

CARACTERISATION RHEOLOGIQUE DE LA BENTONITE DE MAGHNIA EN SUSPENSION AQUEUSE SANS ET AVEC ADDITIFS ANIONIQUES

K. BENYOUNES¹, A. BENCHABANE² & A. MELLAK³

¹Laboratoire Matériaux Minéraux et Composites, LMMC, Université de Boumerdès, Avenue de l'indépendance Boumerdès 35000. E-mail : khaled_benyounes@yahoo.fr

²Laboratoire de Génie Mécanique, Université Mohamed Khider Biskra, B.P. 145 R.P. 07000, Biskra, Algérie. E-mail : adel.benchabane@gmail.com

³Laboratoire Génie physique des hydrocarbures, Université de Boumerdès, Avenue de l'indépendance Boumerdès 35000. E-mail : mellakabder@yahoo.fr

RESUME

L'objectif de ce travail est l'étude de l'effet de l'ajout de deux polymères anioniques sur les caractéristiques rhéologiques d'une suspension aqueuse de bentonite algérienne de forage (de Maghnia, Ouest de l'Algérie). Les additifs sont la gomme de xanthane et le carboxyméthylcellulose, CMC, utilisés souvent dans la formulation des boues de forage. Dans cet article, nous présentons et discutons des mesures rhéologiques réalisés sur : 1) une suspension aqueuse de bentonite (3%), 2) des polymères en solution aqueuse (le xanthane et le CMC à trois poids moléculaires différentes) et 3) des mélanges eau-bentonite-(xanthane ou CMC) à différentes concentrations de polymère. Ce travail a permis, notamment, de renforcer la conclusion rapportée dans des travaux conduits antérieurement sur la base d'une bentonite de laboratoire, montrant la dominance du comportement rhéologique du CMC et de xanthane sur celui de la suspension de bentonite.

1 INTRODUCTION

La boue de forage pétrolier est choisie en fonction de la nature de la formation, de l'architecture du puits, des objectifs de sondage et des contraintes environnementales et économiques [1,2]. En pratique, on utilise souvent des boues de forage constituées principalement d'eau, d'argile, de polymères et d'électrolytes. Ainsi, la compréhension de l'effet de chaque composant sur les caractéristiques rhéologiques de la boue s'avère impérative pour assurer le bon déroulement du forage.

L'objectif de ce travail consiste à étudier l'effet de deux polymères anioniques, (à savoir : le carboxyméthylcellulose de sodium, CMC, et la gomme de xanthane, utilisés souvent comme additifs au fluide de forage), sur les caractéristiques rhéologiques d'une suspension de bentonite. Il s'agit d'étendre une étude antérieure, menée à l'Institut de Mécanique des Fluides et des Solides de Strasbourg, IMFS, sur une bentonite de laboratoire [3-5], à une bentonite algérienne (de Maghnia) destinée au forage pétrolier. Cet objectif est motivé par l'intention de combler le vide observé dans la littérature en terme de caractérisation rhéologique des mélanges à base de cette argile utilisée souvent dans la composition des fluides de forage dans les champs pétroliers algériens [6,7].

2 MATERIELS ET METHODES

2.1 Matériaux et appareillage

L'argile utilisée est une bentonite de forage de Maghnia (ouest d'Algérie) commercialisée par la Société Bental. Une analyse minéralogique par diffraction des rayons X réalisée sur cette argile a montrée une composition cristalline à forte présence de smectite (Na). Nous avons pu identifier également un peu d'illite, des traces de kaolinite, feldspath (K et Na) et du quartz.

Les additifs utilisés dans la présente étude sont :

- le carboxyméthyl-cellulose de sodium, CMC, un polymère anionique hydrosoluble d'une chaîne moléculaire dérivant de la cellulose. Suivant le degré de substitution et le poids moléculaire, la solution aqueuse de CMC se présente sous trois formes : grande, moyenne et faible viscosité. Dans une boue de forage, le CMC se comporte comme un élément viscosifiant, mais il joue surtout le rôle d'un réducteur de filtrat [8,9]. Dans cette étude, un CMC à trois poids moléculaires, commercialisé par Sigma-Aldrich, est utilisé. Il s'agit de : 1) CMCFV de faible viscosité à 90kg/mol, 2) CMCMV de moyenne viscosité à 250kg/mol et 3) de grande viscosité à 700kg/mol.

