

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITE SAAD DAHLEB DE BLIDA
Faculté des Sciences de l'Ingénieur

DEPARTEMENT DE CHIMIE INDUSTRIELLE

MEMOIRE DE MAGISTER

Présenté par

M. Samir BENZAOUK

En vue de l'obtention du diplôme de Magister en Génie des Procédés

THEME

**FORMULATION, ETUDE ET MODELISATION
DES PARAMETRES RHEOLOGIQUES DE BOUES
DE FORAGE A BASE DE BENTONITE
ALGERIENNE MODIFIEE : APPLICATION DE LA
METHODE DES PLANS D'EXPERIENCES**

Soutenu publiquement devant le jury

Président :	D.E. Hadj Boussaad	Professeur	U. Blida
Examineurs :	N.D. Djeghri F. Hannane A. Hadj Sadok	Directeur de recherche Maître de conférences Chargé de cours	Sonatrach U. Blida U. Blida
Invités :	Mme N. Haddoum S. Benbrika	Chargée de recherches Senior mud ingeneer	Sonatrach (DF) MI-Algerie
Rapporteur :	H. Khalaf	Professeur	U. Blida

Introduction Générale

Un puits de pétrole ou de gaz ne peut être foré sans la circulation continue du fluide de forage qui permet de faciliter le forage et de préserver le trou jusqu'à sa protection par le tubage. Pour cela, ces fluides constituent tout simplement le pivot de toutes les opérations de forage moderne.

En moyenne, le coût du fluide de forage ne représente que moins de 8 % des dépenses totales. Cependant, son importance est telle, qu'il constitue un élément vital pour le succès de l'ensemble des opérations préconisées pour la construction et l'exploitation d'un puits.

La technologie des fluides de forage est dominée par trois facteurs principaux : la performance, la rentabilité, et le souci environnemental et sécuritaire. Il est clair que l'objectif principal du fluide de forage est de réaliser les meilleures performances qui permettront de mener à bien la totalité des opérations de construction et d'exploitation du puits. Cependant, il doit être disponible, rentable, et non nuisible que ce soit pour la santé et la sécurité des utilisateurs ou à l'environnement

Trouver le juste équilibre entre ces trois facteurs, constitue le défi majeur que doit relever l'industrie des fluides de forage qui fournit cette technologie, et les foreurs qui l'utilisent.

A l'origine, l'objectif principal de ces fluides était le nettoyage du trou par le transport des déblais de forage du bas du trou jusqu'en surface. Cependant, le développement des techniques de forage a appelé ces fluides à remplir des fonctions nettement plus nombreuses et complexes. Ainsi, il existe de nos jours, une grande variété de ces fluides avec une large gamme de composition afin de satisfaire les différentes exigences émanant du trou. Pour accomplir au mieux ces tâches, les fluides de forage doivent présenter des propriétés physico-chimiques bien définies. En plus de la densité et la filtration, les propriétés rhéologiques comptent parmi les plus importantes. Pour un grand nombre de ces fluides, la bentonite en est la première responsable.

Le travail entrepris rentre dans le cadre général de la valorisation des matériaux non ferreux, en l'occurrence, la bentonite. Le domaine d'application visé est celui des fluides de forage. L'étude puise ses motivations de trois sources principales : l'importance de la bentonite dans les fluides de forage, les grandes réserves de ce minéral que compte l'Algérie, et l'immense opportunité d'application qu'offre le domaine du forage.

L'objectif est de porter certaines modifications sur une bentonite algérienne (de Maghnia) afin d'en fabriquer des matériaux avec de nouvelles et de meilleures performances comme viscosifiants pour les fluides de forage.

Ces modifications sont essentiellement des traitements de purification et d'intercalation. L'idée est d'introduire de nouvelles espèces cationiques dans l'espace interfolier de cette argile en exploitant sa capacité d'échange cationique.

L'intérêt est porté sur trois produits : la montmorillonite sodique (Mont-Na), l'argile organophile (AO), et l'argile hydrophile modifiée (AHM).

Ces nouveaux produits sont testés comme viscosifiants dans des boues à base d'eau ou à base de gasoil (selon le caractère hydrophile ou organophile). La qualité de ces viscosifiants est évaluée par l'étude des paramètres rhéologiques des boues ainsi formulées.

L'approche expérimentale adoptée est celle de la méthode des plans d'expériences. Celle-ci offre une meilleure organisation du travail, et une meilleure exploitation des résultats. Les essais réalisés sont ainsi de nombre plus réduit, et choisis de façons à respecter certains critères de qualité dans la modélisation.

Le recours aux logiciels de plans d'expériences et statistiques permet le choix judicieux de la séquence d'essais à réaliser et surtout un traitement plus exhaustif des résultats.

Le but est d'abord d'explorer et de décrire les propriétés rhéologiques des boues formulées, afin de mettre en valeur leurs performances et d'évaluer la qualité des viscosifiants proposés, puis de modéliser la variation de ces propriétés de manière à pouvoir prévoir le comportement rhéologique de ces fluides.

L'effort est donc consacré plutôt à la description et à la modélisation qu'à l'interprétation chimique ou physique des phénomènes observés.

Selon ce raisonnement, ce travail est conduit suivant l'ordre des étapes suivantes : la confection des produits argileux, la mise en évidence des modifications opérées, l'application des produits obtenus comme viscosifiants et l'étude des propriétés rhéologiques des boues formulées, puis enfin, la modélisation des paramètres rhéologiques étudiés.

Cette étude est réalisée en collaboration avec la société AMI.spa (Société mixte Algero-Américaine) spécialisée dans les fluides de forage. Ainsi, pour être conformes aux pratiques et aux normes en vigueur dans le domaine, une bonne partie des mesures expérimentales est effectuée au sein du laboratoire technique de la base de la société AMI, située à Hassi Messaoud.

Résumé

Ce travail vise à fabriquer à partir de la bentonite, des matériaux avec de meilleures et/ou de nouvelles performances comme viscosifiant pour les fluides de forages. L'intérêt est porté sur trois produits : la Montmorillonite sodique (Mont-Na), l'argile organophile (AO) et l'argile hydrophile modifiée (AHM). Les deux derniers sont obtenus par l'insertion de nouvelles espèces cationiques dans l'espace interfolier du premier. L'analyse par IR et DRX ont permis de mettre en évidence les modifications opérées. L'étude des propriétés rhéologiques des boues formulées à base de ces matériaux, a permis d'évaluer leur qualité comme viscosifiant. En effet, les tests standards API appliqués à la Mont-Na ont montré que celle-ci est tout à fait digne du grade OCMA. L'application du produit AO comme viscosifiant pour le gasoil a donné une boue avec de très bonnes propriétés rhéologiques. Ce produit a aussi donné un assez bon résultat dans un système à émulsion inverse MI 95/5. La boue à base d'eau du produit AHM a montré un comportement semblable à celui du fluide MMH-Bentonite. Les propriétés de cette boue sont hautement tributaires des conditions de synthèse du produit AHM. L'utilisation de la méthode des plans d'expériences a permis d'affiner l'approche expérimentale et d'évaluer avec précision la qualité des modèles prévisionnels calculés pour les propriétés rhéologiques des boues formulées.

Abstract

This work aim to modify bentonite in order to make materials with better and/or new performances as viscosifier for drilling fluids. The products obtained are labeled: Mont-Na, AO and AHM. The two last were prepared by the insertion of new cationic species in the interlamellar space of Mont-Na. IR and XRD analysis allowed us to evidence the modifications carried out. The rheological study realized on the formulated mud allowed us to evaluate the quality of the viscosifiers proposed. API standard tests showed that Mont-Na satisfy the OCMA grade bentonite physical requirements. The mud obtained using AO as viscosifier for gasoil exhibited very interesting rheological properties. AO also displayed good performances in 95/5 MI-Versadril formulation. AHM in water gave results close to those of MMH-Bentonite drilling fluid, its properties are very dependants on the AHM synthesis conditons. The use of Design of Experiments method allowed us to obtain good predictive models for the rheological parameters of the formulated mud.

