant ( $1/\lambda$ ) give field engineers information on the type of fluid, on the degree of dependence of viscosity on the shear rate in the shear thinning region and on the critical shear rate, which provides a useful indicator of the onset shear rate for shear thinning.

## 2 Experimental

### 2.1 Materials

The HEC sample used in the present study was supplied from M-I Drilling Fluids, UK Ltd. The polymer had an average molecular weight of  $9.5 \times 10^5$  g/mol, determined in this work using the Mark–Houwink relationships. The physical and chemical properties of HEC sample are mentioned in Table 1.

### 2.2 Methods

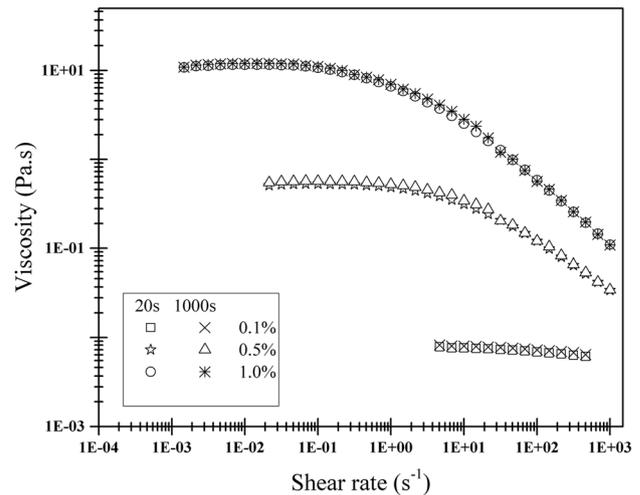
#### 2.2.1 Preparation of HEC solutions

HEC solutions with different polymer concentrations ranging from 0.1 to 1.2% were prepared by dissolving the adequate polymer powder quantity in distilled water. The powder was gently sprinkled in the vortex created by the vigorous stirring of the water using magnetic stirrer at ambient temperature. The homogenization was then kept for 2 h, which allowed achieving a complete polymer hydration and avoiding air bubbles formation.

#### 2.2.2 Rheometry

Dynamic and steady-state shear measurements were performed using an Anton Paar-Physica MCR-301 rheometer equipped with coaxial cylinders geometry ( $R_e = 14.464$  mm,  $R_i = 13.325$  mm,  $h = 39.997$  mm). This geometry was employed in all rheological experiments. The same geometry was used by Vadodaria and English [30], to measure the shear-rate-dependent viscosity of HEC and hmHEC solutions with different concentrations at low and high shear rates. Kang et al. [18] had also used microchannel and RFS II rheometer with Couette tool sets, to measure the rheological properties of HEC solutions at low and high shear rates; as a result, no degradation, vortices, or flow instability were observed in these experiments.

To prevent solvent evaporation in the case of a long-term test (dynamic tests), the free surface of the sample was covered with a thin layer of low-viscosity paraffin oil. (The viscoelastic response of the sample is virtually not affected by this layer.) [1, 17, 23, 31]



**Fig. 1** Viscosity as a function of shear rate curves of HEC solutions established using two different experimental protocols

Flow curves were obtained by increasing the shear rate from  $10^{-3}$  to  $1$   $s^{-1}$  and from  $1.1$  to  $10^3$   $s^{-1}$ , respectively, with 37 data points logarithmically equidistant from one another. The shear rate was applied for 20 s for the first interval and for 10 s for the second interval. The measurements were repeated with longer time of 1000 s for each shear rate to confirm the steady state, and the results between the two tests were compared for three concentrations (Fig. 1).

The linear viscoelastic properties of the aqueous HEC solutions were studied by measuring the evolution of the storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) moduli as a function of frequency ranging from  $10^{-2}$  to  $10^2$  rad/s, the applied stress was 0.015 Pa, which belongs to the linear viscoelastic regime (Fig. 2).

All measurements were taken at controlled temperature of  $25 \pm 0.1$  °C.

#### 2.2.3 pH measurements

pH measurements were taken using a pH meter (HANNA instruments, HI 2211) with a glass rod and a precision 0.01/ unit of pH at a temperature of  $25 \pm 0.5$  °C. It was noticed that the pH values of HEC solutions were ranging from 7.02 to 7.50.

**Table 1** Physical and chemical properties of HEC sample

Properties	Colour	Odour/taste	Bulk density	PH value, diluted solution	Solubility	Decomposition temperature (°C)
Description	White to light (or pale)	Mild (or faint)	0.4–0.6 g/cm <sup>3</sup>	6.0–8.5	Soluble in water	>250

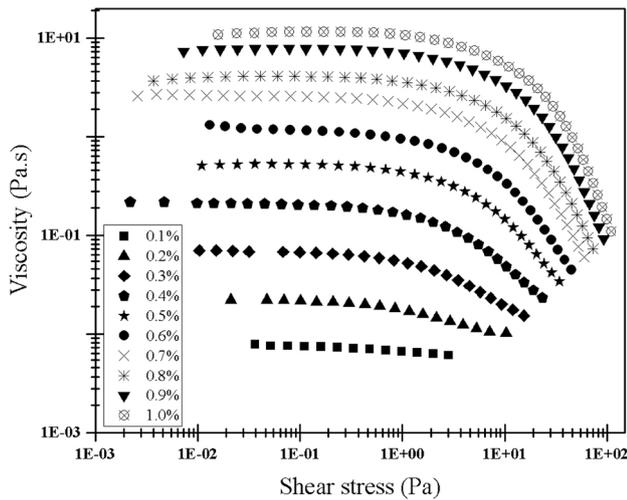


Fig. 2 Viscosity as a function of shear stress curves of HEC solutions for the linear and nonlinear regimes

### 3 Results and discussion

#### 3.1 Flow curves description

Figure 3 represents the measured viscosity versus shear rate curves for different HEC concentrations predicted by the Cross model. It can be noticed from the figure that the solutions are approximately Newtonian at low shear rates followed by a shear thinning behaviour at high shear rates. The changes in the rheological behaviour of these solutions are achieved at a critical shear rate ( $\dot{\gamma}_{crit}$ ), which decreases as HEC concentration increases. This shear thinning behaviour is due to the disentanglement of the polymer coils in solution and the alignment of the polymer coils in the direction of the flow [7]. Interestingly, no shear thickening behaviour is observed, which is in good agreement with reported results in the literature [5, 25, 31].

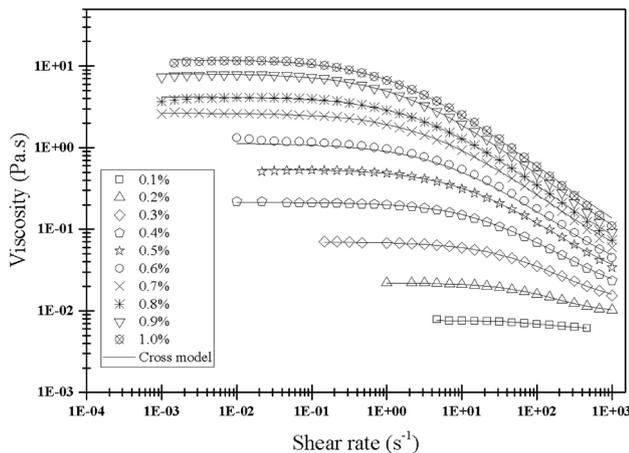


Fig. 3 Viscosity as function of shear rate curves of HEC solutions predicted by the Cross model

The flow curves of HEC solutions are well fitted by the well-known Cross model [10], which is expressed by:

$$\frac{\eta - \eta_{\infty}}{\eta_0 - \eta_{\infty}} = \frac{1}{1 + \lambda \dot{\gamma}^n} \quad (1)$$

where ( $\eta$ ) is the viscosity at any particular shear rate ( $\dot{\gamma}$ ), ( $\eta_0$ ) is the zero shear viscosity, ( $\eta_{\infty}$ ) is the infinite shear viscosity, ( $\lambda$ ) is a characteristic constant of time and ( $n$ ) is a dimensionless constant. These parameters are given in Table 2; on the one hand, it is clear that ( $\eta_0$ ), ( $\eta_{\infty}$ ) and ( $\lambda$ ) increase with increasing HEC concentration. This rise in these parameters can be attributed to the increase in the segment density. This behaviour can also be related to the formation of a three-dimensional network. At the highest HEC concentrations, the entanglements (local polymer-polymer interactions) increase; thus, an enhancement in the three parameters ( $\eta_0$ ,  $\eta_{\infty}$  and  $\lambda$ ) is observed, which means that these entanglements are the key factor responsible for the HEC solutions rheological behaviour. On the other hand, the index ( $n$ ) decreases, this parameter indicates a degree of dependence of viscosity on the shear rate in the shear thinning region and it tends to unity for increasing shear thinning behaviour.

The measurements in steady-state shear rheology have also allowed determining the intrinsic viscosity and the overlap concentration of HEC sample.

#### 3.1.1 Intrinsic viscosity determination

Intrinsic viscosity measurements of macromolecular solutions have been described in some detail elsewhere [15]. Numerous relationships are developed, which describe the intrinsic viscosity [ $\eta$ ] in terms of specific and inherent viscosities ( $\eta_{sp}$  and  $\eta_{inh}$ ). Among the more widely accepted of these are those attributed to Huggins [16]:

Table 2 Cross model parameters of HEC solutions

HEC (%)	$\eta_0$ (Pa s)	$\eta_{\infty}$ (Pa s)	$\lambda$ (s)	$n$ (-)	$R^2$
0.1	0.0076	0.0059	0.0016	1.3213	0.9724
0.2	0.0220	0.0090	0.0070	1.0498	0.9984
0.3	0.0695	0.0105	0.0290	0.8442	0.9991
0.4	0.2140	0.0121	0.0788	0.7603	0.9994
0.5	0.5450	0.0137	0.1352	0.7387	0.9983
0.6	1.1290	0.0142	0.2607	0.6961	0.9664
0.7	2.6450	0.0179	0.3778	0.7043	0.9996
0.8	4.1999	0.0182	0.4515	0.7102	0.9949
0.9	8.0900	0.0191	0.6470	0.7063	0.9973
1.0	12.0600	0.0194	0.7789	0.7054	0.9963

$$\frac{\eta_{sp}}{C} = [\eta] + k'[\eta]^2 C \tag{2}$$

where ( $k'$ ) is the Huggins constant, which for many polymers in benzene at 25 °C has the value  $0.4 \pm 0.1$  [26] and Kraemer [19]:

$$\frac{\ln \eta_r}{C} = [\eta] - k''[\eta]^2 C \tag{3}$$

where ( $k''$ ) is a constant, which has the value  $0.05 \pm 0.05$  for a wide range of soluble polymers.

It is also possible to determine  $[\eta]$  from the flow curve measurements. Firstly, the relative viscosity is measured as a function of polymer concentration by the following relationship:

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_s} \tag{4}$$

where ( $\eta_r$ ) is the relative viscosity, ( $\eta$ ) is the viscosity of the polymer solution and ( $\eta_s$ ) is the viscosity of the solvent.

From the relative viscosity ( $\eta_r$ ), one can obtain the specific and the inherent viscosities ( $\eta_{sp}$  and  $\eta_{inh}$ ) using the following relationships:

$$\eta_{sp} = (\eta_r - 1) \tag{5}$$

$$\eta_{inh} = \frac{\ln \eta_r}{C} \tag{6}$$

while from ( $\eta_{sp}$ ), it is possible to obtain the reduced viscosity ( $\eta_{red}$ ) by the following expressions:

$$\eta_{red} = \frac{\eta_{sp}}{C} \tag{7}$$

Because of the effects of non-ideality and/or associative phenomena, both ( $\eta_{red}$ ) and ( $\eta_{inh}$ ) will be concentration dependent [15]. So the intrinsic viscosity is defined as a limit of both ( $\eta_{red}$ ) and ( $\eta_{inh}$ ) as  $C \rightarrow 0$ :

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0}(\eta_{red}) = \lim_{c \rightarrow 0}\left(\frac{\eta_{sp}}{C}\right) \tag{8}$$

$$[\eta] = \lim_{c \rightarrow 0}(\eta_{inh}) = \lim_{c \rightarrow 0}\left(\frac{\ln \eta_r}{c}\right) \tag{9}$$

consequently, a plot of ( $\eta_{red}$ ) or ( $\eta_{inh}$ ) versus concentration allows determining the intrinsic viscosity by extrapolating a straight line to  $C = 0$ .

Figure 4 illustrates the results obtained for HEC sample. It can be seen that intrinsic viscosity of the studied HEC closes to  $1505 \text{ cm}^3/\text{g}$  ( $\sim 15.05 \text{ dl/g}$ ). Using this obtained value of  $[\eta]$ , it is possible to estimate a value of ( $k''$ ) of 0.0062 from Kraemer relationship, which is comprised in the range cited above.

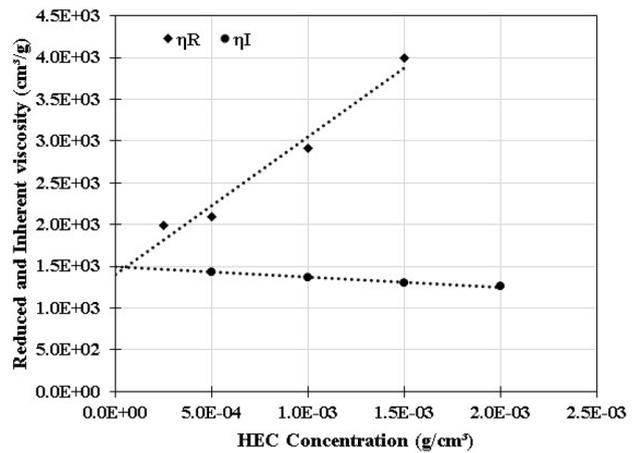


Fig. 4 Intrinsic viscosity determination of HEC sample using inherent and reduced viscosities

### 3.1.2 $[\eta]$ - $M_w$ relationship

It is well known that the molecular weight of polymers is the most important parameter that affects their rheological properties [14, 20]. In this fact, the determination of this parameter is crucial.

The relationship between the intrinsic viscosity and the molecular weight is given by the Mark–Houwink equation as follows:

$$[\eta] = kM^a \tag{10}$$

where ( $k$ ) and ( $a$ ) are constants for a given polymer in a particular solvent at a given temperature.

Brown et al. [2] have determined the ( $k$ ) and ( $a$ ) values for HEC sample in water at 25 °C, so Eq. (10) can be written using the determined ( $k$ ) and ( $a$ ) as follows:

$$[\eta] = 9.49 \times 10^{-5} M^{0.87} \tag{11}$$

using this equation, the molecular weight of the studied HEC is found to be  $9.5 \times 10^5 \text{ g/mol}$ . The obtained value shows that this sample is of high molecular weight, which can explain the greatest values of apparent viscosity, zero shear rate viscosity and infinite shear rate viscosity found in flow curve measurements.