- La gomme de xanthane, un polysaccharide anionique produit par la bactérie *Xanthomonas campestris*, ce polymère montre une certaine stabilité à la température et à la salinité [10]. Il est semi rigide, sa rigidité diminue en fonction de l'augmentation de la force ionique [11]. Le xanthane joue le rôle de viscosifiant dans le fluide de forage à base d'eau, le xanthan utilisé dans cette étude est commercialisé par VWR Prolabo (Rhodigel), sa masse moléculaire est de 2.106g/mol.

Toutes les mesures rhéologiques ont été effectuées à l'aide d'un rhéomètre à contrainte imposée (AR 2000) à une température maintenue constante à 20°C avec une géométrie est de type plan-cône (4cm, 4°). Afin d'éviter l'évaporation au cours des manipulations, le dispositif de mesure a été placé dans une ambiance saturée en vapeur d'eau.

2.2 Mode préparatoire

Pour préparer la suspension de bentonite de référence (3%) et les solutions de CMC, nous procédons comme suit : Dans un premier temps, une quantité d'eau déminéralisée, préalablement déterminée, est soumise à une agitation. La bentonite de base (ou le polymère) à la concentration voulue, est alors versée par petites quantités dans cette eau pour éviter la formation d'agrégats. Pour assurer une bonne homogénéisation, le système obtenu est soumis à une agitation continue pendant 24 heures.

Préparation des Mélanges "bentonite-polymère" : De la même manière que nous venons de décrire, nous préparons simultanément une suspension de bentonite et une solution de CMC aux concentrations voulues. Après 24heures d'agitation, la solution de CMC est ajoutée à la suspension de bentonite de base. Le mélange ainsi obtenu est agité pendant 24 heures avant de passer à l'essai.

3 RESULTATS ET DISCUSSION

Après la mise en place de l'échantillon (suspension de bentonite, solution de (CMC / xanthane) ou mélanges bentonite-(CMC / xanthane) sous la géométrie de mesure, on lui applique un repos de 10 minutes avant de passer à la mesure rhéologique.

3.1 Essais en écoulement

L'essai de l'écoulement consiste à appliquer une rampe montante en contrainte imposée (~0,033 Pa/s) pour toutes les solutions de polymère et les mélanges bentonite-polymère.

3.1.1 Solutions de xanthane et mélanges bentonite-xanthane

Les résultats d'essais d'écoulements sur les solutions de xanthane à différentes concentrations sont illustrés sur la figure 1a. L'analyse de ces courbes montre que les solutions de xanthane ont un comportement non newtonien avec une contrainte seuil. Pour des faibles vitesses de cisaillement, la viscosité apparente est remarquablement élevée. Ainsi, la viscosité et la contrainte seuil augmentent au fur et à mesure que la concentration de xanthane augmente. Il est établi dans la littérature qu'au dessus d'une certaine concentration, les molécules semi-rigides s'enchevêtrent pour former un réseau stabilisé par des liaisons spécifiques entre les chaînes de xanthane. Ces liaisons sont, notamment des ponts d'hydrogène, et sont à la base de la structuration responsable du seuil d'écoulement et de la résistance à l'écoulement [4,5]. Pour de fortes vitesses de cisaillement, le réseau est déstructuré, à la suite de la rupture des liaisons d'hydrogène, et par conséquent les molécules s'alignent dans le sens du cisaillement en favorisant la diminution de la viscosité [5,12] (fig. 2).

Les résultats d'essais d'écoulements sur les mélanges bentonite (3%)-xanthane, à différentes concentrations de polymère, sont illustrés sur la figure 1b. On constate que la forme de la courbe des mélanges bentonite-xanthane est semblable à celle des solutions de xanthane avec une augmentation de la viscosité apparente et de la contrainte seuil. La présence du xanthane dans le mélange a permis donc d'améliorer les deux paramètres rhéologiques importants à savoir la viscosité et la contrainte seuil. Ce résultat est en parfait accord avec une étude réalisée sur un tel système à la base d'une bentonite de laboratoire [5]. On remarque également la disparition du plateau de contrainte observé sur la suspension de bentonite, ce qui laisse à supposer que le contact entre les particules argileuses n'est plus possible [5]. Dans ce cas, les particules argileuses sont enveloppées par le xanthane et le contact entre les chaînes de polymère va alors former la principale interaction dans le système bentonite-xanthane.