ملخص:

إن هذا العمل ينصب في المجهود العام الرامي لتثمين مادة صلصالية كثيرة الانتشار في الجزائر ألا وهي البنتونيت. هدفه هو استعمال هذه المادة للحصول على مركبات أخرى تعطي دورا أكثر نجاعة في سوائل حفر آبار البترول. في هذا الصدد تم الحصول على ثلاث مواد سميت على الترتيب Mont-Na ، AO و AHM . التحليل بالأشعة السينية و الأشعة ما تحت الحمراء سمح بتبيين التغيرات المدخلة على المادة الأولية. استعمال هذه المركبات كمادة لزجة أعطى نتائج جد مرضية. بالفعل أظهرت Mont-Na خصائص مطابقة تماما لموصفات OCMA، بينما استعمال AO في الديزل أعطى سائلا يتميز بخصائص ريولوجية ممتازة، كما أعطى نتائج لاباس بها في سائل تجاري MI 95/5. AHM في الماء أظهر بدوره مميزات تظاهي تلك التي يختص بها سائل الحفر المتميز MMH-Bentonite . استعمال طريقة تخطيط التجارب سمح بالحصول على نماذج رياضية تمثل بدقة تغير الخصائص الريولوجية للسوائل المدروسة.

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je tiens à remercier Dieu tout puissant pour m'avoir préservé, donné la santé et guidé vers la connaissance et le savoir.

Je tiens à témoigner toute ma reconnaissance à mes parents et ma famille pour leur soutien et leur patience.

Je remercie vivement mon promoteur, le professeur H.Khalaf pour m'avoir incorporé au sein de son groupe de recherche et pour m'avoir encadré et guidé tout le long de ce projet.

J'adresse mes vifs remerciements au professeur D.Hadj Boussaad, doyen de la faculté des sciences de l'ingénieur, pour avoir accepté de présider mon jury.

Toutes les expressions de reconnaissance vont aux membres du jury :

Le professeur N.D. Djeghri, directeur du CERHYD, M. F. Hannane maître de conférence à l'université de Blida et président du conseil scientifique du département de DES, ainsi que M. A. Hadj Sadok chargé de cour au département de chimie industrielle.

J'exprime aussi ma profonde gratitude à M^{me} N. Haddoum, chargée de recherche à la division forage (Sonatrach) et M. S. Benbrika, Senior mud ingeneer au sein de la société MI-Algerie, pour nous avoir fait l'honneur de leur présence lors de la soutenance de ce mémoire.

Je tiens aussi à faire part de ma sincère gratitude aux personnes qui, souvent dans l'ombre, m'ont prêté main forte pour le développement et la réalisation de cette étude. Je cite en particulier :

M. Hadj Sadok pour sa grande contribution, sa gentillesse et ses précieux conseils. Aussi pour m'avoir accueilli au sien du laboratoire de rhéologie où une grande partie des tests a été réalisée. Je tiens aussi à saluer toute son équipe pour leur soutien et l'ambiance très amicale qu'elle faisait régner.

M^{me} Haddoum pour m'avoir facilité l'accès au CRD Sonatrach et pour sa grande disponibilité.

M. S. Benharath du service de documentation de la division forage (Sonatrach) et les gens de la bibliothèque du CRD Sonatrach, en particulier M. Tounsi, ainsi que ceux de la bibliothèque de l'INH (Boumerdès), pour m'avoir aidé à la collecte de la documentation nécessaire.

M. Belkadi du CRD (Sonatrach), M. Layachi du CDTA et M. Bouchrih de CETIM pour les analyses par DRX.

Les gens de la société MI pour leur précieuse aide, leurs conseils et leur grande hospitalité.

Je cite en particulier: M. S Benbrika, M. D. Mimouni, M. Rushdi,

M. H. Abou Heif, M. L. Pannetier et toutes les personnes que j'ai connu là-bas.

M. M. Boumédiène et M. A. Abed pour leur contribution très louable.

J'adresse mes salutations à tous les membres de l'équipe de recherche du laboratoire de valorisation des matériaux non ferreux où ce travail a été réalisé.

Je remercie aussi, tout le staff administratif, pédagogique, technique et sécuritaire du département de Chimie industrielle de l'université de Blida.

Je salue aussi tous mes amis et mes collègues pour leur soutien moral très réconfortant.

Dédicaces

A la mémoire de ma défunte sœur Safia

A

Ma mère

Mon père

Mes sœurs

Mes frères

Mes amis

Et mes collègues

III.A.6.1 Cations échangeables.....	23
III.B La bentonite et produits dérivés	
III.B.1 Aperçu général sur la bentonite.....	25
III.B.2 Le fluide MMH-Bentonite.....	26
III.B.3 Les argiles organophiles.....	27
III.B.4 Les argiles intercalées.....	27
Chapitre IV: La méthode des plans d'expériences	
IV.A Introduction à la méthode des plans d'expériences	
IV.A.1 Historique.....	29
IV.A.2 Performances et limites de la méthode.....	29
IV.A.3 Terminologie.....	30
IV.A.4 Variabilité naturelle (Incertitude) et grandeurs aléatoires.....	31
IV.A.5 Phase de mise en œuvre d'un plan d'expériences.....	32
IV.A.6 Instruction du problème.....	32
IV.A.6.1 Formalisation du problème.....	32
IV.B Modélisation discrète (Discontinue) et plans orthogonaux	
IV.B.1 La modélisation.....	34
IV.B.1.1 Modélisation de la part déterministe.....	34
IV.B.2 Construction des plans orthogonaux.....	35
IV.B.3 L'analyse des résultats.....	37
IV.B.3.1 Estimation de la constante, des effets moyens et des interactions...	37
IV.B.3.2 L'analyse de la variance ANAVAR.....	37
IV.B.3.3 Analyse des résidus.....	39
IV.B.3.4 Validation du modèle discret.....	39
IV.B.3.5 Intervalles de confiance sur les effets et les réponses moyennes....	41
IV.B.4 Inconvénients des plans orthogonaux.....	41
IV.C Modélisation en surface de réponses (Continue) et plans optimaux	
IV.C.1 Introduction.....	42
IV.C.2 Calcul matriciel.....	42
IV.C.3 Modèle du second degré (quadratique) et analyse canonique.....	43
IV.C.3.1 Modèle du second degré.....	43
IV.C.3.2 Analyse canonique.....	44
IV.C.4 Qualité du modèle et transmission des erreurs.....	46
IV.C.4.1 Calcul des coefficients du modèle par la régression multilinéaire...	46
IV.C.4.2 Evaluation de la qualité du modèle.....	47
IV.C.4.3 Transmission des erreurs.....	47
IV.C.5 Les critères d'optimalité.....	49
IV.C.6 Les plans optimaux.....	50
IV.D Les plans de mélanges	
IV.D.1 Modèles mathématiques.....	52
IV.D.2 Les différents types de plans de mélanges.....	52

◆ Partie pratique

Chapitre V : Préparation des produits argileux et application comme viscosifiants