### 3.1.3 Overlap concentration ( $C^*$ )

Various definitions of the overlap concentration can be found in the literature. According to Graessley [13], the overlap concentration is the concentration at which the average chain spacing is twice the radius of gyration at zero concentration: then  $C^* \sim 0.77/[\eta]$ . Assuming that the encompassed average spherical coil volumes in hexagonal packing give  $C^* \sim 1.1/[\eta]$  [27]; in contrast if the coils occupied the total available volume, it will result in  $C^* \sim 1.5/[\eta]$  [24].

The importance of the overlap concentration ( $C^*$ ) cannot be neglected because the changes in the rheological properties including the mechanism of viscosification are seen at concentrations greater than ( $C^*$ ). For  $C < C^*$ , the curvature of the flow lines around the individual polymer coils is responsible for the increase in viscosity, as opposed to  $C > C^*$  when the network composed of overlapping coils resists the flow [30].

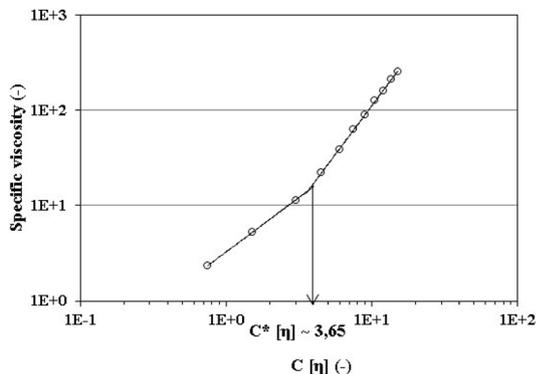
The overlap concentration ( $C^*$ ) can be determined using several methods. In this paper, this parameter is determined using two methods.

**a. Method 1**

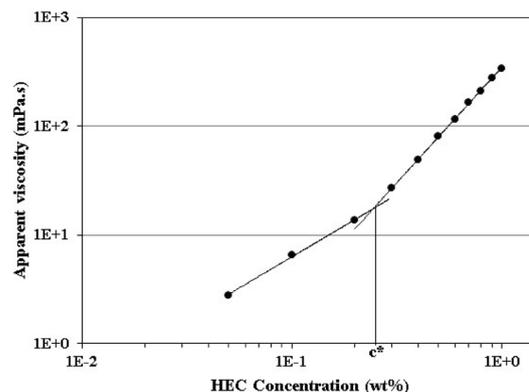
The result of ( $C^*$ ) determination using the intrinsic viscosity is shown in Fig. 5. This figure plots the specific viscosity ( $\eta_{sp}$ ) as a function of the overlap parameter ( $C \cdot [\eta]$ ). The result shows that the slope changes at a value of ( $C \cdot [\eta]$ ) close to 3.659 indicating the existence of a critical HEC concentration. Using the value of the intrinsic viscosity found above, this critical concentration is ( $C^* \sim 0.243\%$ ); at this concentration, a transition from the dilute to the semi-dilute network is appeared.

**b. Method 2**

In order to confirm the result obtained using method 1, another method is used to determine the overlap concentration of the studied HEC. In this method, ( $C^*$ ) is obtained by plotting the apparent viscosity versus polymer concentration at specific shear rate in logarithmic scale (Fig. 6). As can be seen in Fig. 6, two regions are easily identified, which refer to the dilute and semi-dilute regions. The overlap concentration is determined in this case by the intersection of the two slopes of apparent viscosity curves as a function of polymer concentration, which is plotted logarithmically. The obtained results are listed in Table 3. It can be noticed that the overlap concentration is very close to 0.24% at different shear rates, which confirms the previous result.



**Fig. 5** Overlap parameter as a function of specific viscosity at different concentrations of HEC solutions



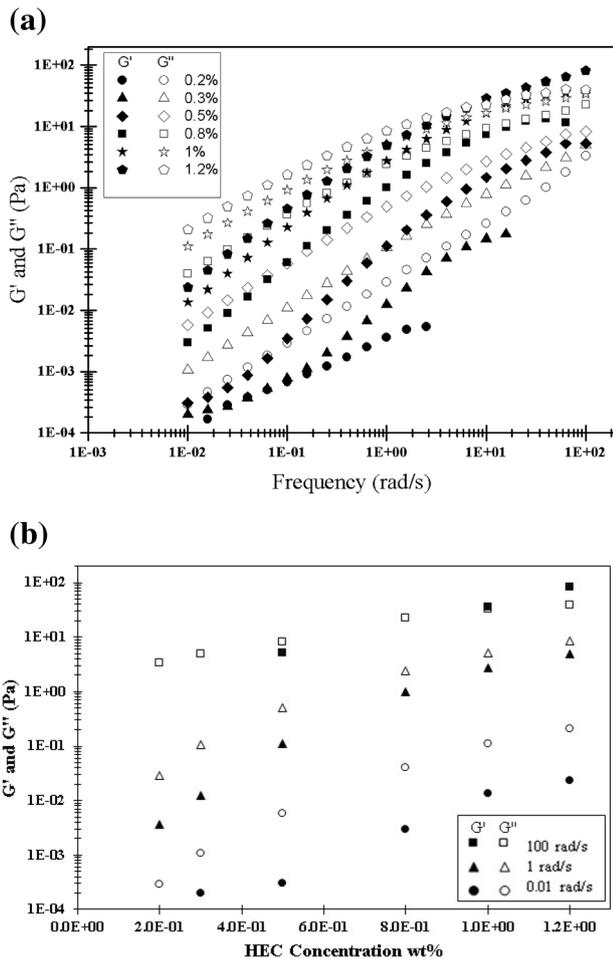
**Fig. 6** Overlap concentration of HEC sample at a shear rate of  $215 \text{ s}^{-1}$

**Table 3** Overlap concentration at different shear rates of HEC solutions

Shear rate ( $\text{s}^{-1}$ )	147	215	316	464
Overlap concentration (%)	0.237	0.244	0.240	0.235

**3.2 Oscillation measurements**

In order to analyse the linear viscoelastic properties of HEC sample, frequency experiments were carried out, which mean that the evolution of the storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) moduli as a function of frequency is studied. It is of great interest to examine the effect of HEC concentration on the changes of the relative position of ( $G'$ ) and ( $G''$ ). This relative position allows drilling engineers to determine whether the drilling fluid is liquid-like or solid-like in nature; in addition, one can conclude if there is a gelation mechanism from this position. This information is essential for mud engineers to develop and maintain the properties of drilling fluid to the required specifications. In Fig. 7a, it can be noticed that ( $G''$ ) remains greater than ( $G'$ ) for low HEC concentrations (0.2, 0.3, 0.5 and 0.8%). This means that the viscous behaviour is dominant than the elastic one, whereas for a concentration closes to 1% the viscoelastic behaviour of HEC solutions changes and becomes more complex. From the concentration of 1%, two regimes of frequency can be distinguished. At high frequencies the elastic behaviour is dominant ( $G' > G''$ ), while at low frequencies ( $G''$ ) becomes greater than ( $G'$ ) indicating a return to the viscous behaviour of HEC solutions. This change demonstrates that polymer network is transient rather than permanent at higher concentrations and that rearrangement and hence bulk flow can occur when the oscillation period is long relative to the lifetime of molecular interaction [24]. Other polymers exhibit similar behaviour and is generally attributed to entanglement of polymer coils [3, 11, 12]. The transition from elastic to



**Fig. 7** **a** Sweeping in frequency curves of HEC solutions for different concentrations. **b** Variation of storage and loss moduli as a function of HEC concentration at different frequencies

viscous response passes through a point of intersection [ $G'(w) = G''(w)$ ], which corresponds to a characteristic time. This characteristic time refers to a relaxation, which becomes more difficult with increasing in concentration due to the increased segment density [7]. It can also be noticed that the intersection point [ $G'(w) = G''(w)$ ] shifts to lower frequencies as the concentration increases, i.e. the intersection point is marked at  $w \sim 6.5$  rad/s and at  $w \sim 10.2$  rad/s for a concentration of 1.2 and 1%, respectively. Finally, based on the obtained results, it can also be noticed that the concentration of 1%, which corresponds to the changes in the viscoelastic properties of HEC solutions, can refer to another critical concentration ( $C^{**}$ ). This critical concentration ( $C^{**}$ ) delimitates two different states of the polymer solution, semi-dilute network and concentrated network solution [14]. To confirm that 1% represents ( $C^{**}$ ), ( $G'$ ) and ( $G''$ ) are represented as

a function of HEC concentration at different frequencies, 0.01, 1 and 100 rad/s (Fig. 7b). It is clear that a transition appears at HEC concentration closes to 1% at the highest frequencies (100 rad/s), where the storage modulus is found to be higher than the loss modulus. Thus, the critical concentration ( $C^{**}$ ) can be considered as the concentration at which an appearance of the viscoelastic properties in the polymer solutions is observed.

### 4 Conclusion

The rheological properties of HEC solutions have been discussed in linear and nonlinear domains in relation to concentration and shear rate. It was found that the behaviour of these solutions exhibits a Newtonian plateau at low shear rates followed by a shear thinning one at high shear rates. The experimental data were well fitted using the Cross model. The increase in Cross parameters such as zero shear rate viscosity, infinite shear rate viscosity and the characteristic time constant with the increase in HEC concentration was attributed to the increase in segment density. The experimental data obtained in steady-state shear rheology allowed estimating an intrinsic viscosity of the HEC sample in distilled water, which close to 15.05 dl/g. From this value of intrinsic viscosity and using the Mark–Houwink relationship, the molecular weight of the studied sample was determined. The sample had a high molecular weight  $9.5 \times 10^5$  g/mol, which was in good agreement with the rheological properties (viscosity–molecular weight dependent). The estimated overlap concentration using  $\eta_{sp} = f(C.[\eta])$  and  $\eta_{app} = f(C)$  curves was the same  $\sim 0.24\%$ .

The oscillatory measurements showed that HEC solutions exhibit an elastic behaviour at high frequencies at concentration close to 1%; this concentration separates between the semi-dilute and concentrated network of HEC solutions.

Finally, based on the results of this study, it is recommended to use a concentration, which belongs to the semi-dilute region for HEC applications in drilling fluid. This concentration gives a sufficient viscosity to transport and suspend cuttings. In addition, the oscillatory measurements confirmed the non-gel state for concentrations in the semi-dilute region. Thus, it is easy to pump the fluid downhole and up to the surface. In contrast, the viscosity of dilute solutions is not adequate to ensure the function of cuttings transport, and the gel state for the concentrated solutions remains the fluid pumping difficult and can cause the problem of stuck pipes.

## References

1. Beheshti N, Nguyen GTM, Kjøniksen A-L, Knudsen KD, Nyström B (2006) Structure and dynamics of aqueous mixtures of an anionic cellulose derivative and anionic or cationic surfactants. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 279:40–49
2. Brown W, Henley D, Öhman J (1963) Studies on cellulose derivatives. Part II. The influence of solvent and temperature on the configuration and hydrodynamic behaviour of Hydroxyethyl cellulose in dilute solution. *Makromol Chem* 64:49–67
3. Bueche F (1962) *Physical properties of polymers*. Interscience, New York
4. Carico RD, Bagshaw FR (1978) Description and use of polymers used in drilling, work-overs and completions. Paper SPE 7747 presented at the SPE production technology symposium, Hobbs, NM
5. Castelain C, Doublier JL, Lefebvre J (1987) A study of the viscosity of cellulose derivatives in aqueous solutions. *Carbohydr Polym* 7:1–16
6. Chatterji J, Borchardt JK (1981) Applications of water-soluble polymers in the oil field. *JPT* 2042–2056
7. Clasen C, Kulicke W-M (2001) Determination of viscoelastic and rheo-optical material function of water-soluble cellulose derivatives. *Prog Polym Sci* 26:1839–1919
8. Cole RC, Ali SA, Foley KA (1995) A new environmentally safe crosslinked polymer for fluid-loss control. Paper SPE 29525 presented at the SPE production operations symposium, Oklahoma City
9. Cornett JE (1977) Polymer-Brine mud speeds austin well. *Petroleum Engineer*
10. Cross MM (1965) Rheology of non-Newtonian fluids: a new flow equation for pseudoplastic systems. *J Colloid Sci* 20:417–437
11. Ferry JD (1970) *Viscoelastic properties of polymers*. Wiley, New York
12. Graessley WW (1974) The entanglement concept in polymer rheology. *Advances in polymer science*, vol 16. Springer, Berlin
13. Graessley WW (1980) Polymer chain dimensions and the dependence of viscoelastic properties on concentration, molecular weight and solvent power. *Polymer* 21:258–262
14. Grigorescu G, Kulicke W-M (2000) Prediction of viscoelastic properties and shear stability of polymers in solution. *Adv Polym Sci* 152:1–40
15. Harding SE (1997) The intrinsic viscosity of biological macromolecules, Progress in measurement, interpretation and application to structure in dilute solution. *Prog Biophys Mol Biol* 68(2/3):207–262
16. Huggins ML (1942) The viscosity of dilute solutions of long-chain molecules. IV. Dependence on concentration. *J Am Chem Soc* 64(11):2716–2718
17. Hasani M, Cranston ED, Westmana G, Gray DG (2008) Cationic surface functionalization of cellulose nanocrystals. *Soft Matter* 4:2238–2244
18. Kang K, Lee LJ, Koelling KW (2005) High shear microfluidics and its application in rheological measurement. *Exp Fluids* 38:222–232
19. Kraemer E (1938) Molecular weights of celluloses and cellulose derivatives. *Ind Eng Chem* 30(10):1200–1203
20. Kulicke W-M, Kniewske R (1984) The shear viscosity dependence on concentration, molecular weight, and shear rate of polystyrene solutions. *Rheol Acta* 23:75–83
21. Lacey ES, and Wells PC (1979) Prevent formation damage. *Drilling-DCW* 46
22. Laschet M, Plog JP, Clasen C, Kulicke W-M (2004) Examination of the flow behaviour of HEC and hmHEC solutions using structure–property relationships and rheo-optical methods. *Colloid Polym Sci* 282:373–380
23. Maleki A, Kjøniksen A-L, Knudsen KD, Nyström B (2006) Dynamical and structural behavior of hydroxyethyl cellulose hydrogels obtained by chemical gelation. *Polym Int* 55:365–374
24. Morris ER, Rees DA, Welsh EJ (1980) Conformation and dynamic interactions in hyaluronate solutions. *J Mot Biol* 138:383–400
25. Oppong FK, de Bruyn JR (2010) Microrheology and dynamics of an associative polymer. *Eur Phys J E* 31:25–35
26. Rodriguez F (1983) *Principles of polymer systems*. Chemical engineering series. McGraw-Hill, New York
27. Simha R, Zakin JL (1960) Compression of flexible chain molecules in solution. *J Chem Phys* 33:1791
28. Tiner R (1976) Polymers and their use in the oilfield. In: *Proceedings of Southwestern petroleum short course*, Lubbock, TX
29. Tuttle RN, and Barkman JH (1974) New non-damaging and acid-degradable drilling and completion fluids. *JPT* 1221–1226
30. Vadodaria SS, English RJ (2016) Aqueous solutions of HEC and hmHEC: effects of molecular mass versus hydrophobic associations on hydrodynamic and thermodynamic parameters. *Cellulose* 23:1107–1121
31. Wang W, Li F, Yu J, Navard P, Budtova T (2015) Influence of substitution on the rheological properties and gelation of hydroxyethyl cellulose solution in NaOH–water solvent. *Carbohydr Polym* 124:85–89