3.1.2 Solutions de CMC et mélanges bentonite-CMC

Nous présentons sur la figure 3 un ensemble de rhéogrammes typiques : de la suspension de base, de solutions de CMC et de mélanges bentonite-CMC en 1% de polymère à différents poids moléculaires. On y observe que, contrairement à la courbe de la suspension de base, tous les rhéogrammes se présentent en absence de la contrainte seuil. Conformément à la littérature [13], le comportement rhéologique des solutions de CMC a été décrit d'une manière satisfaisante par le modèle de Cross :

$$\frac{\mu - \mu_{\infty}}{\mu_0 - \mu_{\infty}} = \frac{1}{1 + (\lambda \cdot \dot{\gamma})^m} \quad (1)$$

où μ_0 et μ_{∞} sont la viscosité à cisaillement nul et à l'infini et λ est un temps caractéristique de relaxation. A noter que toutes les solutions de CMC (les rhéogrammes ne sont pas

présentés ici) ont un caractère rhéofluidifiant avec une absence de contrainte seuil. De même, et conformément à ce qu'on a trouvé antérieurement sur la même suspension de bentonite par une géométrie vanne [7], le comportement rhéologique de la suspension de bentonite de Maghnia peut être décrit d'une manière satisfaisante par le modèle de Herschel-Bulkley :

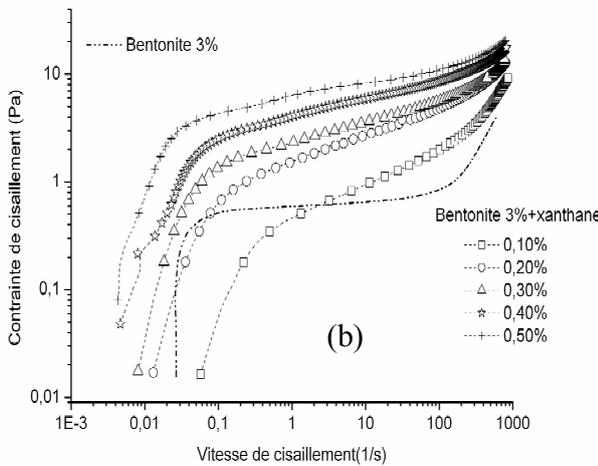
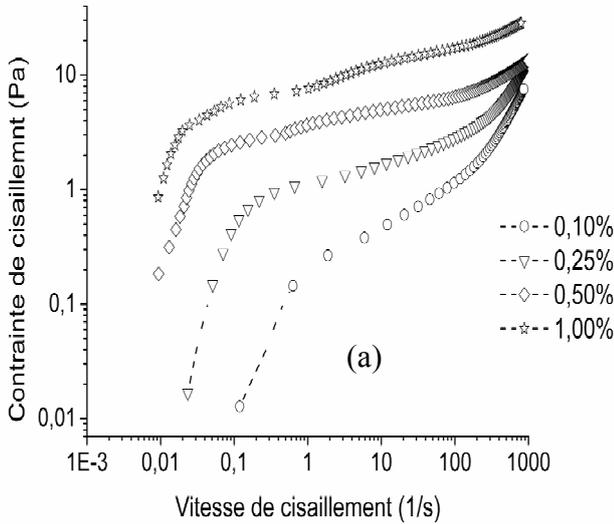


Figure 1 : Courbes d'écoulement : a) de la solution de xanthane, b) des mélanges bentonite-xanthane.



Figure 2 : Schéma représentatif de l'effet du cisaillement sur la structure de la solution de xanthane [12].

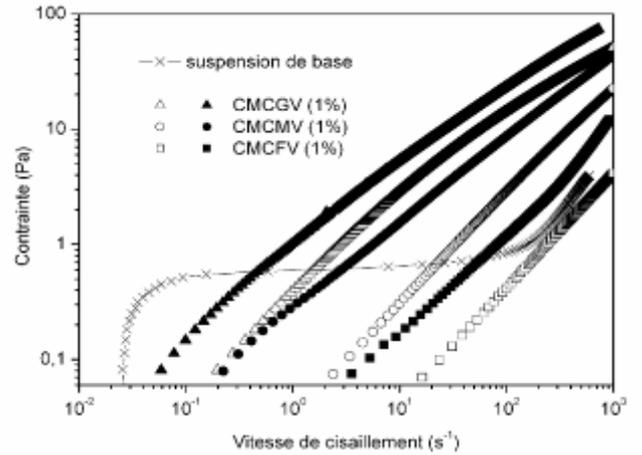


Figure 3 : Rhéogrammes types de la suspension de base (3%), de solutions de CMC (1%) ($\square \circ \Delta$) et de mélanges bentonite-CMC (1%) ($\blacksquare \bullet \blacktriangle$) à différents poids moléculaires de CMC.

$$\tau = \tau_0 + K \cdot \dot{\gamma}^n \quad (2)$$

où K est la consistance et n l'indice d'écoulement. Le comportement de la suspension de base est rhéo-épaississant (indice $n > 1$) avec une contrainte seuil.