Introduction	54
V.A : Préparation des produits argileux	
V.A.1 Produits et appareillage.....	55
V.A.2 La montmorillonite sodique (Mont-Na).....	55
V.A.3 L'argile organophile (AO).....	56
V.A.4 L'argile hydrophile modifiée (AHM).....	56
V.A.5 Techniques de caractérisation.....	57
V.A.5.1 Diffraction de rayons X (DRX).....	57
V.A.5.2 Spectrophotométrie Infrarouge (IR).....	58
V.B : Formulation des boues et tests de rhéologie	
V.B.1 Produits et appareillage.....	59
V.B.2 Protocole des tests de rhéologie.....	59
V.B.2.1 Mesures avec le rhéomètre Fann 35SA.....	59
a. Description de l'appareil.....	59
b. Protocole des mesures.....	60
V.B.2.2 Mesures avec le rhéomètre Physica Rhéolab MC1.....	61
a. Description de l'appareil.....	61
b. Protocole des mesures.....	61
V.B.3 Organisation des essais.....	62
V.B.3.1 La montmorillonite sodique (Mont-Na).....	63
a. Tests API.....	63
b. Effet du pourcentage de Mont-Na.....	63
V.B.3.2 L'argile organophile AO.....	64
a. Application dans le gasoil.....	64
b. Application dans les boues MI-VERSADRIL.....	65
V.B.3.3 L'argile hydrophile modifiée AHM.....	66
a. Application dans l'eau.....	66
b. Etude de l'influence des paramètres de synthèse.....	67

Chapitre VI : Résultats expérimentaux

VI.A Caractérisation des produits argileux	
VI.A.1 La diffraction de rayons X.....	69
VI.A.2 La spectrophotométrie infrarouge (FTIR).....	73
VI.B Application des produits argileux comme viscosifiants	
VI.B.1 La montmorillonite sodique (Mont-Na).....	75
a. Tests API.....	75
b. Etude de l'effet du % Mont-Na.....	76
VI.B.2 L'argile organophile AO.....	78
VI.B.2.1 Application dans le gasoil.....	78
a. Mesures avec le rhéomètre Fann 35SA.....	78
b. Mesures avec le Rhéolab MC1.....	81
c. Comparaison avec le produit KRATONG (KTG).....	89
VI.B.2.2 Application dans les boues MI-VERSADRIL.....	92
VI.3 L'argile hydrophile modifiée AHM.....	94
VI.3.1 Application dans l'eau.....	94
a. Test de robustesse du produit AHM.....	94

b. Etude de l'effet du % en AHM.....	95
c. Comportement de la boue après vieillissement à haute température...	98
VI.3.2 Etude de l'influence des paramètres de synthèse du produit AHM....	102
Chapitre VII : Modélisation	
Introduction	107
VII.1 La montmorillonite sodique (Mont-Na).....	108
VII.2 L'argile organophile AO.....	117
a. Plan avant vieillissement.....	117
b. Plan après vieillissement.....	127
VII.3 L'argile hydrophile modifiée AHM.....	136
a. Etude de l'effet du pourcentage en AHM.....	136
b. Comportement de la boue après vieillissement.....	140
c. Etude de l'effet des paramètres de synthèse du produit AHM.....	147
Conclusions.....	158
Références bibliographiques	

◆ Principales notations

a_0 : Coefficient constant
 a_{ii} : Coefficients des termes carrés
 a_{ij} : Coefficients des termes rectangles
 \underline{a} : Vecteur de tous les coefficients d'un modèle
 $\hat{\underline{a}}$: Vecteur des coefficients déterminés par la méthode des moindres carrés
 \underline{a}_k : Vecteur des coefficients des termes du premier degré
AHM: Argile hydrophile modifiée
AO: Argile organophile
API: Institut américain du pétrole
CCR: Coordonnées centrées réduites
CEC: Capacité d'échange cationique
CSS : Contrainte seuil statique
 d : Densité
 $d(\hat{y}_p)$: Fonction erreur de prédiction
 $d^2(\hat{y}_p)$: Fonction variance de prédiction
 $\sigma(\hat{y})$: la fonction erreur sur la réponse prédite.
 ddl : Degré de liberté
 Δ : Ecart d'ajustement
 σ_r^2 : Variance des résidus
 \underline{e} : vecteur des résidus
 e_i : Résidu (écart)
 F : F de Fisher Snedecor
 F_{crit} : la valeur critique du F de Fisher
Gel₀: Gel 10s (gel zero)
Gel₁₀: Gel 10min
HTHP: Haute température, haute pression
IADC: International association of drilling contractors
 IC : Demi-largeur d'un intervalle de confiance
 K : Indice de consistance
MMH: Mixed metal hydroxide
Mont-Al-OH: Montmorillonite intercalée au polyhydroxyaluminium
Mont-Na : Montmorillonite sodique
 n_A : Nombre de niveaux du facteur A
 n : Indice de comportement
OCMA: Oil companies material association
 p : nombre de coefficients indépendants du modèle
PV: plastic Viscosity
 Q^2 : Coefficient de prédiction
 R : coefficient de corrélation linéaire.
 $r_{n-2,\alpha}$: est la valeur limite du coefficient de corrélation linéaire
 R^2 : Coefficient de corrélation
 $SCE()$: Somme des carrés des écarts de()

t_{eq} : Temps d'équilibre
 $t_{h:1-\alpha/2}$:: Fractile de la loi de Student
 V_F : Volume du filtrat
 x_i : Niveau d'un facteur exprimé en CCR
 \underline{x}_k : Vecteur des coordonnées d'un point
 \underline{x}_p : Vecteur modélisé du point p
 X : Matrice de calcul des effets
 $X^t X$: Matrice d'information
 $(X^t X)^{-1}$: Matrice de dispersion
 y : Réponse mesurée
 \underline{y} : Vecteur des réponses mesurées
 \hat{y} : Réponse prédite
 YP : Yield point

◆ Symboles et unités

➤ Symboles

γ : Taux de déformation
 $\dot{\gamma}$: Vitesse de cisaillement
 τ : Contrainte de cisaillement
 τ_0 : Contrainte seuil statique CSS
 η : Viscosité absolue
 μ : Viscosité apparente (dynamique)
 μ_0 : Viscosité de la première région Newtonienne
 μ_∞ : Viscosité de la deuxième région Newtonienne
 μ_p : Viscosité plastique
 $(\tau_{0C} \text{ et } \mu_{pC})$: Paramètres du modèle de Casson : AC, BC
 \emptyset : Diamètre
 \bar{v} : Nombre d'onde

➤ Unités

cP : Centipoise
 Pa : Pascal
 lbs /100ft² : Livre par 100 pieds carrés
 ppg : livre par gallon
 psi : livre par pouce carré
 °F : Degré Fahrenheit
 V : Volt

I. Les fluides de forage

I.1 Introduction

Les fluides de forage constituent le pivot de toutes les opérations de forage modernes, bien qu'ils ne représentent que moins de 8% des dépenses totales.

La technologie des fluides de forage est dominée par trois facteurs principaux : la performance, la rentabilité, et le souci environnemental et sécuritaire. Il est clair que l'objectif principal du fluide de forage est de réaliser les meilleures performances qui permettront de mener à bien la totalité des opérations de construction et d'exploitation du puits. Cependant, il doit être disponible, rentable, et non nuisible, que ce soit pour la santé et la sécurité des utilisateurs ou à l'environnement.

Trouver le juste équilibre entre ces trois facteurs, constitue le défi majeur que doit relever l'industrie des fluides de forage qui fournit cette technologie, et les foreurs qui l'utilisent.

L'Histoire des fluides de forage est très attachée au développement de l'industrie pétrolière. C'est en 1901, sur le champ de Spindletop près de Beaumont sur les côtes du golf du Texas, que furent introduits pour la première fois les fluides de forage par le capitaine Lucas. Il a ainsi mis la première plinthe de ce qui est aujourd'hui le grand édifice de l'industrie des fluides de forage.