# *Rheological studies and optimization of Herschel–Bulkley parameters of an environmentally friendly drilling fluid using genetic algorithm*

**Hocine Ouaer, Mourad Gareche & Reza Rooki**

**Rheologica Acta**

ISSN 0035-4511

Volume 57

Number 11

Rheol Acta (2018) 57:693-704

DOI 10.1007/s00397-018-1110-z



**Your article is protected by copyright and all rights are held exclusively by Springer-Verlag GmbH Germany, part of Springer Nature. This e-offprint is for personal use only and shall not be self-archived in electronic repositories. If you wish to self-archive your article, please use the accepted manuscript version for posting on your own website. You may further deposit the accepted manuscript version in any repository, provided it is only made publicly available 12 months after official publication or later and provided acknowledgement is given to the original source of publication and a link is inserted to the published article on Springer's website. The link must be accompanied by the following text: "The final publication is available at [link.springer.com](http://link.springer.com)".**



# Rheological studies and optimization of Herschel–Bulkley parameters of an environmentally friendly drilling fluid using genetic algorithm

Hocine Ouaer<sup>1</sup> · Mourad Gareche<sup>1</sup> · Reza Rooki<sup>2</sup>

Received: 13 March 2018 / Revised: 18 July 2018 / Accepted: 3 September 2018 / Published online: 17 September 2018  
© Springer-Verlag GmbH Germany, part of Springer Nature 2018

## Abstract

The Herschel–Bulkley rheological parameters of an environmentally friendly drilling fluid formulated based on an Algerian bentonite and two polymers—hydroxyethyl cellulose and polyethylene glycol—have been optimized using a genetic algorithm. The effect of hydroxyethyl cellulose, temperature, pH and sodium chloride (NaCl) on the three-parameter Herschel–Bulkley model was also studied. The genetic algorithm technique provided improved rheological parameter characterization compared to the nonlinear regression, especially in the case of drilling fluids formulated with sodium chloride making it a better choice. Furthermore, the oscillatory test offered more reliable yield stress values. The rheological parameters were found to be very sensitive to different conditions. Yield stress and consistency index increased with increasing the hydroxyethyl cellulose concentration, reaching maximum at a temperature of 65 °C and decreased with decreasing pH and also when adding sodium chloride to the drilling fluid. The flow index changed inversely to yield stress and consistency index. The physical origins of these changes in rheological parameters were discussed and correlation between variation in rheological parameters and bentonite suspension properties were concluded. Based on these results, it is recommended to use the proposed formulation of drilling fluid at high temperature and when the formation of alkaline pH is encountered due to the gelation mechanism and to select the optimum concentration of NaCl to avoid degradation of the rheological parameters.

**Keywords** Drilling fluid · Herschel–Bulkley · Genetic algorithm · Bentonite · Hydroxyethyl cellulose · Polyethylene glycol

## Introduction

At the early time, bentonite suspensions are widely used as drilling fluids due to their excellent rheological properties (Bourgoyne et al. 1991; Jung et al. 2011; Li et al. 2015; Temraz and Hassanien 2016; Gareche et al. 2016). These suspensions form a thick cake on the wall of the wellbore and reduce fluid loss in variable permeability formations. However, to form an effective filter cake, considerable amounts of bentonite must be used, resulting in a relatively high total solid content that in turn can cause formation damage, reduce the drilling operations productivity, and result in differential

sticking (Fan et al. 2014; William et al. 2014; Anyanwu and Mustapha Unubi 2016; Song et al. 2016). These bentonite mud limitations require the use of various drilling fluid additives to ensure the performance of this fluid. Inappropriately, use of additives can result in more drilling problems. This is due, on the one hand, to the additive incompatibility with other components in the mud and, on the other hand, to a direct effect on mud properties. Water-soluble polymers are among drilling fluid additives, but the nontoxic, degradable, and environment-friendly ones are the best choice to be used (Kok 2009, 2013). Small amounts can already give the drilling fluid the required viscosity to transport drilling cuttings from the wellbore to the surface. When these additives are introduced in mud, bentonite amount can be reduced and consequently drilling becomes more efficient. Hydroxyethyl cellulose (HEC) is one of the water-soluble polymers, which offers a range of advantages for growth as the primary drilling fluid colloid and should experience increased utilization (Malone and Raines 1979). It is used primarily for viscosity and fluid-loss-control in drilling and completion fluids (Raines 1986; Arisz and Lusvardi 2006) and it is generally accepted as

✉ Hocine Ouaer  
ouaerhoci91@gmail.com

<sup>1</sup> Laboratoire Génie Physique des Hydrocarbures, Faculté des Hydrocarbures et de la Chimie, Université M'Hamed Bougara de Boumerdes, Boumerdes, Algeria

<sup>2</sup> Birjand University of Technology, Birjand, Iran

polymer fluid leading to minimal permeability damage during drilling and completion operations (Cole et al. 1995). This polymer creates foam if added to the bentonite suspensions above the critical concentration leading to undesirable fluid effects that can be mitigated by the addition of polyethylene glycol (PEG) of intermediate molecular weight to the system (Glass 1985). This polymer is effective for preventing foam and syneresis if introduced in the bentonite/HEC system (Glass 1985). A literature survey shows that the new system (bentonite/HEC/PEG) performs very well, resulting in high drilling rate, high viscosity, low fluid loss, and such properties in a saline well environment (Glass 1985).

In the petroleum industry, information on the rheological behavior of drilling fluids is of paramount importance to ensure the success of drilling operations. The combination of rheological models with practical experience is required to have a near-optimum rheological characterization and a better insight into the overall fluid performance. Drilling fluid specialists have comprehensively investigated and generated various rheological models to describe the rheological behavior of the drilling fluid such as the Bingham model (Briscoe et al. 1994), the power law model (Walker and Korry 1974), the Herschel–Bulkley model (Alderman et al. 1988; Kenny et al. 1994), and the Casson and the Robertson–Stiff models (Kelessidis and Maglione 2006). Among these models, the Herschel–Bulkley best describes the drilling fluids rheological behavior (Fordham et al. 1991; Hemphil et al. 1993; Maglione and Ferrario 1996; Maglione and Romagnoli 1998; Kok et al. 2000). However, due to the complexity of obtaining the three-parameter Herschel–Bulkley (H–B) model, it was not used very often in the past (Nguyen and Boger 1983; Hemphil et al. 1993). This model is characterized by three parameters and it is described as follows:

$$\tau = \tau_c + k \dot{\gamma}^n \quad (1)$$

where ( $\tau$ ) is the shear stress (Pa), ( $\tau_c$ ) is the yield stress (Pa), ( $k$ ) is the consistency index ( $\text{Pa}\cdot\text{s}^n$ ), ( $\dot{\gamma}$ ) is the shear rate ( $\text{s}^{-1}$ ), and ( $n$ ) is the flow index. The H–B model parameters are generally estimated using nonlinear regression (NL). This regression generally gives the optimum parameters with the highest correlation coefficient, but in certain cases, it results in a physically meaningless negative value of the yield stress (Rooki et al. 2012). In these cases, the use of genetic algorithm (GA) to optimize the rheological model parameters is necessary. GA provides better solutions than the nonlinear regression and it always results in optimal and physically acceptable solutions.

The GA was used by Chauduri et al. (2005, 2006) to determine the H–B and the Bingham-plastic rheological parameters of magneto-rheological fluids, but they did not compare the obtained results with other methods. Rooki et al. (2012) had also used GA to optimize the H–B rheological parameters of drilling fluids, but they did not explain the physical meaning of the obtained rheological parameters and did not specify the

formulation of the drilling fluid. Recently, Chauhan et al. (2018) had studied and optimized the H–B rheological parameters of a viscous karaya polymer used in hydraulic fracturing using GA and particle swarm optimization (PSO) and they had found that the two techniques could be used as a complete package to solve problems like optimization of yield stress using H–B modeling.

The main objective of this work is to optimize the H–B rheological parameters of an environmentally friendly drilling fluid formulated based on an Algerian bentonite and two water-soluble polymers, namely, HEC with high molecular weight ( $\sim 9.5 \times 10^5$  g/mol) and PEG with molecular weight,  $M_w = 6000$  g/mol. Simple GA is used to estimate the H–B rheological parameters of the environmentally friendly drilling fluid and the results are compared with those obtained from the NL method to prove the effectiveness of these solutions. Furthermore, the estimated yield stress values in the case of drilling fluid formulated with sodium chloride (NaCl) are compared with those obtained from the oscillatory sweep experiments for validation. Steady state and dynamic shear behavior have been studied at different HEC concentration, different temperatures, different pH value, and different NaCl concentration. These studies are chosen to find the suitability of bentonite/HEC/PEG for drilling fluid applications and to estimate its yield stress from the steady state shear data and the oscillatory measurements. To our knowledge, it is the first time that the rheological behavior of the drilling fluid (bentonite + HEC + PEG) under the different conditions is studied.

## Experimental

### Materials

A bentonite sample obtained from an Algerian field (Mostaganem, M'zila) is the constitute material of this study. X-ray fluorescence (XRF) analysis of the studied bentonite is carried out to determine the chemical composition and the results show that the major components are 60.49%  $\text{SiO}_2$ , 13.87%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 3.14%  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , 3.95%  $\text{CaO}$ , 2.37%  $\text{MgO}$ , 0.24%  $\text{SO}_3$ , 1.69%  $\text{K}_2\text{O}$ , 3.54%  $\text{Na}_2\text{O}$ , 0.08%  $\text{P}_2\text{O}_5$ , and 0.29%  $\text{TiO}_2$ . The particle size of the bentonite sample is less than 70  $\mu\text{m}$ .

Two water-soluble polymers, namely, HEC with high molecular weight ( $\sim 9.5 \times 10^5$  g/mol) (Ouaer and Gareche 2018) and PEG with  $M_w = 6000$  g/mol, are used as additives to the bentonite suspensions for many purposes such as controlling the bentonite suspension rheological behavior, preventing foam and syneresis, and performing an ideal environmentally friendly drilling fluid.

HEC is a water-soluble polymer considered as a cellulose derivative. It is used as an additive to the bentonite suspensions for controlling the rheological behavior of these suspensions.

This polymer is supplied by M-I Drilling Fluids UK Ltd. It is a cellulose ether, which is essentially non-ionic in nature and is widely used as a rheology modifier or stabilizer in drilling, completion, and work-over fluids with good environmental acceptability (Zhang and Sun 1999; Juppe et al. 2003).

PEG is a water-soluble polymer of the polyether family. It is supplied by Acros Organics. This polymer is also non-ionic in nature. It is used in drilling fluids principally for inhibiting shale and gas-hydrate formation (Hao 2011; Jiang et al. 2011). In addition, it prevents foam and syneresis in the bentonite/HEC system. It was reported in the literature (Melbouci 2013) that PEG is an environmentally friendly material.

## Methods

Given that the way of preparation has a great effect on the final state of drilling fluids, and thus on their rheological behavior, all tests were carefully performed under the same conditions to allow for comparison of the results.

Drilling fluids were formulated as follows: in the first step, a 3 wt% of bentonite powder was immersed slowly in distilled water under continuous stirring to achieve the best swelling of bentonite and to well disperse these particles of clay in water. After 4 h of agitation, HEC powder of different concentrations ranged from 0.2 to 0.6 wt% was added to the mixture and a 0.2 wt% of PEG was also introduced into the system to avoid foam and syneresis phenomena. The obtained mixture was then mechanically agitated at 450 RPM for 20 h.

In the case of drilling fluids, which contain NaCl, this latter was added firstly to distilled water with concentrations ranged from 0.5 to 2.0 wt%. After this, the same procedure was followed to prepare the drilling fluids.

For pH adjustment, it was noted that the initial or the natural pH of the sample (3 wt% bentonite + 0.5 wt% HEC + 0.2 wt% PEG) was 10.29. To adjust this value, droplets of HCl or NaOH of 0.1 N were added to the suspension and pH values were measured with a pH meter (HANNA instruments, HI 2211) with a glass rod and a precision 0.01/unit of pH.

Rheological measurements were carried out using a controlled-stress rheometer (Anton Paar-Physica MCR-301) equipped with coaxial cylinder geometry ( $R_c = 14.464$  mm,  $R_i = 13.325$  mm,  $h = 39.997$  mm) at a controlled temperature of  $25 \pm 0.1$  °C and atmospheric pressure.

The flow curves were obtained by applying an increasing shear stress ramp at 20 s for each stage and were measured at a shear rate ranging from  $10^{-3}$  to  $10^3$  s<sup>-1</sup>. For temperature sweep, measurements were carried out at different temperatures ranged from 25 to 75 °C and they were started after achieving the temperature equilibrium.

The dynamic stress sweep curves were obtained by measuring the evolution of the complex modulus ( $G^*$ ), which is the property of viscoelastic materials as a function of stress ranging from 0.01 to 100 Pa at a given frequency of 10 rad/s.

Before each test, the samples were gently stirred for 20 min, afterwards, the suspensions were carefully loaded to the measuring geometry of the rheometer. In the measurement geometry, samples were also subjected to a preshear of  $1000$  s<sup>-1</sup> then they were left at rest for 60 s to have the same structural state of reference.

## Herschel–Bulkley rheological parameters estimation using GA

### GA technique description

GA was an approach used in different industries with the goal of optimizing problems. It was developed for the first time by Holland (1975) for the design and the performance of robust adaptive systems (Michalewicz 1996), and uses the principle of natural genetics and natural selection as a working mechanism. GA solved highly nonlinear functions by finding the optimal solutions with large parameter space based on probability inversely to the conventional methods, including the nonlinear regression (NL), which used deterministic transition rules (Goldberg 1989; Man et al. 1996).