Ainsi, les rhéogrammes typiques de la figure 3 montrent que l'allure des courbes d'écoulement des mélanges bentonite-CMC est proche de celle des solutions de CMC quelque soit le poids moléculaire. A partir d'une vitesse de cisaillement critique, la viscosité apparente des mélanges devient supérieure à celle de la suspension de base. Dans cette gamme de vitesse de cisaillement, la viscosité augmente avec la concentration et le poids moléculaire du polymère.

Pour une meilleure illustration de ces observations, nous nous sommes permis d'appliquer l'équation (2) sur tous les mélanges bentonite-CMC. Ceci permettrait la visualisation du changement de comportement d'écoulement de la suspension de base avec l'ajout de CMC. La figure 4a montre l'évolution de l'indice d'écoulement, n , (eq. 2) de la solution de CMC et du mélange bentonite-CMC en fonction de la concentration et du poids moléculaire de polymère. Nous observons sur les solutions de CMC, une accentuation du comportement rhéofluidifiant ($n < 1$) avec la concentration et le poids moléculaire du polymère. Ceci est aussi le cas des mélanges bentonite-CMC ce qui montre la similitude entre les deux systèmes pour des vitesses de cisaillement non négligeables.

Pour les faibles vitesses de cisaillement, l'effet de polymère est également assez présent par la disparition de la contrainte seuil comme le montre la figure 3 (à 1% de CMC). Nous illustrons ceci, sur toutes les concentrations étudiées, en s'intéressant à l'évolution de la viscosité à vitesse de cisaillement nulle, μ_0 , de la suspension de base, des solutions de CMC et des mélanges bentonite-CMC en fonction de la concentration et du poids moléculaire de polymère (fig. 4b). Pour les solutions de CMC, on observe une augmentation de μ_0 avec la concentration et le poids moléculaire de polymère (figure 4b). Ce changement est dû

principalement à l'enchevêtrement entre les chaînes de polymère [13].

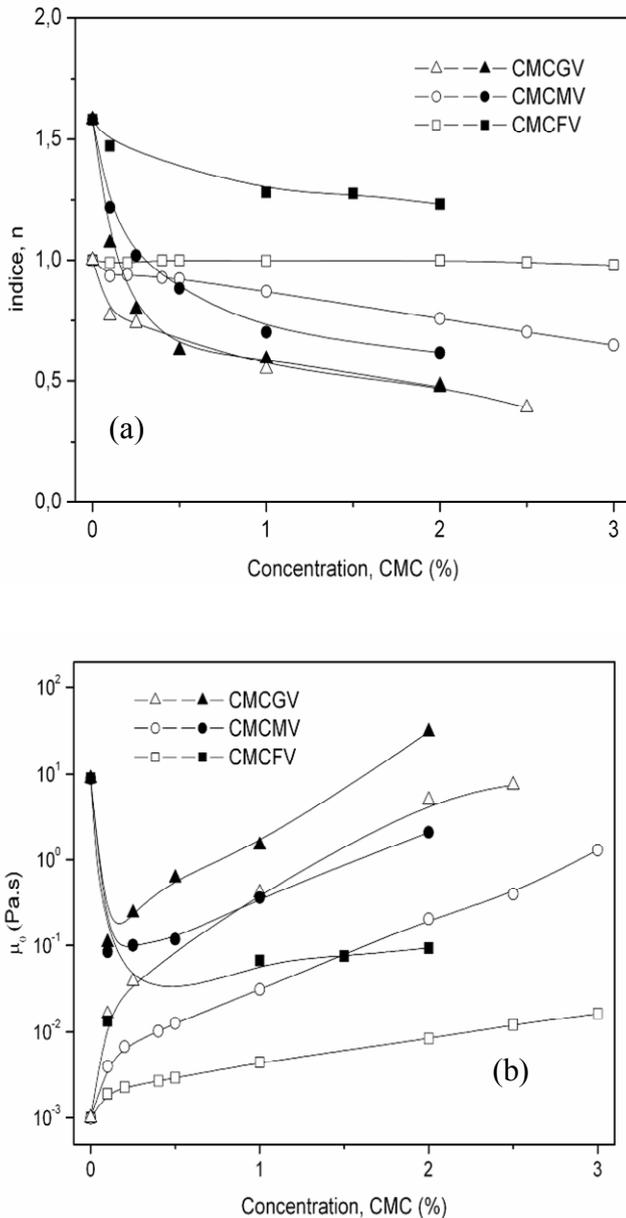


Figure 4 : a) indice d'écoulement, n , (éq. 2) et b) la viscosité à vitesse de cisaillement nulle, μ_0 ; en fonction de la concentration de CMC pour différents poids moléculaires. [\square / \circ / \triangle solutions de CMC] et [\blacksquare / \bullet / \blacktriangle mélanges bentonite-CMC].