En fait, le premier fluide de forage moderne a été obtenu en faisant passer un troupeau de bétail dans un borbier, les foreurs en ont utilisé la boue résultante. C'est de cette petite histoire qu'on a collé aux fluides de forage leur surnom le plus connu « boue de forage » ou simplement « boue » [1].

En réalité, bien avant 1901, on utilisait déjà un mélange d'eau et d'argile, et la grande histoire des fluides de forage peut être divisée en quatre périodes :

- Période artisanale (avant 1901) : où ces fluides étaient constitués essentiellement d'eau.
- Période empirique (de 1901 à 1928) : on ne s'intéressait qu'à la densité, la viscosité et l'eau surnageant la boue.
- Période expérimentale (de 1928 à 1955) : l'étude expérimentale prend de l'ampleur et le progrès devient très vite sensible
- Période technique (à partir de 1955) : le développement devient très rapide, les fluides de forage de plus en plus performants et appelés à jouer des rôles de plus en plus complexes [2].

I.2 Les fonctions principales des fluides de forage

A l'origine, l'objectif principal des fluides de forage était uniquement de servir de véhicule pour le transport des débris (cuttings) du bas du trou jusqu'en surface. Cependant, au fur et à mesure que les puits sont devenus plus profonds et plus complexes, on a exigé de ces fluides de remplir plus de fonctions.

Les principaux rôles attribués aux boues de forage sont [1] [3] :

- 1) Nettoyage du trou par le transport des débris et des éboulis jusqu'en surface et permettre leur séparation. Aussi, maintenir ces déblais en suspension lors des différents arrêts de circulation.
- 2) Nettoyage, lubrification, et refroidissement de l'outil et de la garniture de forage.
- 3) Réduire les frictions entre le train de sonde et les parois du trou ou le cuvelage.
- 4) Maintenir la stabilité du trou par la prévention des phénomènes de cavage et de resserrement des parois.
- 5) S'opposer aux venues d'eau, de gaz ou d'huile des formations forées.

- 6) Revêtir les parois par un cake protecteur fin et peu perméable
- 7) Favoriser la vitesse de pénétration et soutenir le poids du train de sonde et du tubage.

En plus de ces fonctions, les fluides de forage doivent obéir à certaines restrictions :

- Ne pas endommager la zone productrice.
- Ne pas affecter la santé et la sécurité du personnel, et ne pas nuire à l'environnement.
- Ne pas affecter le rendement des autres opérations, telle que la complétion.
- Ne pas gêner les interprétations électriques et géologiques.

Le fluide de forage doit jouer tous ces rôles tout en restant fluide, stable, et recyclable, et ce en dépit des différentes conditions hostiles émanant du trou.

Ces fluides sont donc sensés accomplir toutes ces tâches en tout état de figure. Cependant, une ou plusieurs fonctions peuvent prendre le dessus, selon l'étape ou le type de forage. Ainsi pour le forage horizontal ou celui à grandes profondeurs, le nettoyage et la stabilité du trou sont les plus critiques. Par contre, en formation sableuse ou fragile, le plus important est d'éviter l'endommagement de la zone productive. Ou encore le paramètre toxicité, lors des forages marins ou dans les milieux à environnement très sensible [4].

I.3 Caractéristiques des fluides de forage

Les fluides de forage doivent posséder des caractéristiques bien définies pour accomplir correctement leurs différentes fonctions. Ces caractéristiques, tributaires au départ de la composition de la boue, peuvent facilement évoluer au cours de l'utilisation, sous l'influence des formations forées. Cela oblige un contrôle continu, et des traitements correctifs opportuns aux différentes exigences survenues.

I.3.1 La densité

La densité de la boue est un paramètre très important, il est lié à la capacité de transport des déblais, et surtout il est directement proportionnel à la pression hydrostatique exercée par la colonne de la boue.

Elle est mesurée à l'aide d'un densimètre très simple qui permet la lecture directe (en lb/gal ou kg/l) [5].

Selon le besoin, il est souvent nécessaire d'alléger la boue dans le trou par l'ajout d'eau ou d'huile ou de l'alourdir par l'ajout d'alourdissant tel le sulfate de baryum et le carbonate de calcium. Cependant, cela peut parvenir intentionnellement, respectivement par la venue d'eau, d'huile ou de gaz ou l'enrichissement en solide, à partir des formations forées.

La valeur de la densité doit être ajustée de façon à ce que la pression hydrostatique de la boue contrebalance la pression des fluides des formations poreuses, et la poussée des terrains mal consolidés ayant tendance à s'ébouler. Cela permettra d'empêcher la venue des fluides des formations, former un cake fin et peu perméable et maintenir la stabilité des parois du puits [6].

Une densité trop élevée peut conduire à une diminution de la vitesse de pénétration, et à l'apparition de fractures dans les formations provoquant des pertes de la circulation de la boue.

I.3.2 Les propriétés rhéologiques et l'écoulement

Les propriétés rhéologiques et d'écoulement du fluide jouent un grand rôle dans le succès de l'opération de forage, car le transport des déblais et la vitesse de progression en sont très dépendantes. Une mauvaise performance dans ce sens peut entraîner d'énormes problèmes, tels que le bouchage du trou, le bourrage du fond par les débris, la diminution de la vitesse de pénétration, le phénomène de cavage, les pertes de circulation, coincement des tiges, et les risques d'éruption.

I.3.3 Filtration et cake

Lorsque le fluide de forage se trouve en contact des parois plus ou moins perméable du trou, la partie liquide filtre dans la formation en déposant sur les parois la partie solide qui formera le cake. Cette habilité à former une couche peu perméable permet de contrôler l'invasion de la boue dans la formation poreuse.

La filtration qui se fait lorsque le fluide est en circulation, est appelée filtration dynamique, la filtration statique se fait lorsque le fluide est immobile. Les propriétés de filtration statiques sont mesurées par des appareils standards.

Le débit de filtration et les propriétés du cake (perméabilité et épaisseur) dépendent d'un grand nombre de paramètres : le temps, la température, la pression, la viscosité du fluide, la distribution de la taille des particules solides dans la boue, la composition du fluide, les conditions électrochimiques, l'érosion du cake, et la nature de la formation. Cette dernière dicte en grande partie les propriétés de filtration requises du fluide à utiliser. Ainsi une formation stable et peu poreuse peut être forée sans le recours à un contrôle rigoureux de ces propriétés, ce qui est tout à fait le contraire pour les formations argileuses ou marneuses très sensibles à l'eau ou les formations peu consolidées.

D'une manière générale, le filtrat doit être suffisamment élevé pour augmenter la vitesse de pénétration, et suffisamment bas pour ne pas déliter ou faire gonfler les formations argileuses et marneuses, et éviter l'élargissement du trou, les cavages, les éboulements et la formation de cake trop épais pouvant provoquer le coincement de du train de sonde.

Il est aussi primordial d'éviter que le filtrat envahisse la zone productive. Cela conduirait à une diminution de la perméabilité du réservoir, une obturation de ses canaux, et la formation d'émulsions stables, ce qui peut réduire considérablement sa productivité [3].

Pour toutes ces raisons, les propriétés de filtration du fluide de forage doivent être contrôlées en continu, et ajustés en conséquence.

I.3.4 l'émulsion

Dans les boues à base d'eau, la dispersion d'une phase huileuse peut s'avérer très fructueuse, car elle permet :

- Le dépôt d'un cake fin, résistant, et à grand pouvoir lubrifiant, ce qui permet de minimiser les frottements, et d'augmenter la vitesse de pénétration.
- Alléger la boue grâce à la faible densité de l'huile.
- Imperméabiliser le cake réduire le filtrat et la dispersion de l'argile.
- Augmenter la durée de vie du train de sonde par la diminution des frottements grâce à une meilleure lubrification.