As shown in Fig. 1, GA starts with population solution initialization followed by selection and reproduction (crossover and mutation) stages. Firstly, an initial population representing numerous individual solutions is generated. Individual solutions are selected in a stochastic manner and according to their

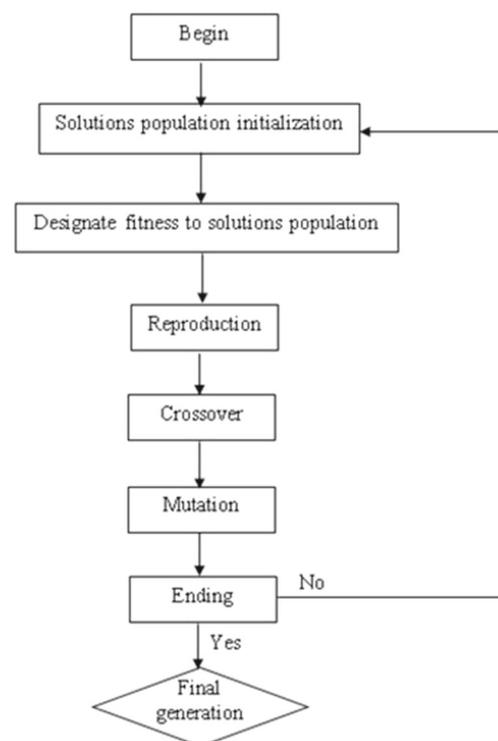


Fig. 1 Genetic algorithm flowchart

fitness values, which are calculated from the objective function of the given problem and endure genetic operators (cross over and mutation) to produce a new generation. The sum of square errors is used as an objective function and the reciprocal of this objective function corresponds to the fitness. Two new individuals are produced by crossover operator. In this process, individuals are randomly organized in couples and randomly cut and split. In order to avoid getting stuck in local minima, mutation process injects periodically new genetic information. During this process, design solutions are selected and those with weaker fitness are discarded. Over a number of generations, an artificial evolution of the population is expected and the near optimal solution will be touched. According to Goldberg (1989), Man et al. (1996), and Michalewicz (1996), the generation process must be repeated until a convergence is obtained or a fixed number of generations is reached.

In this work, global optimization is applied using GA toolbox to a population derived from rheometric data (shear stress–shear rate) for various drilling fluid formulations in Matlab multipurpose software in order to obtain the H–B model rheological parameters. Shear rate, shear stress data generated experimentally, serves as input to the algorithms set to determine the three H–B parameters ( $\tau_c$ ,  $k$ , and  $n$ ) with a population size of 20 and the method of determination of the next population is selected in the toolbox as default, crossover method. In the toolbox, the GA parameters are changed automatically until reaching the optimum results. For fit goodness for GA modeling, the sum of square errors (SSE) is used as an objective function, it is formulated as follows:

$$SSE = \sum_1^N (\tau_i - \hat{\tau}_i)^2 \tag{2}$$

This objective function is subjected to the conditions,  $\tau_c$ ,  $k$ , and  $n \geq 0$ , with  $(\tau_i)$  and  $(\hat{\tau}_i)$  indicate the measured and predicted shear stress respectively and  $(N)$  is the number of data points. In addition to the sum of square errors, the correlation coefficient ( $R^2$ ) is also used as another statistical indicator, it is defined by:

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_1^N (\tau_i - \hat{\tau}_i)^2}{\sum_1^N (\hat{\tau}_i - \bar{\hat{\tau}}_a)^2} \tag{3}$$

with  $(\bar{\hat{\tau}}_a)$  being the mean predicted shear stress for each sample.

**Data analysis**

GA technique is used to optimize the H–B rheological parameters; the obtained results are compared to those of the NL technique. There are four analyzed data according to the drilling fluid formulation. The first data is for drilling fluids

formulated with different HEC concentration, the second is for drilling fluids subjected to different temperature, the third is for drilling fluids with different pH value, and the fourth is for drilling fluids with different sodium chloride concentration. For the three first analyzed data, the NL technique gives positive yield stresses, consequently the GA is used in this case to test its validity, whereas for the fourth analyzed data, the NL gives negative yield stresses, so the GA is used in this case to estimate optimal solutions and approach to the reality. The comparison between the two techniques is made by calculating the correlation coefficient ( $R^2$ ) and the sum of square errors (SSE). For validation, the estimated yield stress values using GA for the fourth analyzed data are compared with those obtained from the oscillatory sweep experiments.

**Results and discussion**

**The HEC concentration effect on the H–B rheological parameters estimated using GA**

The samples used in this section are formulated with different HEC concentrations ranging from 0.2 to 0.6 wt%. Figure 2 shows the flow curves of these samples fitted to the H–B model using GA and NL techniques. It can be observed that the HEC addition to the basic suspension (3% bentonite + 0.2% PEG) allows increasing the shear stress. This enhancement of shear stress is attributed to the highly entangled HEC, which can hold bentonite particles and consequently a flexible three-dimensional network is formed throughout the fluid system.

The H–B rheological parameters determined using GA and NL techniques are shown in Table 1. These techniques give the same parameters. From these results, it is obvious that the

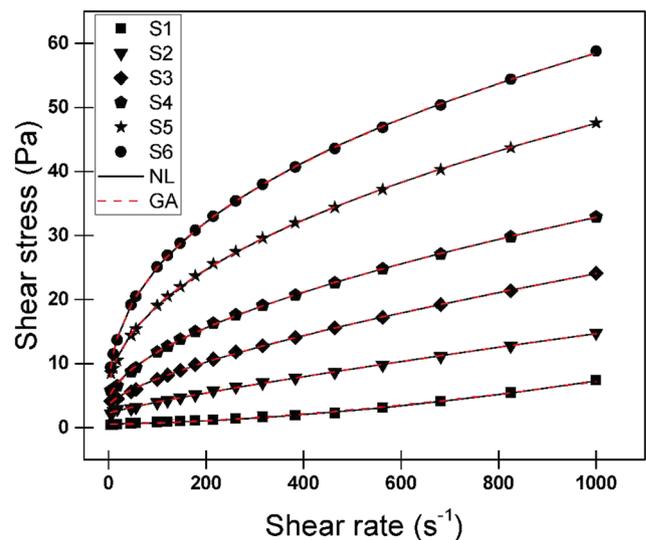


Fig. 2 Superposition of rheological data and H–B model curves obtained from using NL and GA method for samples S1–S6

**Table 1** The H–B rheological parameters derived from GA and NL techniques for samples S1–S6

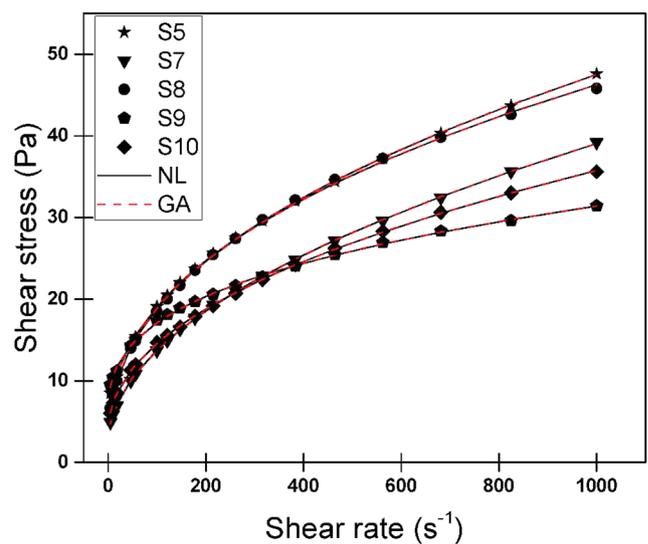
Sample and methods	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$	SSE (Pa <sup>2</sup> )
S1 (3% bent + 0.2% PEG)					
NL	0.6248	5.30E-05	1.6997	0.9966	0.2194
GA	0.5542	1.27E-04	1.5723	0.9955	2.85E-01
S2 (3% bent + 0.2% PEG + 0.2% HEC)					
NL	2.2022	0.0369	0.8433	0.9989	0.2477
GA	2.2022	0.0369	0.8433	0.9989	2.47E-01
S3 (3% bent + 0.2% PEG + 0.3% HEC)					
NL	3.4127	0.1767	0.6892	0.9993	0.4458
GA	3.4129	0.1767	0.6892	0.9993	0.4458
S4 (3% bent + 0.2% PEG + 0.4% HEC)					
NL	3.8945	0.5898	0.5636	0.9994	0.6478
GA	3.8941	0.5899	0.5636	0.9994	0.6475
S5 (3% bent + 0.2% PEG + 0.5% HEC)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
GA	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S6 (3% bent + 0.2% PEG + 0.6% HEC)					
NL	2.7606	3.5431	0.3990	0.9999	0.3323
GA	2.7608	3.5431	0.3990	0.9999	0.3308

yield stress ( $\tau_c$ ) and consistency index ( $k$ ) increase with increasing the HEC concentration, except for 0.6 wt% of HEC where a decrease in yield stress is observed. In contrast to the flow index ( $n$ ), which decreases. The increase in ( $\tau_c$ ) and ( $k$ ) is due to entanglements of HEC macromolecules, which are adsorbed onto the clay surface. This adsorption favors either flocculation or steric stabilization of the bentonite/PEG/HEC system (Tunc and Duman 2008). Due to its high molecular weight, HEC acts as a flocculant (Al-Marhoun and Rahman 1988). Consequently, either a bridging phenomenon of the HEC molecules between the bentonite particles or interpenetration of the adsorbed polymer layers appears (Tadros 1996; Zhou et al. 2001). These phenomena keep high yield stress values. The decrease in yield stress for 0.6 wt% HEC may be due to the predomination of polymer solution rheological behavior. The decrease in flow index to values < 1 indicates that HEC addition to the bentonite/PEG system can transform the fluid behavior from dilatant to non-Newtonian, and then to shear thinning.

**Temperature effect on the H–B rheological parameters estimated using GA**

In order to highlight the temperature effect on the three H–B rheological parameters, a drilling fluid formulation (S5) is chosen. The flow curves of this formulation (Fig. 3) are obtained at different temperatures ranging from 25 to 75 °C. It can be seen that shear stresses converge at low shear rate and they are different for high shear rate at least for the temperatures tested.

Table 2 shows the H–B model parameters evolution as a function of temperature. The two techniques (GA and NL) give the same values of these parameters. It is found that the yield stress decreases with increasing temperature to 55 °C. This yield stress reaches maximum at 65 °C and it tends to decrease after this value of temperature. On the one hand, the decrease in yield stress indicates system deflocculating. On the other hand, the increase of this parameter shows that flocculation occurs (Annis 1967). These observations indicate also that the thermal behavior of the mixture is controlled by



**Fig. 3** Superposition of rheological data and H–B model curves obtained from using NL and GA method for samples S7–S10

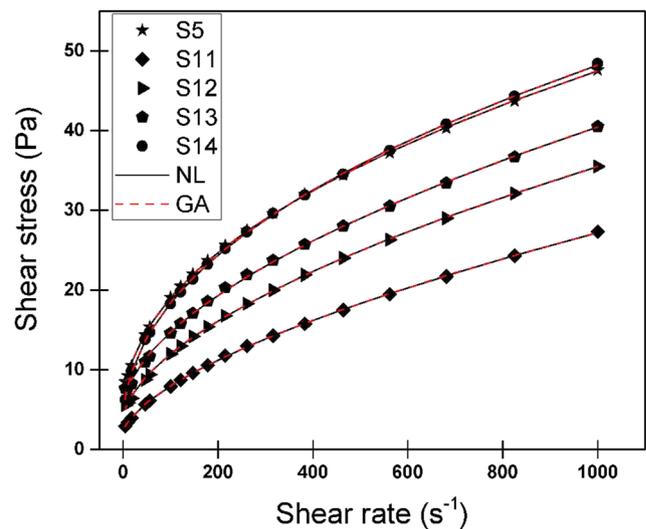
**Table 2** The H–B rheological parameters derived from GA and NL techniques for samples S7–S10

Sample and methods	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa·s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$	SSE (Pa <sup>2</sup> )
S5 ( $T=25$ °C)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
GA	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S7 ( $T=35$ °C)					
NL	2.3610	1.0930	0.5086	0.9999	0.1865
GA	2.3613	1.0930	0.5086	0.9999	0.1865
S8 ( $T=55$ °C)					
NL	1.2697	2.7016	0.4072	0.9994	1.3508
GA	1.2696	2.7016	0.4072	0.9994	1.3497
S9 ( $T=65$ °C)					
NL	4.7866	2.6452	0.3341	0.9991	0.6430
GA	4.7856	2.6457	0.3341	0.9991	0.6426
S10 ( $T=75$ °C)					
NL	3.3830	1.3395	0.4610	0.9999	0.1433
GA	3.3830	1.3395	0.4610	0.9999	0.1433

HEC, this polymer as other cellulose derivatives, have a characteristic temperature denoted gelation region or cloud point. At this temperature, phase separation occurred for polymer and it comes more resistant to flow. The increase in temperature leads to a rise of hydrophobic interactions between macromolecular chains, which results in a modification of the macromolecules internal structure around the critical temperature, hence the occurrence of phase separation. Otherwise, the decrease in yield stress until a certain point of temperature beyond which this yield stress increases dramatically can be attributed to an increase of the molecular free volume and a simultaneous decrease in intermolecular and/or intramolecular interactions (Abraham et al. 2008; Gentile et al. 2010; Bahlouli et al. 2013). While, the decrease in yield stress again above a temperature of 65 °C demonstrates the destruction of the gel structure. It has been established in the literature that the cloud point is between 60 and 80 °C for each polymer and for carboxymethyl cellulose (CMC) solutions and between 40 and 60 °C for bentonite-CMC dispersions (Benslimane et al. 2016), which is in good agreement with our results. As a conclusion, the increase in yield stress for a temperature of 65 °C (gelation temperature) is due to a gelation mechanism. For the flow index, it reaches minimum at this temperature (65 °C), which explains that the fluid becomes more shear thinning at this value of temperature.

### pH effect on the H–B rheological parameters estimated using GA

Figure 4 represents flow curves of sample (S5) with pH adjustment fitted to the H–B model using GA and NL

**Fig. 4** Superposition of rheological data and H–B model curves obtained from using NL and GA method for samples S11–S14

techniques. From these results, one can notice that shear stresses decrease with decreasing pH value of the sample and it reaches minimum at pH = 3.64.