3.2 Essais dynamiques

Afin de mieux comprendre la structure interne des mélanges étudiés, des mesures rhéologiques en régime dynamique ont été effectuées sur une gamme de fréquences allant de 10-2 à 10Hz. Il s'agit de mesurer : i) le module élastique, G' , qui est proportionnel à l'énergie élastique emmagasinée par le matériau et restituée au cours d'une période et, ii) le module visqueux, G'' , l'énergie dissipée par frottement visqueux au cours du même cycle.

La contrainte appliquée est de 0,02 Pa pour tous les fluides étudiés. Cette contrainte a été bien choisie dans le domaine de la viscoélasticité linéaire.

3.2.1 Solutions de xanthane et mélanges bentonite-xanthane

Sur la figure 5 illustre l'évolution des deux modules, G' et G'' , en fonction de la fréquence pour : (a) les solutions de xanthane et (b) les mélanges bentonite-xanthane, à différentes concentrations de xanthane.

Nous observons sur la figure 5a qu'à des concentrations de polymère $\leq 0,1\%$, G' et G'' sont fortement dépendants de la fréquence. Dans ce cas, G'' est supérieur à G' et la solution de xanthane se présente dans un état visqueux. Ceci pourrait être expliqué par l'absence de l'enchevêtrement entre les chaînes de polymère à cette faible concentration. A des concentrations de polymère supérieures à 0,1%, nous remarquons un accroissement des deux modules dynamiques en fonction de la fréquence et de la concentration de xanthane. Nous remarquons également, la diminution progressive de la pente moyenne des deux courbes (de G' et G'') avec la concentration de polymère. Pour une fréquence donnée, le module élastique, G' , est largement supérieur au module visqueux, G'' . Dans ce cas, la structure de la solution de xanthane devient de plus en plus rigide à cause de l'enchevêtrement des chaînes de polymères (de nature semi-rigide). Pour une forte concentration de polymère, les macromolécules s'enchevêtrent et forment un réseau stable assuré par des liaisons d'hydrogène entre les chaînes de xanthane (fig. 2).

Par ailleurs, nous observons sur la figure 5b que les modules G' et G'' , relatifs à la suspension de bentonite, sont indépendants de la fréquence. Ceci signifie que la suspension de bentonite est structurée et se présente dans un état gélifié ce qui est expliqué dans la littérature par la formation d'un réseau tridimensionnelle entre les particules argileuses [5]. Ce résultat est en parfait accord avec l'essai d'écoulement et l'explication donnée plus haut (fig. 3).

Pour les mélanges bentonite (3%)-xanthane (fig. 5b), et à la concentration de 0,1% de xanthane, le module G' est inférieur à celui de la suspension de bentonite (3%) (fig. 5b). Par contre, l'inverse est observé pour le module G'' . Dans ce cas, les chaînes polymériques s'adsorbent sur les particules argileuses et les enrobent [14]. Ce type de mécanisme permet d'augmenter la charge négative du mélange, entraînant ainsi l'amplification des forces répulsives dans le système. Ceci favorise l'augmentation du module G'' et la diminution du module élastique, étant donné qu'à cette concentration les chaînes de polymères ne s'enchevêtrent pas.

Nous observons également sur la figure 5b que les courbes des modules (G' et G'') sont légèrement dépendants de la fréquence et qu'elles sont quasi-parallèles pour des concentrations $\geq 0,2\%$ de polymère. Ces mêmes observations ont été obtenues avec les solutions de xanthane sans la présence de l'argile (fig. 5a). A des concentrations $\geq 0,2\%$, la présence du xanthane, dans le

mélange, permet de renforcer les propriétés viscoélastiques de la suspension de bentonite. Ceci est en accord avec la disparition de la région du plateau observée sur les courbes de l'écoulement de la suspension de bentonite (fig. 1). Toutefois, la microstructure du mélange peut être dominée par le réseau macromoléculaire formé par le xanthane.