Les fluides de forage doivent aussi présenter un certain nombre de caractéristiques qui doivent être contrôlées d'une manière plus ou moins rigoureuse : la teneur en sable, en eau et en huile, le pH, l'alcalinité, la lubricité, la corrosivité, les propriétés électriques, la teneur en électrolytes divers, la tension superficielle et autres.

I.4 Les types de fluides de forage

Au cours du forage, les propriétés requises du fluide de forage changent en conséquence du changement des conditions du bas du trou. L'efficacité de l'opération de forage dépend donc énormément de l'adaptation des propriétés du fluide aux différentes exigences émanant du trou. Pour cela, il existe différents types de fluides de forages dont les propriétés peuvent être proches ou très différentes.

Selon le constituant de base, il existe quatre types de boues de forage ; boues à base d'eau, à base d'huile, à base de fluides synthétiques, et les fluides pneumatiques [1].

Ces fluides de base peuvent aussi être présents dans une même boue.

D'une manière générale, les différents constituants appartiennent à l'une des trois phases pouvant constituer la boue :

- la phase continue qui est le fluide de base dans lequel sont dissous, en suspension et/ou en émulsion, les autres constituants.
- la phase solide constituée des différentes particules solides présentes dans la boue.
- la phase discontinue constituée du fluide émulsifié dans la phase continue.

I.4.1 Les boues à base d'eau

La plus grande majorité des opérations de forage utilisent les boues à base d'eau. Celles-ci ont la composition générale suivante :

- l'eau occupant la plus grande partie du volume et pouvant contenir de l'huile émulsifiée et des produits chimiques solubles
- les argiles, ajoutées ou en provenance des formations forées, les colloïdes organiques, et les produits en sursaturation
- les solides inertes qui n'agissent que par effet de masse et sont insensibles à l'action chimique, tels que le sable, le calcaire, la dolomie, et la barytine.

Selon le besoin et la disponibilité, l'eau peut être douce, salée ou carrément de l'eau de mer ou de l'eau salée saturée. Suivant ce concept, les boues à base d'eau peuvent être divisées en :

I.4.1.1 les boues douces

Les boues douces ont généralement comme point de départ, et comme base, la boue bentonitique simple. Celle-ci est constituée d'une suspension de bentonite sodique (de 3 à 8%) dans une eau douce. Cette suspension présente des caractéristiques rhéologiques et de filtration primaires mais assez intéressantes. Cependant l'utilisation de ces fluides se limite au début de sondage et aux pertes de circulation, car leurs propriétés sont très affectées par la nature des formations (argile dispersée, CaSO_4 , NaCl) et ne sont pas aptes à affronter les conditions des zones profondes.

Pour pallier ces lacunes, des traitements curatifs sont apportés à ce type de boues, par l'ajout d'additifs spécifiques. Les principales modifications sont :

- traitement avec des produits fluidifiants et défloculants tels que les tanins, les lignines, les lignosulfonates, les tourbes, les acides humiques et les lignites.
- traitement par des produits réducteurs de filtrats : carboxyméthylcellulose (CMC) et l'amidon.
- traitement avec des sels de calcium : la chaux Ca(OH)_2 et le gypse (CaSO_4).

Les boues ainsi obtenues ne constituent pas de nouveaux types, mais plutôt des boues douces simplifiées obtenues à partir de traitements simples sur une boue déjà préparée. Par contre de nouveaux types de boues à proprement parler, sont formulées à partir du même principe, mais avec des additifs qui rendent la composition plus complexe et développent des propriétés nettement plus performantes, telle que la résistance aux contaminants, aux hautes températures et aux charges argileuses, ainsi que les propriétés inhibitrices et de filtration. Parmi ces fluides ; les boues douces aux dérivées ligneux (lignosulfonates de ferrocrome FCL, lignine chromée LC, humâtes de chrome) ainsi que les boues douces calciques (à la chaux et au gypse) [5] [7].

I.4.1.2 Les boues salées

Il existe deux principaux types :

- Les boues salées non saturées : comptent les boues salées non saturées simples (NaCl entre 10 et 50g/l) obtenues essentiellement par la contamination des boues douces, et les

boues à l'eau de mer, très utilisées surtout dans les forages marins (offshore) ou elles sont plus économiques.

- Les boues salées saturées (NaCl 300g/l environs) qui sont prévues dans le cas de forage de sel massif ou des marnes peu dispersibles contenant d'importantes quantités de sel, afin d'éviter les cavages.

Comme pour les boues douces, il y a aussi les boues salées aux dérivés ligneux. Actuellement, de grandes variétés de boues à base d'eau sont formulées par l'ajout d'additifs spécifiques selon les propriétés requises.

I.4.2 Les boues à base d'huile

C'est une boue constituée d'une phase continue l'huile dans laquelle est dispersée une phase aqueuse. Le pourcentage volumique de ces deux phases est exprimé en rapport huile/eau. Selon ce rapport, il existe deux types de boues à base d'huile : boue dont le pourcentage de l'huile est entre 95 et 98%, et boue à émulsion inverse (phase aqueuse dispersée dans l'huile) dont le pourcentage de la phase aqueuse peut atteindre plus de 60%. D'une manière générale, ce rapport peut aller de 100/0 jusqu'à 40/60.

Les caractéristiques uniques des boues à base d'huile leur permettent un grand éventail d'utilisation avec des performances inégalables. Ces boues sont hautement inhibitives, résistantes aux contaminants, stables aux hautes températures et aux hautes pressions, non corrosives et possèdent d'excellentes caractéristiques de filtration, ainsi qu'un grand pouvoir lubrifiant. Pour tout cela, ces fluides sont d'une grande efficacité lors du forage des réservoirs, des formations argileuses très réactives, les formations contenant des évaporites, les trous à grande profondeur et ceux à hautes températures et hautes pressions contenant du H₂S. Elles sont aussi utilisées dans les opérations spéciales telle que le décoincement des tiges.

D'un point de vue économique, elles peuvent être assez rentables vue la vitesse de pénétration qu'elles permettent de réaliser et les dépenses qu'elles permettent d'éviter. Néanmoins, parmi les inconvénients : prix de revient assez élevé au m³, risques d'incendie, manipulation salissante et nécessitant un appareillage spécial. Mais sans doute, l'inconvénient principal de ces boues est leur grande toxicité, ce qui réduit et conditionne leur utilisation [1].

La composition courante d'une boue à l'huile est la suivante :

. Huile de base 95 à 98% : on utilise de l'huile brute, l'huile Diesel, et plus récemment de l'huile minérale à moindre toxicité.

. Eau émulsionnée 2 à 5%, agents plastifiants, agents émulsifiants et stabilisants, agents fluidifiants, alourdissant, et autres [5].

Les boues à émulsion inverse sont de plus récente utilisation, et permettent de réaliser les mêmes performances, avec un autre apport d'avantages et des inconvénients moindres.

I.4.3 Les boues à base de fluides synthétiques

L'inconvénient majeur des boues à base d'huile est la grande toxicité de l'huile de base (surtout le Diesel) due à son taux élevé en aromatiques. L'objectif principal des fluides synthétiques est de trouver un substitut synthétique à l'huile de base qui soit apte à conférer les performances et les propriétés inhibitives des boues à base d'huile, tout en ayant une toxicité et un impact environnemental minime. Pour ce faire, ces fluides sont synthétisés de façon à éliminer ou à minimiser la teneur en aromatiques, et améliorer leur biodégradabilité [4]. Ces fluides de base sont fabriqués à partir de matières premières synthétisées ou obtenues par le traitement de certaines huiles végétales. Ainsi, leur composition et leurs propriétés peuvent être variées selon le besoin.