The H–B rheological parameters derived from GA and NL techniques of the samples (S11–S14) are mentioned in Table 3, the same results are obtained using these two techniques. The yield stress and consistency index are lowest in the low pH region of between 3 and 7. Then, this yield stress rises to a maximum at pH = 8.44 while the consistency index reaches its maximum at pH = 12.01. Whereas, the flow index increases in the low pH region and it decreases in the other pH region. Other authors (Kelessidis et al. 2007), have found that maximum yield stress is located at pH = 8.7 and pH between 8.6 and 8.9 for 5% and 6.42% of bentonite dispersions, respectively, and they have also found that very high values of ( $k$ ) are observed for the highest pH value of about 10.5 for these bentonite dispersions. The location of maximum yield stress and the consistency index at high pH values can be explained as follows, the studied bentonite contains a relatively high CaO content of 3.95 wt%. Soluble Ca<sup>2+</sup> ions will push the maximum yield stress location to an alkaline pH due to the formation of Ca<sup>2+</sup> hydrolysis product bridging the particles more strongly (Mpofu et al. 2003; Avadiar et al. 2014; Zhu et al. 2016) and exchanging with Na ions to form a non-swelling Ca-montmorillonite (Au and Leong 2016). The authors, Laribi et al. (2006), have attributed the maximum yield stress location at pH of 7.0 and 8.5 to EE (edge-to-edge) association between positive and negative edges. However, other researchers reported and suggested the band like structures resulting from FF (face-to-face) association, which gives larger flakes and stronger gels (Norrish 1954; Callaghan and Ottewill 1974; de Kretser et al. 1998; Luckham and Rossi 1999; Duran et al. 2000; Tombácz and Szekeres 2004). Basing on these results, it can be concluded that alkaline pH

**Table 3** The H–B rheological parameters derived from GA and NL techniques for samples S11–S14

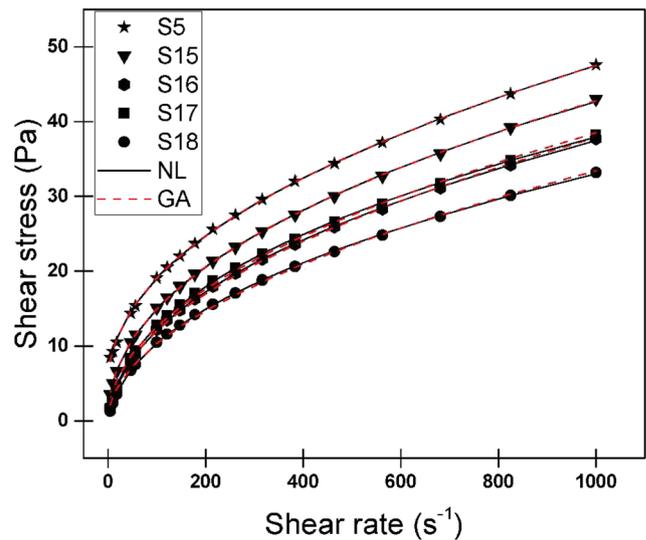
Sample and methods	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$	SSE (Pa <sup>2</sup> )
S5 (pH = 10.29)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
GA	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S11 (pH = 3.64)					
NL	1.9749	0.3404	0.6231	0.9999	0.0908
GA	1.9749	0.3404	0.6231	0.9999	0.0907
S12 (pH = 6.89)					
NL	3.7405	0.5592	0.5847	0.9997	0.4874
GA	3.7406	0.5592	0.5847	0.9997	0.4874
S13 (pH = 8.44)					
NL	5.2489	0.6896	0.5694	0.9991	1.5080
GA	5.2489	0.6896	0.5694	0.9991	1.51E+00
S14 (pH = 12.01)					
NL	2.4445	1.9365	0.4579	0.9999	0.1886
GA	2.4446	1.9364	0.4579	0.9999	0.1886

leads to the formation of a stronger three-dimensional network and results in stronger gels, which perform high yield stress and consistency index values.

### NaCl effect on the H–B rheological parameters estimated using GA

Sodium chloride (NaCl) is one of the most commonly used salts to formulate drilling fluids for the oil and gas industry (Amani et al. 2015). The purpose of adding salt to drilling fluids is to minimize the problem of thickening caused by high clay concentration, thereafter stabilize shales and control clays swelling. The chloride ion (Cl<sup>-</sup>) comes from sodium chloride that prevents water from entering the clay matrix (Caenn and Chillingar 1996). Furthermore, salt is also needed to stabilize the biopolymers structure. Without salt, many types of polysaccharides will be denatured. This is due to the decrease of contour length of the biopolymers where the macromolecules tend to adopt more coiled conformation (Caenn and Chillingar 1996). In this section, NaCl with different concentrations ranging from 0.5 to 2.0 wt% is added to the drilling fluid (S5) to underline the effect of this salt on the rheological behavior of this fluid, hence optimize the NaCl concentration to avoid the degradation of rheological properties. Figure 5 represents, the flow curves of the different samples formulated with NaCl fitted to the H–B model, using GA and NL techniques. The results show that the NaCl addition to the drilling fluid reduces the rheological properties of this latter.

The results of the three-parameter H–B model derived from GA and NL techniques are shown in Table 4. For this type of drilling fluid, the two techniques (GA and NL) give different



**Fig. 5** Superposition of rheological data and H–B model curves obtained from using NL and GA method for samples S15–S18

results. It can be noticed that the yield stresses derived from GA technique are equal to 0 Pa for all the samples containing NaCl while the NL technique gives negative values of the yield stress. One can say that NL technique does not seem well for this type of drilling fluid because negative yield stresses have no meaning physically and similar results are reported in the literature by Chauhan et al. (2018), for the H–B parameter optimization of a viscous karaya polymer. Basing on the results of the GA technique, it is found that the NaCl addition to the drilling fluid deletes the yield stress, which is a more realistic evaluation, but these results suggest that samples show pseudoplastic behavior rather than yield shear thinning, recommending power law (PL) to be the optimal model for the particular samples. The question is then whether the PL is the best rheological model for the particular samples. Many authors have shown that most drilling fluids rheological values should be fitted to the H–B model and that salt addition to the drilling fluids reduces the yield stress, but does not delete it. Kelessidis et al. (2007) have observed a sharp decrease in bentonite dispersions yield stress at 0.5 M and 1.0 M of NaCl to very small values and Abu-Jdayil (2011) has also found that the addition of 0.1 and 0.2 M of NaCl to sodium bentonite reduces or eliminates the yield stress of the dispersions. Hence, the yield stress estimated by fitting a model should be considered as a model parameter rather than the true yield stress of the fluid, which reflects the true nature of the sample. This yield stress is considered the dynamic yield stress, i.e., the minimum yield stress required to maintain flow, instead of the static yield stress, which is more important for pumping or suspending solids (Chauhan et al. 2018). To solve this problem, the static yield stress (stress required to initiate flow) of samples containing NaCl is estimated using oscillatory measurements and the results serve to confirm if the fluid is yield shear thinning or not.

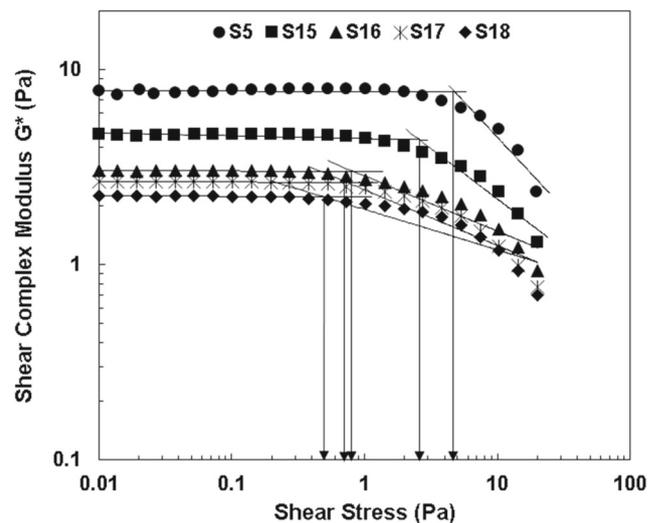
**Table 4** The H–B rheological parameters derived from GA and NL techniques for samples S15–S18

Sample and methods	$\tau_c$ (Pa)	$k$ (Pa.s <sup>n</sup> )	$n$ (-)	$R^2$	SSE
S5 (3% bent + 0.2% PEG + 0.5% HEC)					
NL	4.4688	1.6759	0.4699	0.9997	0.8047
GA	4.4688	1.6760	0.4699	0.9997	0.8045
S15 (3% bent + 0.2% PEG + 0.5% HEC + 0.5% NaCl)					
NL	-0.3530	1.9423	0.4486	0.9999	0.2976
GA	0.0	1.8270	0.4565	0.9998	0.3692
Power law (PL), $\tau = k \cdot \gamma^n$	0.0	1.8270	0.4565	0.9998	0.3692
S16 (3% bent + 0.2% PEG + 0.5% HEC + 1.0% NaCl)					
NL	-1.8364	1.7607	0.4496	0.9999	0.2123
GA	0.0	1.2157	0.4978	0.9990	2.4296
PL	0.0	1.2157	0.4978	0.9990	2.4296
S17 (3% bent + 0.2% PEG + 0.5% HEC + 1.5% NaCl)					
NL	-2.6720	2.2049	0.4218	0.9999	0.2959
GA	0.0	1.3414	0.4860	0.9981	4.4262
PL	0.0	1.3414	0.4860	0.9981	4.4262
S18 (3% bent + 0.2% PEG + 0.5% HEC + 2.0% NaCl)					
NL	-1.897	1.5249	0.4532	0.9999	0.2229
GA	0.0	0.9819	0.5106	0.9985	2.7028
PL	0.0	0.9819	0.5106	0.9985	2.7028

**Estimation of yield stress of samples containing NaCl using stress sweep measurements**

Figure 6 illustrates the evolution of complex modulus versus stress at the 10 rad/s angular frequency for samples S5 and S15–S18. The yield stress is estimated from this study by calculating the end of the linear viscoelastic region, which is observed for all the samples as the intercept of the two straight lines fitted to log-log plot of complex modulus versus the oscillatory stress (Graef et al. 2011; Dinkgreve et al. 2016). It can be seen from the results that the yield stress value decreases with the increase in the NaCl concentration. This effect may be due to the compression of bentonite electrical double layer (Permien and Lagaly 1994a). Electrical double layer compression prevents water and polymer to penetrate the bentonite interlayer and consequently the system consistency is reduced. These results also indicate that the NaCl addition to the bentonite/HEC/PEG system destroys the three-dimensional network; thus, a reduction in yield stress is observed and this reduction becomes more important with the increase in the NaCl concentration. Other authors, Chang and Leong (2014), have assumed a yield stress equal to zero due to collapse of gel structure and liquid layer formation by phase separation for bentonite/NaCl system and they have also reported that the yield stress of bentonite gels decreased with increasing NaCl concentration, which indicates that NaCl

reduces the interparticle attractive force. The obtained results show also that, polyelectrolytes configuration becomes more compact at high ionic force due to the screen charge effect. Furthermore, Zhou et al. (2001) revealed that the double-layer compression diminishes the effective volume fraction when electrolyte concentration increases. An isolation of aggregates is induced by the repulsion force between them. Hence, the



**Fig. 6** Estimation of yield stress using oscillatory study for samples S5 and S15–S18 at 10 rad/s angular frequency

adsorbed or interpenetrated HEC onto or between the aggregates prevents contact between them and consequently a discontinuity in the three-dimensional network appears. As a result, the network collapses and the particle isolation make the shear easier, so that a decrease in yield stress is observed.

### Comparison between the yield stresses obtained from curves fitting to the H–B model using NL and GA techniques and from oscillatory study

For the first group, concerning the samples from S1 to S14, where the drilling fluids are formulated with bentonite, PEG, and HEC, a comparison of yield stresses obtained from curves fitting to the H–B model using NL and GA techniques is made. It is found that the values of the estimated yield stresses (Fig. 7) are the same for the two techniques, which improves the validity of the GA technique when treating good rheological data; similar results are reported in the literature (Rooki et al. 2012; Chauhan et al. 2018).

For the second group, the results of yield stresses calculated from the oscillatory method have been compared with those estimated from curves fitting using GA and NL techniques (Fig. 8). In this case, the yield stresses derived from the NL technique are negative for all samples while those derived from the GA are equal to zero; moreover, the yields calculated using dynamic stress sweep are positive and they decrease with the increase in the NaCl concentration. Consequently, the GA leads to more realistic evaluation of yield stress while maintaining a high degree of accuracy in curve fitting of shear stress–shear rate data and it approaches to the reality because the addition of NaCl decreases really the yield stress of drilling fluids as found by the oscillatory method. In this fact, it can be said that the GA predicts a good result, which has a meaning

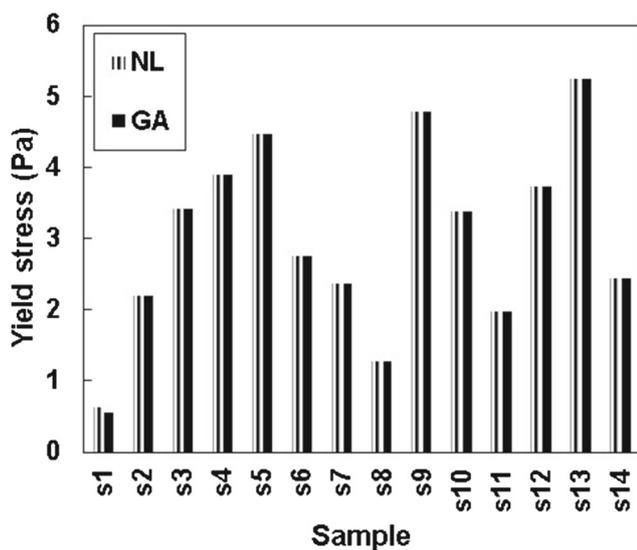


Fig. 7 Comparison of the Yield stresses derived from GA and NL techniques for the first group (samples from S1 to S14)

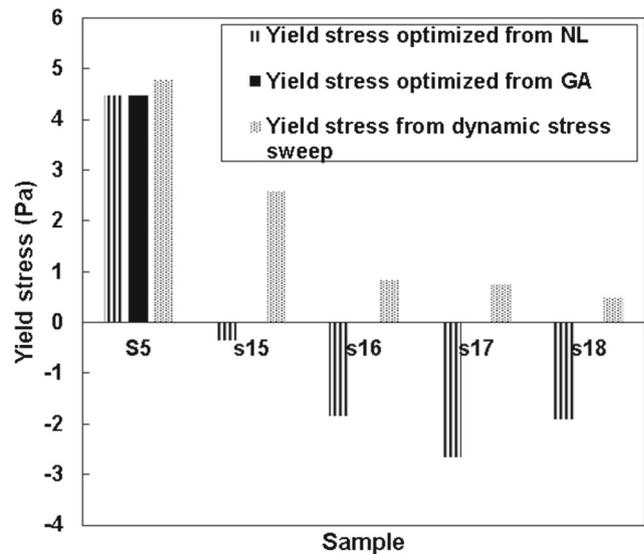


Fig. 8 Comparison of the yield stresses obtained from curves fitting using GA and NL techniques and from oscillatory method for the second group (samples S5 and S15–S18)

physically, but this result should be considered as a model parameter rather than the true parameters of the fluid; hence, it is suitable to use the oscillatory method, which leads to the true estimation of the fluid yield stress.