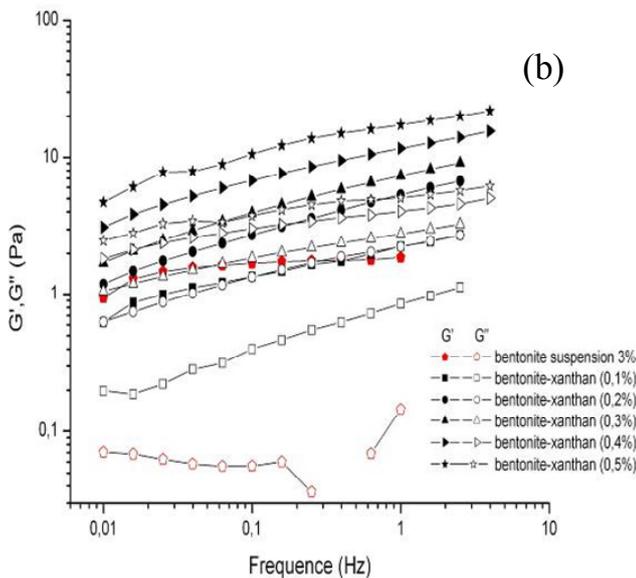
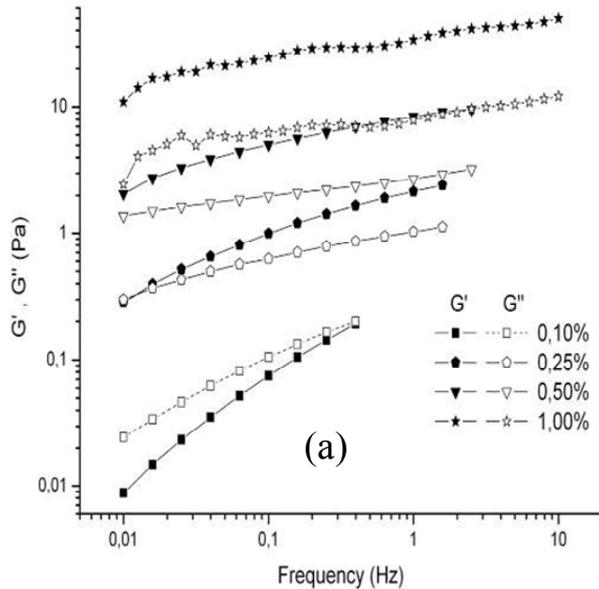


Figure 5 : Evolution de G' et G'' en fonction de la fréquence à différentes concentrations de xanthane pour : a) les solutions de xanthane et b) les mélanges bentonite-xanthane.

3.2.2 Solutions de CMC et mélanges bentonite-CMC

Un résultat typique est représenté sur la figure 6 illustrant la variation de G' et G'' mesurés sur la suspension de base et des mélanges bentonite (3%)-CMC (1%) à différents poids moléculaires. On remarque sur la suspension de base que les deux modules (G' et G'') ne dépendent pas de la

fréquence et que G' est supérieur à G'' , ce qui indique une prépondérance de sa nature élastique. Ce résultat est en accord avec les essais d'écoulement (figure 3) et avec des données publiées sur des suspensions concentrées de cette même bentonite algérienne [6]. En effet, le rhéogramme de la suspension de base montre une structure rigide avant l'écoulement (contrainte seuil). Ceci est expliqué par la création d'un réseau tridimensionnel ouvert, par l'encombrement des particules d'argile, où la liaison face-face est la plus favorisée (pH~10) [5,15].

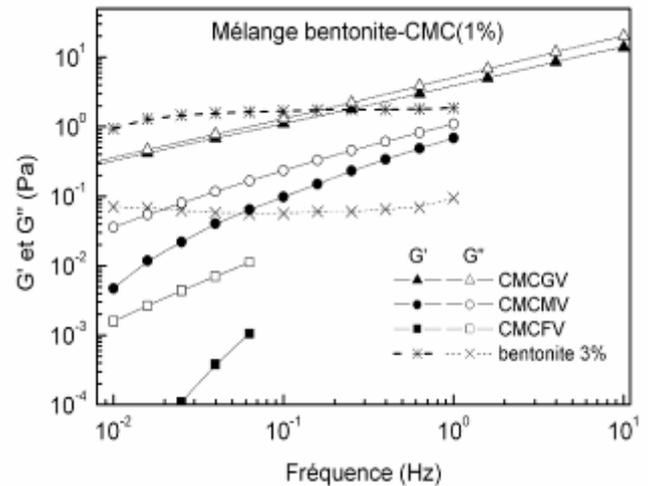


Figure 6 : Evolution typique des modules de conservation, G' , et de perte, G'' , de la suspension de base (3%) et des mélanges bentonite-CMC (1%), à différents poids moléculaires de CMC.