Les premiers composés utilisés comme base pour ces boues, sont les esters, les éthers les polyalphaoléfines (PAO) et les acétals. La deuxième génération, un peu plus toxiques mais moins chère, comprend les oléfines isomérisées (OI) les alphaoléfines linéaires (AOL) et les alkylbenzène linéaires (ABL). Cependant, bien qu'ils aient atteint les performances des boues à base d'huile, et leur toxicité est nettement plus réduite, il ne reste pas moins qu'elles ne sont pas tout à fait non toxiques, et leur prix est toujours trop élevé, d'où leur utilisation modérée.

I.4.4 Les fluides de forage à base de gaz (Fluides pneumatiques)

Le composant principal des fluides de forage à base de gaz est l'air ou un gaz naturel, bien qu'on dise toujours forage à l'air. Ce type renferme les fluides dont le gaz constitue la phase continue, ou ceux où il présente la phase discontinu ou inerte [3]. Les différents types de cette catégorie de fluides de forage sont : le gaz sec, le brouillard (eau aérée), les boues aérées et les mousses.

Ces fluides sont prévus pour des applications spéciales : minimiser l'endommagement des zones productives, prévenir les pertes de circulation, et permettre une grande vitesse de pénétration. Aussi, ils peuvent accomplir la majorité des tâches des fluides de forage sauf en ce qui concerne la suspension des cuttings, la déposition du cake, et le contrôle de la pression de fond. Pour cela, leurs applications sont limitées aux formations dures de faible perméabilité telle que les dolomies et les calcaires. Ajouter à cela les grandes précautions anti-explosion qui doivent être prises lorsqu'il s'agit du forage à l'air sec [1].

I.5 Tests de performances des fluides de forage

In situ, les propriétés des fluides de forage sont mesurées et ajustées d'une manière continue pour satisfaire les exigences d'efficacité et de rentabilité. Cependant, pour des raisons pratiques, ces tests ne doivent pas être d'une grande complexité, nécessiter beaucoup de temps ou un matériel sophistiqué. Ils doivent juste répondre à la nécessité de connaître et de contrôler sur site, les propriétés physiques et chimiques pour permettre un choix judicieux. En plus des propriétés de base qui sont la densité, les paramètres rhéologiques et la filtration, les mesures s'étalent souvent à d'autres paramètres clés tels que le pH, le pourcentage en solide, la stabilité thermique et électrique.

Deux éditions de l'institut américain du pétrole API (API RP.13B-1 et API RP 13B-2 1991) regroupent les techniques, appareils et normes pour tester et contrôler les boues à base d'eau et base d'huile respectivement.

Pour les cas critiques, ces mesures peuvent être appuyées par des tests approfondis aux laboratoires, en ce qui concerne la toxicité, le pouvoir d'inhibition, le comportement rhéologique aux hautes températures hautes pressions (HTHP), le vieillissement aux hautes températures, la filtration dynamique, la distribution granulométrique, le pouvoir lubrifiant, ainsi que les propriétés de la formation.

I.6 Problèmes liés aux fluides de forage

Le forage de certains puits nécessite le passage par des formations dont la pénétration peut s'avérer très pénible. Il s'agit particulièrement des formations argileuses, celles de sable mal consolidé, les formations à haute pression, les zones très salifères et celles riches en contaminant (présence de CO₂ et H₂S). La difficulté peut être accentuée par la combinaison de plusieurs de ces contraintes dans un même trou, ce qui oblige le recours à des technologies plus avancées et à de plus lourdes dépenses. Les conséquences vont du simple retard jusqu'à l'abandon total.

Parmi les problèmes étroitement liés aux propriétés et aux performances des fluides de forage: le coincement des tiges, l'endommagement de la zone productive, les pertes de circulation, l'instabilité des parois du trou, le mauvais nettoyage, la sédimentation de la barytine, la contamination du fluide par le H₂S, et la formation des hydrates de gaz [1]. Pour ces raisons, on adopte toujours un programme de boues à utiliser, après avoir recueilli toutes les informations nécessaires sur le site. Le programme de boues consiste à déterminer les types de boues et l'ordre de leur utilisation, pour répondre au mieux aux exigences du trio performance, rentabilité et sécurité. Le programme est établi en fonction des différentes prévisions géologiques (différentes formations à forer) ainsi que les possibilités techniques offertes.

I.7 Aspect environnemental

Les fluides de forage nécessitent des précautions de stockage, d'utilisation, de traitement, et d'évacuation sans lesquels, ils peuvent s'avérer très nocifs pour l'Homme et son environnement. Ce dernier peut être affecté par le fluide lui-même ou par les déblais.

Les principales sources de toxicité des fluides de forage proviennent des hydrocarbures, des chlorures, et des métaux lourds. Noter que ces contaminants peuvent se présenter naturellement dans les formations et incorporer le fluide au cours du forage.

Les métaux lourds comprennent le Chrome, le Plomb, le Zinc, l'Arsenic, le Baryum et le Cadmium. Ils peuvent avoir comme sources : les additifs des fluides de forage, les inhibiteurs de corrosion, l'enduit des tiges et les formations forées.

Le meilleur moyen de réduire l'impact environnemental réside dans la satisfaction pragmatique des exigences de performances, d'économie, de composition, de traitement, d'évacuation, et de la sauvegarde de l'environnement.

Bien que les restrictions et réglementations environnementales aient toujours constitué un fardeau pour l'industrie du forage, il ne demeure pas moins, qu'elles ont considérablement contribué au développement des fluides de forage. En particulier, en ce qui concerne les tests de toxicité, la réduction des déchets, les techniques de traitement, d'évacuation et de refoulement (dans les formations) des fluides de forage et des cuttings [1].

I.8 Les fluides de forage : Etat de l'art

Depuis le début des années 90, un regain d'intérêt exceptionnel surgit pour la confection de nouveaux produits et formulations dans le domaine des fluides de forage. Cela a été sans doute motivé par les exigences des réglementations environnementales visant la restriction des produits toxiques et non biodégradables, et par les besoins des nouvelles techniques de forage très répandues de nos jours. Ces techniques, comme le forage horizontal, à grande portée ou multilatéral, sont caractérisées par de grands angles de déviation. Cela nécessite de meilleures performances de la part des fluides de forage, essentiellement en ce qui concerne le nettoyage du trou et la stabilité des parois [4].

Ces fluides doivent en plus assurer une meilleure tenue vis à vis des conditions du bas du trou : hautes températures, hautes pressions, et les différents contaminants.

Grâce à leurs propriétés inégalables pour ce qui est du pouvoir lubrifiant, de la stabilisation des parois, du pouvoir d'inhibition, de la stabilité aux hautes températures, hautes pressions et aux contaminants ainsi que leur non corrosivité, les boues à base d'huile passent pour les fluides incontestablement efficaces pour les forages suscités. Malheureusement, ces boues sont de prix assez élevé, et surtout d'une grande toxicité, en particulier celles à base de Diesel (taux élevé en aromatiques).

De grands efforts en recherches et développement sont consacrés au seul but de trouver un substitut valable pour ces fluides à base d'huile. Dans ce sens, deux orientations principales ont été adoptées :

La première est celle de la toute nouvelle génération de boues formulées à base de fluides synthétiques comme les esters, les éthers, les polyalphaoléfines, les glycols, les glycérides, les glycosides, les oléfines isomérisées, et les alkylbenzène linéaires.

L'objectif de ces boues est d'avoir les performances des boues à base d'huile, la simplicité de manipulation des boues à base d'eau et une toxicité nulle ou minimale.