### Conclusions

The present work discussed various aspects of the rheological behavior of an environmentally friendly drilling fluid formulated based on bentonite, HEC, and PEG under different shear rate with special emphasis on the three-parameter H–B model rheological determination. The study examined the results in depth, including the effects of shear rate, the HEC concentration, temperature, pH, salt (NaCl), and optimization techniques on the H–B model rheological parameters. The studied drilling fluid showed a shear thinning behavior with an increase in yield stress and the consistency index with increasing the HEC concentration. Temperature, pH value, and the NaCl concentration affect the formulated drilling fluid rheological behavior as follows: the yield stress and consistency index decreased as a function of temperature up to a critical temperature value noted as the gelation temperature and close to 65 °C and they jumped suddenly at this critical temperature, they also decreased with decreasing pH value and increasing the NaCl concentration, whereas the flow index evolved inversely to yield stress and consistency index. The rheological data (shear stress versus shear rate) were well fitted to the H–B model using the nonlinear regression, but this latter resulted in negative yield stress, which was physically meaningless, when treated drilling fluid containing NaCl. Consequently, the NL technique may not always lead to optimal solutions. To eliminate the NL technique inconvenient, a successful approach based on the GA technique

had been presented. The optimization procedure target of this technique was to determine the H–B parameters with minimum amount of errors, noting that the sum of square errors was considered as an objective function. In addition to the objective function, some constraints were added to avoid negative values for model variables. Consequently, the GA technique provided optimal solutions for the different studied samples and resulted in similar sum of square errors of the NL technique for all samples except for samples containing NaCl but the difference in SSE in this case was not significant. Furthermore, this technique suggested the power law model as the best rheological model for samples containing NaCl, which might not be true due to the fact that most drilling fluids rheological behavior was well fitted to the H–B model. As well as found by the oscillatory study that the NaCl addition to the drilling fluid reduced the yield stress of this fluid. Therefore, the GA technique is a good tool to optimize the drilling fluid rheological parameters and overcome the problem of negative yield stress, it runs faster and generates better results than the NL technique, which encourage using this technique to solve highly nonlinear problems.

Based on these results, it can be concluded that the environmentally friendly drilling fluid (bentonite/HEC/PEG) exhibited thermogelation at increased temperature and behaved like stronger gels at alkaline pH, which make it suitable for drilling fluid applications, especially for the transport and suspension of cuttings. It is also recommended to use a concentration of NaCl not exceeding 1 wt% to avoid the degradation of the rheological parameters of drilling fluids. The proposed formulation of drilling fluids (bentonite/HEC/PEG/NaCl) can provide an improvement of well service fluids for oil and gas exploration and production and can be used in the geothermal well. It can offer the required viscosity with the increase in temperature, which is an advantageous feature in drilling fluids, the high viscosity with yield stress behavior at low shear rates denoting solids carrying capacity away from the drill bit. Furthermore, the use of high concentration of NaCl at ambient (surface) temperatures results in a lower viscosity and reduces the yield stress, which is desirable for easy removal of drilled solids on the shale shaker.

**Acknowledgements** The authors wish to extend special thanks to Mr. Perry Mureau for his help.

**Nomenclature** CMC, carboxymethyl cellulose; EE, edge-to-edge; FF, face-to-face; GA, genetic algorithm; HEC, hydroxyethyl cellulose; H–B, Herschel–Bulkley; NL, nonlinear regression; PEG, polyethylene glycol; PL, power law; PSO, particle swarm optimization; S1–S18, sample 1–18; XRF, X-ray fluorescence;  $k$ , consistency index (Pa·s<sup>n</sup>);  $N$ , number of data points;  $n$ , flow index;  $R^2$ , correlation coefficient; SSE, sum of square errors (Pa<sup>2</sup>);  $T$ , temperature (°C);  $\dot{\gamma}$ , shear rate (s<sup>-1</sup>);  $\tau$ , shear stress (Pa);  $\tau_c$ , yield stress (Pa);  $\tau_i$ , measured shear stress (Pa);  $\hat{\tau}_i$ , predicted shear stress;  $\hat{\tau}_a$ , mean predicted shear stress

**Publisher's Note** Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

## References

- Abraham TN, Ratna D, Siengchin S, Karger-Kocsis J (2008) Rheological and thermal properties of poly(ethylene oxide)/multiwall carbon nanotube composites. *J Appl Polym Sci* 110:2094–2101
- Abu-Jdayil B (2011) Rheology of sodium and calcium bentonite – water dispersions: effect of electrolytes and aging time. *Int J Miner Process* 98:208–213
- Alderman NJ, Gavignet A, Guillot D, Maitlan GC (1988) High-temperature, high-pressure rheology of water-based muds. Paper SPE 18035 presented at the SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Houston, 2–5 October. 187–195
- Al-Marhoun MA, Rahman SS (1988) Optimizing the properties of water-based polymer drilling fluids for penetrating formations with electrolyte influx. *Erdol Erdgas* J 318–323
- Amani M, Retnanto A, Yrac R, Shehada S, Ghamary MH, Khorasani MHM, Abu Ghazaleh M (2015) Effect of salinity on the viscosity of water based drilling fluids at elevated pressures and temperatures. *International Journal of Engineering and Applied Sciences* 7(04): 30–52
- Annis MR (1967) High-temperature flow properties of water-base drilling fluids. *J Pet Technol* 19:1074–1080
- Anyanwu C, Mustapha Unubi M (2016) Experimental evaluation of particle sizing in drilling fluid to minimize filtrate losses and formation damage. SPE-184303-MS, presented at SPE Nigeria international conference and exhibition held in Lagos
- Arisz PWF, Lusvardi KM (2006) Water-soluble, low substitution hydroxyethyl cellulose, derivatives thereof, process of making, and uses thereof. US patent 0199742:A1
- Au PI, Leong YK (2016) Surface chemistry and rheology of slurries of kaolinite and montmorillonite from different sources. *KONA powder particle J* 33:17–32
- Avadiar L, Leong Y, Fourie A, Nugraha T, Clode PL (2014) Source of Unimin kaolin rheological variation-Ca<sup>2+</sup> concentration. *Colloids Surfaces A: Physicochem Eng Aspects* 459:90–99
- Bahlouli MI, Bekkour K, Benchabane A, Hemar Y, Nemdili A (2013) The effect of temperature on the rheological behavior of polyethylene oxide (PEO) solutions. *Appl Rheol* 23:13435
- Benslimane A, Bahlouli IM, Bekkour K, Hammiche D (2016) Thermal gelation properties of carboxymethyl cellulose and bentonite-carboxymethyl cellulose dispersions: rheological considerations. *Appl Clay Sci* 132–133:702–710
- Bourgoyne AT, Millheim KK, Chenevert ME, Young FS (1991) Applied drilling engineering, First edn. Society of Petroleum Engineers, Richardson
- Briscoe BJ, Luckam PF, Ren SR (1994) The properties of drilling muds at high pressures and high temperatures. *Philos Trans R Soc Lond Ser A: Math Phys Sci* 348:179–207
- Caenn R, Chillingar GV (1996) Drilling fluids: state of the art. *J Pet Sci Eng* 14:221–230
- Callaghan IC, Ottewill RH (1974) Interparticle forces in montmorillonite gels. *Discuss Faraday Soc* 57:110–118
- Chang W-Z, Leong Y-K (2014) Ageing and collapse of bentonite gels—effects of Li, Na, K and Cs ions. *Rheol Acta* 53:109–122
- Chauhan G, Verma A, Das A, Ojha K (2018) Rheological studies and optimization of Herschel–Bulkley flow parameters of viscous karaya polymer suspensions using GA and PSO algorithms. *Rheol Acta* 57: 267–285. <https://doi.org/10.1007/s00397-017-1060-x>

- Chauduri A, Wereley N, Radhakrishnan R, Choi SB (2006) Rheological parameter estimation for a ferrous nano-particle-based magneto rheological fluid using genetic algorithms. *J Intell Mater Syst Struct* 17: 261–269
- Chauduri A, Wereley N, Kotha S, Radhakrishnan R, Sudarshan TS (2005) Viscometric characterization of cobalt nano-particle-based magneto rheological fluids using genetic algorithms. *J Magn Mater* 293:206–214
- Cole RC, Ali SA, Foley KA (1995) A new environmentally safe crosslinked polymer for fluid-loss control. Paper SPE 29525 presented at the SPE production operations symposium, Oklahoma City
- de Kretser RG, Scales PJ, Boger DV (1998) Surface chemistry–rheology inter-relationships in clay suspensions. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 137:307–318
- Dinkgreve M, Paredes J, Denn MM, Bonn D (2016) On different ways of measuring the yield stress. *J Non-Newtonian Fluid Mech* 238:233–241
- Duran JDG, Ramos-Tejada MM, Arroyo FJ, Gonzalez-Caballero F (2000) Rheological and electrokinetic properties of sodium montmorillonite suspensions. *J Colloid Interface Sci* 229:197–117
- Fan J, Zhu H, Li R, Chen N (2014) Montmorillonite modified by cationic and nonionic surfactants as high-performance fluid-loss-control additive in oil-based drilling fluids. *J Dispers Sci Technol* 36:569–576
- Fordham EJ, Bittleston SH, Tehrani MA (1991) Viscoplastic flow in centered annuli, pipes and slots. *Ind Eng Chem Res* 29:517–524
- Gareche M, Allal A, Zeraibi N, Roby F, Azril N, Saoudi L (2016) Relationship between the fractal structure with the shear complex modulus of montmorillonite suspensions. *Appl Clay Sci* 123:11–17
- Gentile L, De Luca G, Antunes FE, Rossi CO, Ranieri GA (2010) Thermogelation analysis of F127-water mixtures by physical chemistry techniques. *Appl Rheol* 20(1–9):52081
- Goldberg D (1989) Genetic algorithms in search optimization and machine learning. Kluwer Academic Publishers, Boston
- Glass Jr, JE (1985) HEC-bentonite compatible blends. US patent, 4561985
- Graef VD, Depypere F, Minnaert M, Dewettinck (2011) Chocolate yield stress as measured by oscillatory rheology. *Food Res Int* 44(9): 2660–2665
- Hao S-Q (2011) A study to optimize drilling fluids to improve borehole stability in natural gas hydrate frozen ground. *J Pet Sci Eng* 76:109–115
- Hemphill T, Campos W, Pilehvari A (1993) Yield-power law model accurately predicts mud rheology. *Oil Gas J* 91:45–50
- Holland JH (1975) Adaptation in natural and artificial systems: an introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence. University of Michigan Press, Ann Arbor
- Jiang G, Liu T, Ning F, Tu Y, Zhang L, Yu Y, Kuang L (2011) Polyethylene glycol drilling fluid for drilling in marine gas hydrates-bearing sediments: an experimental study. *Energies* 4: 140–150
- Jung Y, Son Y-H, Lee J-K, Phuoc TX, Soong Y, Chyu MK (2011) Rheological behavior of clay–nanoparticle hybrid-added bentonite suspensions: specific role of hybrid additives on the gelation of clay-based fluids. *ACS Appl Mater Interfaces* 3:3515–3522
- Juppe HL, Marchant RP, Melbouci M (2003) Environmentally acceptable fluid polymer suspension for oil field services. US patent 6620769: B1
- Kelessidis VC, Maglione R (2006) Modeling rheological behavior of bentonite suspensions as Casson and Robertson–Stiff fluids using Newtonian and true shear rates in Couette viscometry. *Powder Technol* 168:134–147
- Kelessidis VC, Tsamantaki C, Dalamarinis P (2007) Effect of pH and electrolyte on the rheology of aqueous Wyoming bentonite dispersions. *Appl Clay Sci* 38:86–96
- Kenny P, Hemphill T, Bell G (1994) unique hole cleaning capabilities of ester-based drilling fluid system. Paper SPE 28308 presented at the SPE Annual Technical Conference and Exhibition, New Orleans, 25–28 September
- Kok MV, Batmaz T, Gücüyener IH (2000) Rheological behavior of bentonite suspensions. *Pet Sci Technol* 18(5 & 6):519–536
- Kok MV (2009) Statistical approach of two-three parameters rheological models for polymer type drilling fluid analysis. *Energy Sources A: Recovery, Utilization and Environmental Effects* 32(4):336–345
- Kok MV (2013) Thermal analysis and rheological study of ocm type bentonite used in drilling fluids. *Energy Sources A: Recovery, Utilization and Environmental Effects* 35(2):122–133
- Laribi S, Fleureua JM, Grossiord JL, Kbir-Arighui N (2006) Effect of pH on the rheological behavior of pure and interstratified smectite clays. *Clay Clay Miner* 54:29–37
- Li M, Wu Q, Song K, Qing Y, Wu Y (2015) Cellulose nanoparticles as modifiers for rheology and fluid loss in bentonite water-based fluids. *ACS Appl Mater Interfaces* 7:5006–5016
- Luckham PF, Rossi S (1999) The colloidal and rheological properties of bentonite suspensions. *Adv Colloid Interf Sci* 82:43–92
- Maglione R, Ferrario G (1996) Equations determine flow states for yield-pseudoplastic drilling fluids. *Oil and Gas J* 63:63–65
- Maglione R, Romagnoli R (1998) The role of rheology optimization in the drilling mud design. *GEAM Bulletin of the Polytechnic of Turin* 94:123–132
- Malone TR, Raines RH (1979) Colorimetric field test for determining hydroxyethyl cellulose (HEC) and other polysaccharides in drilling fluids. Paper SPE 8741 presented at the Eastern Regional Meeting of the Soc. of Petroleum Eng. of AIME, Charleston, West Virginia
- Man KF, Tang KS, Kwong S (1996) Genetic algorithms: concepts and applications. *IEEE Trans Ind Electron* 43:519–534
- Melbouci M (2013) Use of polyethylene glycol based fluidized polymer suspension in functional systems. US patent 8450386:B2
- Michalewicz Z (1996) Genetic Algorithms + Data Structures = Evolution Programs, 3rd edn. Springer - Verlag, New York, p 387
- Mpofu P, Addai-Mensah J, Ralston J (2003) Influence of hydrolyzable metal ions on the interfacial chemistry, particle interactions, and dewatering behavior of kaolinite dispersions. *J Colloid Interface Sci* 261:349–359
- Nguyen QD, Boger DV (1983) Yield stress measurements for concentrated suspensions. *J Rheol* 27:321–349
- Norrish K (1954) The swelling of montmorillonite. *Discuss Faraday Soc* 18:120–134
- Ouaer H, Gareche M (2018) The rheological behaviour of a water-soluble polymer (HEC) used in drilling fluids. *J Braz Soc Mech Sci Eng* 40: 380. <https://doi.org/10.1007/s40430-018-1301-7>
- Permian T, Lagaly G (1994a) The rheological and colloidal properties of bentonite dispersions in the presence of organic compounds: I. Flow behaviour of sodium-bentonite in water–alcohol. *Appl Clay Sci* 29: 751–760
- Raines RH (1986) Use of low M.S. (molar substitution) hydroxyethyl cellulose for fluid loss control in oil well applications. US patent 4(629):573
- Rooki R, Ardejani FD, Moradzadeh A, Mirzaei H, Kelessidis V, Maglione R, Norouzi M (2012) Optimal determination of rheological parameters for Herschel–Bulkley drilling fluids using genetic algorithms (GAs). *Korea-Aus Rheol J* 24(3):163–170
- Song K, Wu Q, Li M, Ren S, Dong L, Zhang X, Lei T, Kojima Y (2016) Water-based bentonite drilling fluids modified by novel biopolymer for minimizing fluid loss and formation damage. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 507:58–66
- Tadros TF (1996) Correlation of viscoelastic properties of stable and flocculated suspensions with their interparticle interactions. *Adv Colloid Interf Sci* 68:97–200