Pour la solution de CMC, les concentrations étudiées ($\leq 3\%$) sont en dessous du régime concentré, donc on est loin d'avoir une réponse viscoélastique à dominance élastique [13]. Nous ne présentons pas ces résultats ici, nous nous contentons de signaler que l'allure des courbes, de G' et G'' en fonction de la fréquence, mesurées sur les solutions de CMC est similaire à celle obtenue sur les mélanges bentonite-CMC (fig. 6). C'est-à-dire, les deux modules (G' et G'') augmentent et se rapprochent en fonction de la fréquence pour les trois poids moléculaires. G' est inférieur à G'' sur toute la gamme de fréquences étudiée, ce qui indique une prépondérance de la nature visqueuse de la solution de CMC et des mélanges bentonite-CMC (fig. 6), ce qui confirme les résultats plus haut de l'écoulement (figs. 3 & 4).

En outre, seul le mélange bentonite-CMCHV (2%) a montré un module élastique, G' , plus élevé que le module visqueux, G'' . Ce comportement, à forte présence de la nature élastique, n'a pas été observé sur les deux autres poids moléculaires (à 2% de CMC). Il s'explique par l'accentuation de l'enchevêtrement lorsqu'on ajoute le CMCHV à cette concentration. La figure 7 illustre cette information et d'autres détails sur le comportement viscoélastique des mélanges bentonite-CMC. Elle présente la variation des modules G' et G'' en fonction de la concentration de CMC, à différents poids moléculaires,

pour une fréquence de 0,01Hz. Comme la viscosité à vitesse de cisaillement nulle, μ_0 , (fig. 4), on observe sur la figure 7 une nette diminution des paramètres viscoélastiques, par rapport à celle de la suspension de base, après l'ajout de 0,1% de polymère. Dans ce cas, G' demeure inférieur à G'' , ce qui indique une prépondérance de sa nature visqueuse. Ainsi, la figure 7 montre un croisement des deux courbes, de G' et G'' , pour le mélange bentonite-CMCGV et une tendance de ce croisement pour les deux autres mélanges. Ceci est expliqué par l'accentuation de l'interaction polymère-polymère avec l'augmentation de la concentration et le poids moléculaire de CMC.

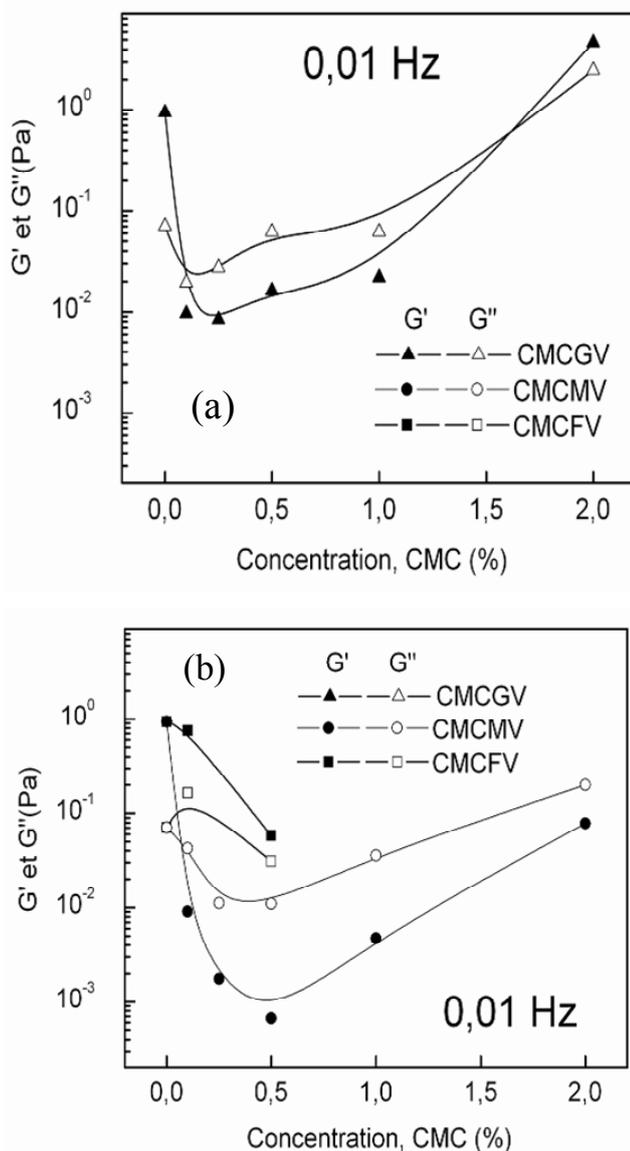


Figure 7 : Module de conservation, G' , et de perte, G'' , mesurés sur la suspension de base et les mélanges bentonite-CMC à différents poids moléculaires à 0,01Hz.