La recherche dans cette voie vise à améliorer les performances et la biodégradabilité.

La deuxième orientation consiste à améliorer les propriétés des boues à base d'eau par l'ajout d'adjuvants spécifiques. Les caractéristiques ciblées sont en particulier : l'inhibition des argiles, l'anti-bourrage de l'outil, le nettoyage du trou et la suspension des cuttings, le pouvoir lubrifiant, ainsi que la sauvegarde de la couche productrice. Trois classes de boues en sont issues : les boues aux polymères, les boues aux sels et polymères, et les boues cationiques [4]. Généralement, ces boues sont très performantes, mais chacune ne peut substituer la boue à base d'huile que dans des tâches bien définies.

Là aussi, beaucoup de recherches se penchent sur la confection d'additifs permettant de meilleures performances et sur la plus grande gamme de propriétés possibles.

Dans ce qui suit est exposé un certain nombre de travaux et recherches allant dans le sens de ces objectifs.

- Synthèse bibliographique -

En 1983, Poley et Wilkinson [8] font une étude sur l'effet des cuttings des forages offshore dans les eaux de la mer du Nord, sur l'environnement avoisinant. Les auteurs devisent l'étendue de l'impact en trois zones, avec un degré de contamination croissant dans la direction du site de déchargement et une biodégradabilité faible et progressant dans le sens inverse.

En 1984, Bannett [9] propose une huile minérale paraffinique comme fluide de base pour les boues à base d'huile. L'auteur donne la composition de la nouvelle boue, et des résultats certifiés, montrant son efficacité et une toxicité nettement moindre que celle à base de Diesel.

Dans le cadre des recherches visant à améliorer les boues à base d'eau :

Clark et co.[10] publient déjà en 1976, une discussion sur les boues à base de Potassium / polymère utilisée efficacement pour le forage de formations argileuses sensibles. Les auteurs donnent la formulation utilisée (système Chlorure de Potassium / polymère à haut poids moléculaire polyacrylamide partiellement hydrolysé) ainsi que des résultats de laboratoire et de terrain montrant son efficacité dans la stabilisation des argiles.

En 1980, Chesser et Enrigh [11] proposent le sel au Sodium du copolymère à bas poids moléculaire Styrene sulfoné-anhydride maléique de séquence ABAB et de poids moléculaire 1000 à 5000 comme défloculant et stabilisant des propriétés rhéologiques des boues à base d'eau aux hautes températures hautes pressions.

En 1981, Williams Jr. et Underdown [12] donnent les polymères cationiques aminés, en particulier les polyamines et les polyamines quaternaires, comme d'excellents stabilisants des argiles. Ce pouvoir est amélioré d'avantage avec le mélange polyamine quaternaire, acide fort.

En 1991, Retz et co. [13] montrent le mécanisme d'inhibition des argiles par un certain nombre de polymères cationiques, avec une toxicité moindre, et une meilleure compatibilité avec les autres constituants de la boue. Une étude comparative avec d'autres types de boues a été réalisée.

En 1992, Plank [14] liste une série de polymères synthétiques utilisés comme additifs : defloculants, fluidifiants, contrôle de filtrat, et rhéofluidifiant, pour les boues à base d'eau, lors des forages à haute température.

La même année, Beihoffer et co. [15] décrivent les performances réalisées pour l'inhibition des argiles, avec une formulation contenant 10% KCl / 0.4% copolymère cationique diméthylamine-épichlorhydrine.

Aussi, Hemphil et co. [16] rapportent les performances des boues aux polymères cationiques utilisées dans le forage de zones sableuses hautement perméables et des formations argileuses hautement dispersibles. Les résultats montrent une grande efficacité en ce qui concerne : la stabilisation des argiles, l'anti-bourrage de l'outil, le filtrat, le cake, la vitesse de pénétration et la résistance aux contaminant solides.

Toujours en 1992, Zakharov et Konovalov [17] proposent des additifs à bas prix et de faible toxicité comme inhibiteurs et fluidifiants. Ces produits sont à base de silicone, Phosphore, Aluminium, et de Bore, combinés avec d'autres additifs pour boues à base d'eau.

En 1994, Stricland [18] met l'accent sur l'importance des boues aux polymères, et compare leurs caractéristiques et performances, avec celles des boues à base d'huile. La comparaison porte sur la stabilité thermique, la stabilisation des formations, la protection de la zone productrice, la lubrification, la sauvegarde de l'environnement, la corrosivité, et la résistance aux contaminants.

La même année Zakharov et co. [19] proposent des additifs particuliers comme réducteurs de filtrat, agent de gélation, régulateurs de pH, lubrifiant, fluidifiants et inhibiteurs. Ces additifs sont issus d'une combinaison de produits chimiques avec des déchets industriels sans effet sur l'environnement.

En 1995, Stamatakis et co. [20] proposent de nouveaux inhibiteurs des argiles. Ces adjuvants sont économiques, non toxiques et stable thermiquement. Ils sont notés OCMs : unique organic cationic materials.

En 1996, Ding Rui et co. [21] proposent des additifs aux silicates pour la stabilisation des argiles. Ces additifs solubles dans l'eau, agissent sur les argiles en bloquant les fissurations de surface, soit par l'inhibition de l'hydratation ou par réaction.

La même année, Fausto et co. [22] proposent un additif à base de Zirconium pour le contrôle et la stabilisation des propriétés rhéologiques des boues bentonitiques aux hautes températures. Ce produit de moindre prix et toxicité que les produits conventionnels à base de Chrome, semble donner les mêmes résultats.

Toujours en 1996, Hemphil et Larsen [23] publient une étude comparative entre des boues à base d'huile et des boues améliorées à base d'eau.

En 1997, Van Oort et co. [24] décrivent l'effet des interactions polyglycol – polymères sur la stabilité de ces derniers aux hautes températures hautes pressions dans les boues à base d'eau. Ils rapportent les mécanismes d'interaction et les paramètres influents pour quatre types de ces polyglycols.

Aussi, en 1997, Elward Berry et Darby [25] proposent un nouveau système à base d'eau, non toxique et stable aux hautes températures, grâce à un fluide particulier noté W.B.H.T (Water based high temperature fluid). Le système est conçu de façon à maintenir la stabilité des propriétés rhéologiques jusqu'à 400- 475 °F sans le recours aux defloculants.

En 1998, Seaton et co. [26] rapportent les performances d'une boue à base d'eau améliorée au glycol. Ce dernier forme une microémulsion dans la phase aqueuse donnant une grande efficacité à la boue formulée.

En 1999, Argillier et co. [27] font une recherche approfondie de laboratoire sur le comportement de trois types de boues de récente utilisation. Il s'agit d'une formulation Mixed Metal Hydroxide (MMH), et deux formulations pour hautes températures et hautes pressions. Les investigations se sont étalées sur la filtration statique et dynamique avec une

simulation de l'invasion de ce type de boues et l'endommagement provoqué sur la zone productrice.

En 2001, Vassilivich [28] rapporte les performances des boues aux polymères pour ce qui est de l'augmentation de la vitesse de pénétration, la diminution de l'endommagement des formations, la prévention des élargissements du trou, et les propriétés de filtration et du cake.

Concernant les systèmes à base de fluides synthétiques :

En 1993, Friedhein et Pantermuehl [29] rapportent les résultats de l'utilisation pour la première fois d'un fluide de forage à base de polyalphaoléfines. Le fluide a montré de bonnes performances, et des propriétés de biodégradation, de bioaccumulation, de compatibilité avec le matériel, et de stabilité thermique meilleures que celles à base d'ester ou d'éther.

Candler et co. [30] publient une étude comparative entre les trois principaux types de boues. Il s'agit des boues à base de fluides synthétiques ester, éther et polyalpholéfine, celles à base d'huile (Diesel et minérale) et certaines boues à base d'eau.