- Temraz MG, Hassanien I (2016) Mineralogy and rheological properties of some Egyptian bentonite for drilling fluids. *J Nat Gas Sci Eng* 31: 791–799
- Tombácz E, Szekeres M (2004) Colloidal behavior of aqueous montmorillonite suspensions: the specific role of pH in the presence of in-different electrolytes. *Appl Clay Sci* 27:75–94
- Tunc S, Duman O (2008) The effect of different molecular weight of poly(ethylene glycol) on the electrokinetic and rheological properties of Na-bentonite suspensions. *Colloids & Surfaces A: Physicochem Eng Aspects* 317:93–99
- Walker RE, Korry DE (1974) Field method of evaluating annular performance of drilling fluids. *Pet Tech* 26:167–173
- William JKM, Ponmani S, Samuel R, Nagarajan R, Sangwai JS (2014) Effect of CuO and ZnO Nano fluids in xanthan gum on thermal, electrical and high pressure rheology of water-based drilling fluids. *J Pet Sci Eng* 117:15–27
- Zhang L-M, Sun B-W (1999) Inhibition of water-soluble cationic cellulosic polymers to clay hydration. *J Appl Polym Sci* 74:3088–3093
- Zhou Z, Scales PJ, Boger DV (2001) Chemical and physical control of the rheology of concentrated metal oxide suspensions. *Chem Eng Sci* 56(9):2901–2920
- Zhu S, Avadiar L, Leong YK (2016) Yield stress- and zeta potential-pH behavior of washed  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> suspensions with relatively high Ca(II) and Mg(II) concentrations: hydrolysis product and bridging. *Int J Miner Process* 148:1–8

PAPER • OPEN ACCESS

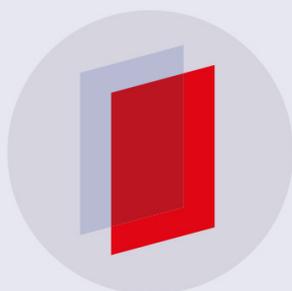
## Rheological study of concentrated dispersions. Application to the drilling fluid.

To cite this article: H Ouaer *et al* 2018 *J. Phys.: Conf. Ser.* **1045** 012033

View the [article online](#) for updates and enhancements.

### Related content

- [Investigation of the additive effect of nanoparticles on the hydrodynamic characteristics of drilling fluids](#)  
E I Mikhienkova, A L Neverov, A V Matveev *et al.*
- [Rheological study of feed stock for NiTi alloy molded parts](#)  
I Subuki, Z Abdullah, R Razali *et al.*
- [Studying laminar flows of power-law fluids in the annular channel with eccentricity](#)  
V A Zhigarev, A L Neverov, D V Guzei *et al.*



**IOP | ebooks™**

Bringing you innovative digital publishing with leading voices to create your essential collection of books in STEM research.

Start exploring the collection - download the first chapter of every title for free.

# Rheological study of concentrated dispersions. Application to the drilling fluid.

H Ouaer<sup>1</sup>, M Gareche<sup>1</sup> and A Allal<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratory of Hydrocarbons Physical Engineering, Faculty of Hydrocarbons and Chemistry, University of M'Hamed Bougara -Boumerdes-, Independence Avenue 35000 Boumerdes, Algeria

<sup>2</sup>IPREM-EPCP, University of Pau and of Pays of Adour, Hélioparc, 2 av. Pierre Angot, Pau 64053, France

E-mail: [ouaer-91@hotmail.com](mailto:ouaer-91@hotmail.com)

**Abstract.** In order to understand the rheological behavior of concentrated aqueous Algerian bentonite dispersions of drilling (sodium bentonite of Mostaganem “m’zila”), rheological tests were carried out. By varying the concentration of bentonite, flow tests have allowed to estimate the yield stress and apparent viscosity for each concentration and to see their influence on the rheological behavior of these dispersions. In addition dynamic tests (oscillatory) are used to define the linear region of our samples, the state of our fluid (elastic solid or viscous liquid) and understanding the mechanisms of structuring of the particles constituting the material. In parallel, other tests coupled with rheological measurements such as x-rays diffraction to know the mineralogical composition and granulometry to estimate the bentonite particle size.

## 1. Introduction

During oil drilling, many problems can be encountered due to the interactions between the various geological formations crossed and the drilling fluid used; this latter is formulated on the surface by using various components where bentonite is the main one for water based mud. The composition of bentonite used and the study of its rheological behavior in dispersion in water represent a very important step to avoid problems during implementation.

The bentonite used in this study comes from Mostaganem (m’zila, west of Algeria). It currently indicates the name of smectites which consist essentially of montmorillonite where are found three levels of organization which are: the sheet, the primary particle and the aggregate [1]. The sheets are composed essentially of atoms of silicium, oxygen, aluminum and magnesium [2].

In the literature, little research has been carried out on understanding the mechanisms of structuring of bentonite dispersions often used in drilling fluids in Algerian oil fields. It is with this objective that this study contributes by studying these mechanisms through rheological tests coupled with other methods such as X-ray diffraction (XRD) and particle size to better understand and reinforce the results obtained by identifying the origin of the observed properties.

## 2. Materials and methods

### 2.1. Materials and equipment

The bentonite used is primarily made up of sodium montmorillonite. This type of clay consists of an assembly of aggregates with a crystalline structure. It belongs to the phyllosilicate family 2: 1, i.e. it is



formed of an octahedral layer located between two tetrahedral layers [2-9]. The  $\text{Si}^{4+}$  ions are positioned in the tetrahedral layers while the octahedral layer contains  $\text{Al}^{3+}$  ions. Compensating cations ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ) are often found between the sheets. These minerals are more sensitive to hydration which causes partial swelling, and consequently changes in rheological properties [2, 10].

All the rheological tests were carried out in an imposed stress rheometer (Physica MCR301) having a geometry of coaxial cylinders ( $R_e=14.464$  mm,  $R_i=13.325$  mm,  $R_e/R_i=1.088$ ,  $h=39.997$  mm) and were maintained at a constant temperature at  $25\pm 0.1^\circ\text{C}$ .

The mineralogical composition of bentonite was determined by x-rays diffraction. The measurement of bentonite particle size was made using a granulometry test in laser instrument (Malvern Mastersizer 2000).

## 2.2. Experimental protocol

Since the protocol of preparation of such suspensions has a great effect on the final state of the suspension and consequently, on its rheological behavior [3], the samples are prepared as follows: initially a quantity of given demineralised water is stirred, then a mass of bentonite of variable concentrations (3, 4, 5, 6 or 7%) are versed in water in way closely to avoid the formation of aggregates of clay particles. In order to homogenize the obtained system, the suspensions are left under magnetic agitation during 24h.

Before each rheological test, the suspensions are subjected to a pre-shear then a rest time in the measurement geometry to have the same structural state of reference. In the case of a long-term test (dynamic tests), the surface of the sample is covered with a film layer of paraffin oil to avoid evaporation problem.

The pH of our suspensions is checked systematically, it is between 9.5 and 10.5, which shows that the faces and edges of the clay particles are negatively charged, giving a first indication on the microstructure of our suspensions [11].

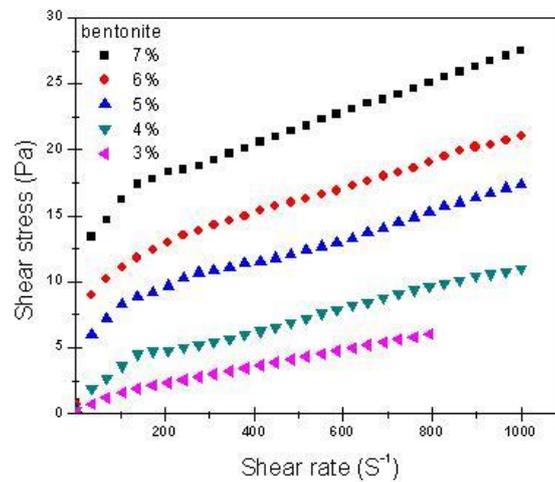
## 3. Results and Discussion

### 3.1. Rheological tests

#### 3.1.1. Flow tests

This test consists of applying a stress along a rising ramp of 20s for each stage. It will inform us about the type of the rheological behavior of the fluid by estimating parameters such as the yield stress of flow, the dynamic viscosity of our sample, as well as the evolution of these parameters as a function of the bentonite concentration.

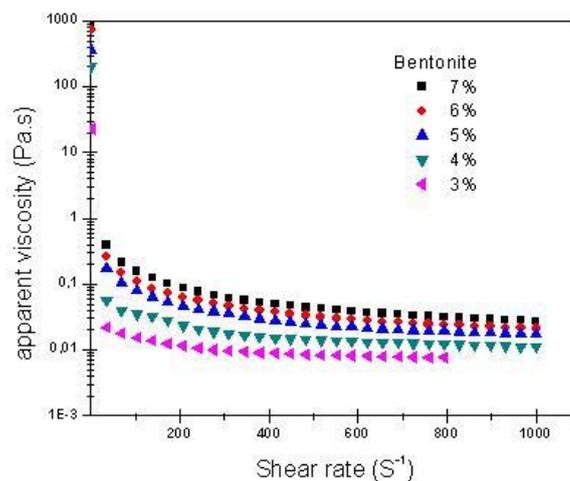
From the flow curves obtained (Fig. 1), it can be seen that our bentonite suspensions exhibit a non-Newtonian behavior, most often a shear thinning (pseudoplastic) behavior, as that is illustrated in figure 1. Similar results were obtained by [4].



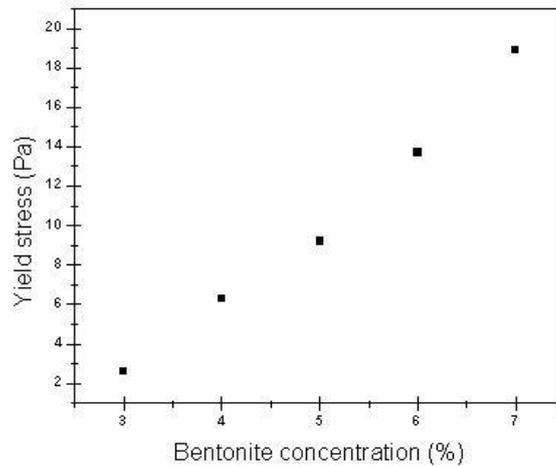
**Figure 1.** Rheograms of bentonite suspensions (3 to 7%) immediately after preparation (aged 24h).

The observed shear thinning behavior results in a decrease in the apparent viscosity of the suspensions with increasing the shear rate (Fig. 2) and this can be explained by the deformation or disaggregation of the suspended structural units under the effects of hydrodynamic forces.

All the suspensions have a yield stress which increases with the concentration (Fig. 3), below this yield stress the particles are linked together and the applied stress is insufficient to break these bonds and cause the flow of the sample which opposes resistance to the latter by its intact microstructure translating a solid behavior. As soon as this yield stress is exceeded, the sample is destroyed and there will be a flow, so it passes from a solid state to a liquid state.

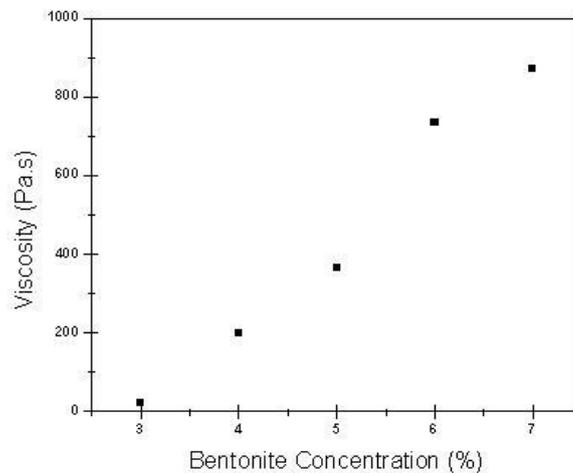


**Figure 2.** Variation of apparent viscosity as a function of shear rate of bentonite suspensions (3 to 7%).



**Figure 3.** Variation of the yield stress of bentonite suspensions as a function of concentration.

Concerning the viscosity of the suspensions, it increases with increasing concentration (Fig. 4).



**Figure 4.** Variation of dynamic viscosity of bentonite suspensions as a function of concentration.

### 3.1.2. Dynamic tests

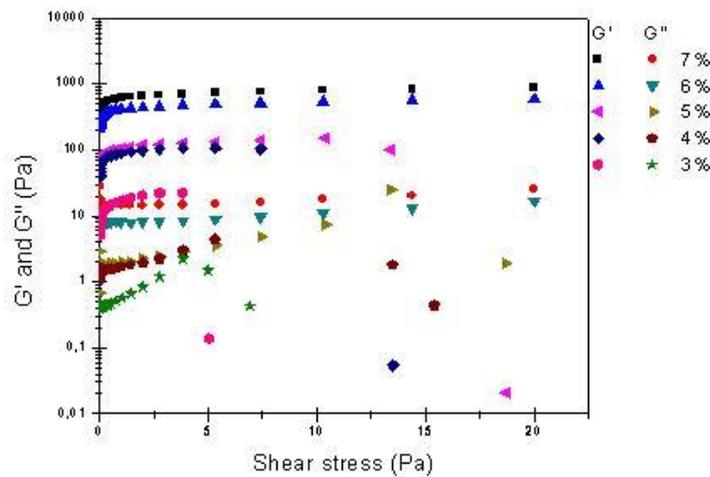
Rheological tests in dynamic regime consist in measuring the viscoelastic properties of given samples by studying the elastic  $G'$  and viscous  $G''$  modulus as a function of stress, frequency and time.