4 CONCLUSION

Nous avons étudié l'effet de l'ajout de deux polymères anioniques, le xanthane et le CMC (à trois poids moléculaires), sur les caractéristiques rhéologiques d'une suspension aqueuse de bentonite algérienne de forage. Après une caractérisation minéralogique de la bentonite étudiée, des mesures rhéologiques, en écoulement et en oscillation, ont été effectuées sur : une suspension de bentonite de base (3%), des solutions des deux polymères et des mélanges bentonite-(CMC/xanthane), à différentes concentrations et poids moléculaire de polymères.

L'étude du comportement rhéologique de la solution de xanthane a permis de déceler la présence d'une contrainte seuil, d'une forte viscosité et des paramètres viscoélastiques de la solution qui augmentent en fonction de la concentration du polymère. De même, l'ajout du xanthane à la suspension de bentonite de base, a permis d'augmenter la contrainte seuil et la viscosité du mélange bentonite-xanthane et de renforcer sa composante élasticité.

Ainsi, les résultats obtenus sur les solutions de CMC ont montré que ce polymère provoque des changements remarquables si on augmente son poids moléculaire et/ou sa concentration dans le système "eau-bentonite-CMC". Nous résumons ceci dans les deux points suivants : 1) l'augmentation de la consistance et de la viscosité apparente (pour supérieure à une vitesse critique de cisaillement qui dépendant de la concentration et du poids moléculaire de CMC); et 2) la disparition de la contrainte seuil et la diminution de l'indice d'écoulement et les propriétés viscoélastiques, montrant ainsi une similitude avec le comportement de la solution de polymère.

Ce résultat renforce la conclusion rapportée dans des travaux antérieurs, portés sur une bentonite de laboratoire [3-5], montrant la dominance du comportement rhéologique du polymère(CMC et xanthane) sur la suspension de bentonite. Dans un tel système (eau-bentonite -CMC et eau -bentonite-xanthane), l'argile servant comme "charge" sans un effet marquant sur la réponse rhéologique du système.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier Mr Karim Bekkour pour son assistance durant la réalisation d'une partie des essais expérimentaux à l'Institut de Mécanique des Fluides et des Solides de Strasbourg, IMFS (France).

REFERENCES

- [1] Caenn R and Chillingar GV (1996) *J. Petrol. Sci. Eng.* **14**, 221-230.
- [2] Cartalos U, Bayloq P, Lecourtier J, and Piau J-M (1997) *Oil Gas Sci. Technol.* **52**, 285-297.
- [3] Benchabane A and Bekkour K (2004) *39ème Colloque annuel du GFR*, pp. 201-205, Mulhouse.
- [4] Benchabane A (2006), Thèse de doctorat de l'ULP Strasbourg I, France.

- [5] Benchabane A and Bekkour K (2006) *Rheol. Acta* **45**, 425-434.
- [6] Bekkour K and Kherfellah N (2002) *Appl. Rheol.* **12**, 234-240.
- [7] Benyounes K, Mellak A, and Benchabane A (2007) *European Journal of Scientific Research* **19**, 121-127.
- [8] Darley HCH and Gray GR (1988), pp. 643, 5th edn., Gulf Publ. Co., TX, USA,
- [9] Hughes TL, Jones TGJ, and Houwen OH (1993) **8**, 157-164.
- [10] Xie W and Lecourtier J (1992) **38**, 155-164.
- [11] Camesano TA and Wilkinson KJ (2001) **2**, 1184-1191.
- [12] Song K-W, Kim Y-S, and Chang G-S (2006) **7**, 129-138.
- [13] Benchabane A and Bekkour K (2008) *Colloid Polym. Sci.* **286**, 1173-1180.
- [14] M'bodj O, Ariguib NK, Ayadi MT, and Magnin A (2004) *J. Colloid Interface Sci.* **273**, 675-684.
- [15] Duran JDG, Ramos-Tejada MM, Arroyo FJ, and Gonzalez-Caballero F (2000) *J. Colloid Interface Sci.* **229**, 107-117.