#### a. Sweeping in stress

In order to know the linear viscoelasticity domain of the studied bentonite suspensions, i.e. measuring the evolution of the two modulus storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) using a sweeping in stress for a given frequency (in our case 10 rad/s). The test consists in determining a critical stress beyond it there will be the rupture of the three-dimensional structure or of the network formed by the particles.

According to the Fig. 5 which represent the variation of  $G'$  and  $G''$  as a function of stress at a frequency of 10 rad/s, it is noted that the values of the two modulus  $G'$  and  $G''$  remain constant as

long as the stress is less than a limiting value and beyond this value there is a collapse of the structure. That means the transition from the solid behavior to the liquid.

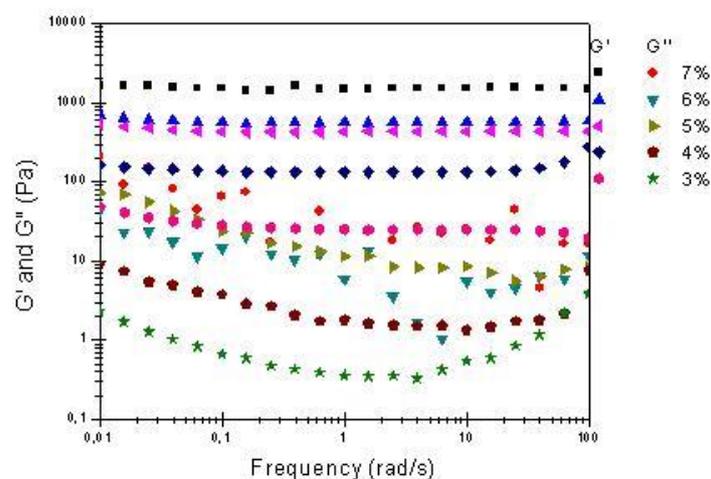


**Figure 5.** Evolution of viscoelastic modulus as a function of stress for different bentonite concentration.

*b. Sweeping in frequency*

Sweeping in frequency tests, which consist of measuring the evolution of the two modulus storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) as a function of frequency, were carried out for various bentonite suspensions, choosing a frequency included between 0.01 and 100 rad/s and fixing the stress at a value belongs to the linear domain.

According to the results obtained (Fig. 6), it is noted that  $G'$  remains always higher than  $G''$  for all the bentonite suspensions, this is a signature of an elastic solid behavior. In addition, the two viscoelastic moduli also increase according to the bentonite concentration. Similar results were obtained by other authors [5].



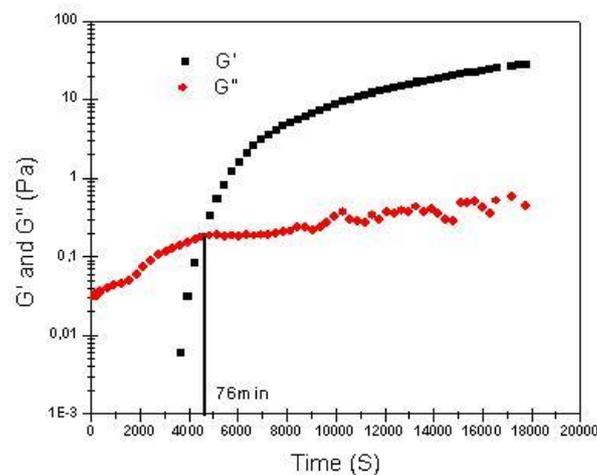
**Figure 6.** Evolution of viscoelastic modulus as a function of frequency for different bentonite concentration.

The results obtained in dynamic regime of Mostaganem bentonite confirm well those found previously in stationary regime. The behavior of these suspensions is an elastic solid even if for the weak mass concentrations (3%).

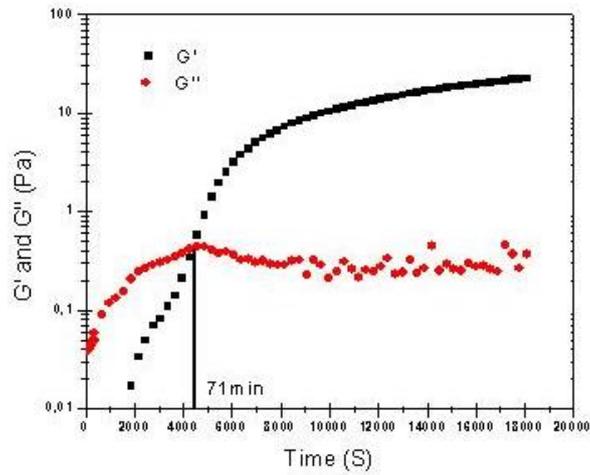
*c. Sweeping in time (followed kinetic)*

For better controlling the rheological properties of a material over time, firstly the structuring or the restructuring mechanisms of the particles and aggregates that make up this material must be understood [8]. These mechanisms were apprehended by a kinetic follow-up which consists in observing the evolution of the storage ( $G'$ ) and loss ( $G''$ ) modulus by carrying out a sweeping in time. The results obtained for the concentrations (4, 5, 6 and 7%) are identical. Indeed, the suspensions present a behavior of a gel at the initial state ( $G'$  remains higher than  $G''$ ). On the other hand for the suspensions 2, 2.5 and 3%, these present a time of gel approximately 76 min, 71min and 109 S respectively representing the moment where the crossing of the viscoelastic modulus is carried out. This time of gel physically represents the passage of the liquid state into a solid state and it decreases with increasing in bentonite concentration. For illustrating, just the figures 7, 8, 9 and 10 are represented which corresponding to the bentonite suspensions of 2, 2.5, 5 and 6%.

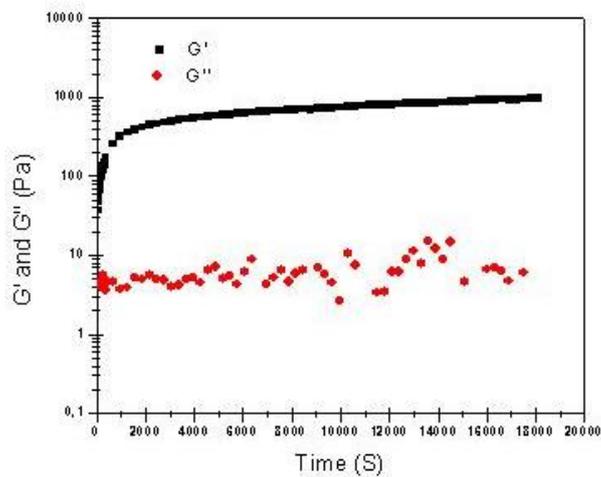
For the suspensions 4, 5, 6 and 7%, it can be noted that the loss modulus ( $G''$ ) oscillates but tends to stabilize at an average value which is due to the acoustic resonance phenomenon [6, 8], while that the storage modulus evolves little and stabilizes. This shows that the structuring kinetics of these suspensions is very rapid. On the other hand, for dilute suspensions such as 2, 2.5 and 3%, the structuring kinetics is more significant and the liquid-solid transition can also be noticed. The authors Overlaz and Coussot [7] explained this effect through a percolation phenomenon: the initial increase of  $G''$  indicates the progressive formation of solid aggregates in the fluid. When the volume fraction of the aggregates reaches a critical concentration, the aggregates then form a continuous solid network which is reinforced over time (inducing a sudden increase in  $G'$ ). The material then becomes aging while  $G''$  decreases.



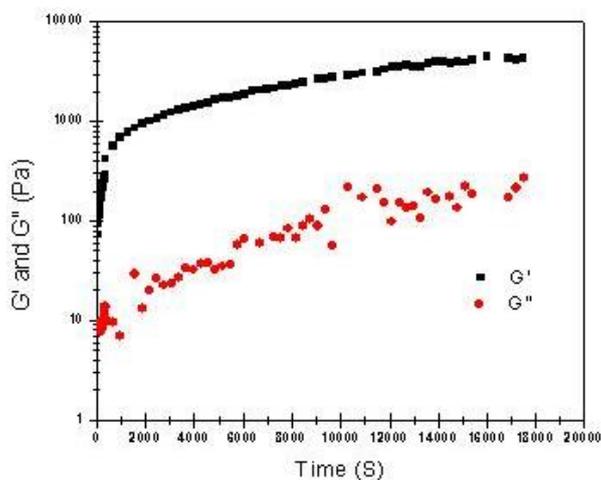
**Figure 7.** Variation of  $G'$  and  $G''$  as function of time for the suspension of 2%.



**Figure 8.** Variation of  $G'$  and  $G''$  as function of time for the suspension of 2.5%.



**Figure 9.** Variation of  $G'$  and  $G''$  as function of time for the suspension of 5%.

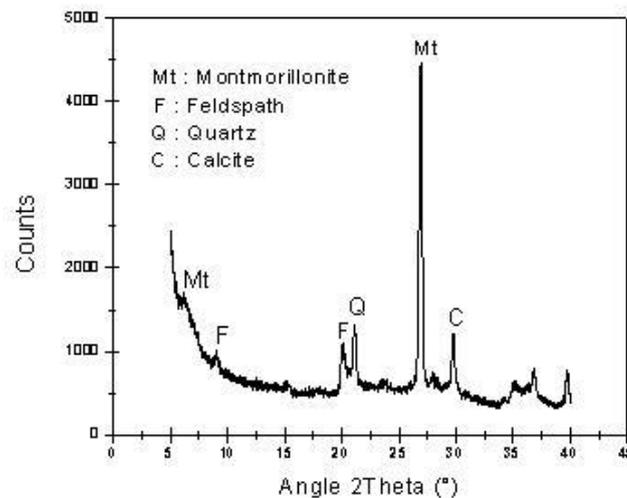


**Figure 10.** Variation of  $G'$  and  $G''$  as function of time for the suspension of 6%.

### 3.2. Mineralogical analysis

In order to determine the various minerals constituting Mostaganem bentonite, a test of X-ray diffraction (DRX) is carried out.

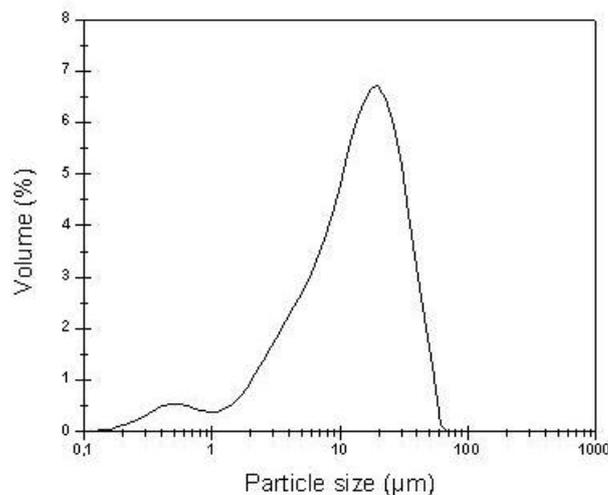
The diffractogram (Fig. 11) was obtained by placing the sample of bentonite in the form of a powder in a sample holder. This figure shows several peaks in which the two principal ones correspond to montmorillonite which is the most encountered mineral in bentonite samples. The existence of other peaks shows that the sample is not pure and contains impurities which are: quartz at  $d = 4.16 \text{ \AA}$ , feldspath at  $d = 9.5 \text{ \AA}$  and  $d = 4.38 \text{ \AA}$  and calcite at  $d = 2.98 \text{ \AA}$ .



**Figure 11.** X-ray diffraction pattern of Mostaganem bentonite.

### 3.3. Granulometric analysis

The granulometric analysis of our bentonite illustrated in Fig. 12 revealed a particle distribution composed of 0.13% of sand ( $> 50 \mu\text{m}$ ), 91.96% of silt (between 2 and  $50 \mu\text{m}$ ) and 7.86% of fine particles ( $< 2 \mu\text{m}$ ).



**Figure 12.** Granulometric distribution of Mostaganem bentonite particles (Algeria).

#### 4. Conclusion

The study of the rheological behavior of Mostaganem bentonite showed, on the one hand, that the behavior is shear thinning with a yield stress of flow, having a dynamic viscosity which increases as a function of the concentration of the clay particles and, on the other hand, The presence of the viscoelastic properties, i.e. the liquid / solid transition for the low concentrations and a gel state for the high concentrations. These results are in good agreement with the results of the mineralogy and the granulometry which show that montmorillonite is the main mineral constituting Mostaganem bentonite and that it contains less sand (0.13%) which gives it more important rheological properties.

#### 5. References

- [1] Le pluart L, Duchet J, Sautereau H, Halley P, Gerard J F 2004 *Applied clay science*, **219** 25
- [2] Luckham P F, Rossi S 1999 *Colloid Interface Sci.* **82** 43
- [3] Benchabane A 2006 Etude du comportement rhéologique de mélanges argiles - polymères. Effets de l'ajout de polymères, *Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg*
- [4] Paumier S, Monnet P, Pantet A 2007 Etude des propriétés viscoélastiques de suspensions de smectite homoioniques à bi-ioniques ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Na}^{+}$ ) : influence de la concentration (2-100 g/l), *18<sup>ème</sup> Congrès Français de Mécanique, Grenoble*
- [5] Bekkour K, Kherfella N 2002 *Applied Rheology*, **12** 234
- [6] Kaldasch J, Laven J, Stein H N 1998 *J. Rheol.*, **42** (6) 1285
- [7] Ovarlez G, Coussot P 2007 *Physical Review E.* **76** (1) 11406
- [8] Gareche M 2013 Formulation et caractérisation rhéologique des suspensions de bentonite en présence d'additifs polymériques, *Thèse de doctorat, Université M'Hamed Bougara de Boumerdes*
- [9] Grandjean J 1997 *J Colloid Interface Sci.* **185** 554
- [10] Van Olphen H 1977 An introduction to clay colloid chemistry, *Willey*, New York
- [11] Durán J D G, Ramos-Tejada M M, Gonzalez-Caballero F 2000 *J. Colloid Interface Sci.* **229** 107