La même année Kenny [31] fait un rapport sur l'utilisation d'une boue à base d'ester dans un forage à grande portée dans une formation argileuse très sensible.

En 1994, Growcock et co. [32] étudient les propriétés physico-chimiques des boues à base de fluides synthétiques en relation avec leur impact sur l'environnement, la stabilité thermique, la rhéologie, la déshydratation des argiles et la compatibilité avec le matériel.

En 1996, Viel et co. [33] publient un article sur les boues à base de fluides synthétiques mettant l'accent sur leur grand intérêt pour la sauvegarde de l'environnement.

La même année, Kenny et Hemphill [34] décrivent l'excellente capacité de transport et de nettoyage du trou, d'une boue à base d'ester utilisée dans les sections 12 ¼ in et 8 ½ in. Ils ont aussi fait une modélisation du comportement rhéologique de la boue utilisée.

Friedhiem et Conn [35] étudient les propriétés de la deuxième génération de fluides synthétiques pour boues de forage, utilisées à partir de la deuxième moitié des années 90. Ils donnent aussi une description de la chimie de ces produits et un aperçu sur les aspects: économique, technique et environnemental en comparaison avec la première génération.

Toujours en 1996, Growcock et Fredrick [36] discutent les limites aux hautes températures des boues à base de fluides synthétiques. Ces limites sont les plus sensibles pour la stabilité de l'émulsion (eau-fluide synthétique) et les propriétés rhéologiques. Les auteurs proposent d'améliorer ces caractéristiques par l'augmentation de la concentration en surfactants et en agents de stabilité rhéologique.

Dans son sixième numéro de l'année 1999, Worlds Oil [37] rapporte une classification des différents types de fluides de forage. Avec en plus, la définition, la fonction, le nom commercial, et les fournisseurs de chaque produit. La terminologie utilisée est conforme à celle adoptée par l'institut américain du pétrole API et par l'International Association of Drilling Contractors (IADC).

II. Initiation à la rhéologie et application aux fluides de forage

II.A Initiation à la rhéologie

II.A.1 Généralités

La rhéologie, terme proposé par Eugène Bingham en 1928, est la science qui étudie les déformations et les écoulements des corps en fonction des contraintes qui les provoquent. En régime laminaire, il existe une relation entre la contrainte de cisaillement (τ) et la vitesse de cisaillement ($\dot{\gamma}$) : c'est l'équation rhéologique d'état $\tau = f(\dot{\gamma})$

Cette relation permet de connaître toutes les propriétés rhéologiques du matériau, en particulier la viscosité qui est une mesure de la résistance du fluide à l'écoulement. Ces propriétés dépendent de la nature et des caractéristiques de ce matériau, ainsi que de la température et de la pression extérieures [38].

Le but de la rhéologie est la détermination expérimentale de cette équation. On utilise des rhéomètres qui permettent de mesurer τ et $\dot{\gamma}$; on impose $\dot{\gamma}$ et on mesure τ ou le contraire. La courbe expérimentale est appelée rhéogramme.

II.A.2 Classification des fluides réels

II.A.2.1 Les fluides Newtoniens (linéaires)

Un fluide Newtonien est un fluide dont l'équation rhéologique d'état est une équation différentielle linéaire à un coefficient constant η appelé viscosité absolue telle que : $\tau = \eta\dot{\gamma}$ η : constante indépendante de τ et du temps.

Pour un fluide donné, η ne dépend que de la nature du fluide, de la température et de la pression extérieures.

Le rhéogramme est une droite de pente η , qui passe par l'origine.

Parmi les fluides ayant ce comportement : l'eau, les fluides organiques légers et les solutions aqueuses de solutés à faible poids moléculaire.

II.A.2.2 Les fluides non Newtoniens

Ce sont des fluides dont la viscosité apparente $\mu = \frac{\tau}{\dot{\gamma}}$ varie avec τ (ou $\dot{\gamma}$) et/ou avec le temps. Les raisons d'un caractère non Newtonien d'un fluide sont liées à la taille des particules présentes dans le fluide, leurs natures, leurs formes, et leur aptitude à la déformation et à la réactivité physico-chimique.

Il existe trois catégories principales des fluides non Newtoniens : les fluides indépendants du temps, les fluides dépendants du temps et les fluides viscoélastiques [39].

II. A.2.2.1 Les fluides indépendants du temps

Ce sont des fluides dont le rhéogramme est univoque, c'est à dire que son allure ne dépend pas du temps de mesure. Ainsi pour une même valeur de $\dot{\gamma}$ (ou τ) la viscosité apparente μ est la même indépendamment du paramètre temps.

Ces fluides peuvent être divisés en deux catégories : les fluides sans contrainte seuil, et les fluides avec contrainte seuil (fluides plastiques) [40].

a. Les fluides sans contrainte seuil

Ces fluides peuvent être rhéofluidifiants (shear thinning) ou rhéopaisissants (shear thickening).

Les fluides rhéofluidifiants sont caractérisés par une viscosité apparente μ qui diminue avec l'augmentation de la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$; le rhéogramme a sa concavité tournée vers le bas et passe par l'origine.

Un tel comportement peut être interprété par l'alignement des unités structurales du fluide dans le sens de l'écoulement ou par des modifications structurales (destructions des liaisons, defloculation,...) avec l'augmentation de la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$

Plusieurs modèles sont proposés pour ce type d'écoulement :

➤ La loi de puissance d'Ostwald : $\tau = K\dot{\gamma}^n$ avec $n < 1$

n : indice de comportement qui traduit l'écart avec le comportement Newtonien ($n = 1$)

k : indice de consistance

Il est clair que $\mu = \frac{K}{\dot{\gamma}^{(1-n)}}$ est fonction décroissante de $\dot{\gamma}$

D'autres modèles font intervenir les paramètres $\mu_0 = \lim_{\dot{\gamma} \rightarrow 0} \mu$ et $\mu_\infty = \lim_{\dot{\gamma} \rightarrow \infty} \mu$ traduisant le

comportement Newtonien de ces fluides pour les très faibles et les très fortes valeurs de $\dot{\gamma}$ respectivement. Parmi ces modèles : Puissance tronquée, Sisko, Ellis Williamson, Shangraw, Williams-Carreau, Cross et autres [38].

➤ Equation de Sisko : $\tau = \mu_\infty \dot{\gamma} + K\dot{\gamma}^n$

μ_∞ : viscosité de la 2^{ème} région Newtonienne,

K : indice de consistance

n : indice de comportement

➤ Equation de Cross : $\tau = \left(\mu_\infty + \frac{\mu_0 - \mu_\infty}{1 + (\beta\dot{\gamma})^P} \right) \dot{\gamma}$

μ_0, μ_∞ : viscosité de la première et de la deuxième région Newtonienne respectivement

P : coefficient positif, β : paramètre caractéristique

Les fluides rhéopaisissants sont caractérisés par une viscosité apparente qui augmente avec l'augmentation de la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$; le rhéogramme a sa concavité vers le haut, et passe par l'origine.

Ce comportement est spécifique aux dispersions très concentrées, les solutions d'amidon et certaines huiles polymériques.

Un grand nombre de ces fluides sont dilatants, c'est à dire que leurs volumes augmentent lorsque ils sont soumis à la déformation.

Le comportement des fluides rhéopaisissant est généralement approximé par la loi de puissance telle que $\tau = K\dot{\gamma}$ avec $n > 1$.

b. Les fluides à contrainte seuil (Plastiques)

Ce sont des fluides qui ne s'écoulent qu'à partir d'une certaine valeur de la contrainte, appelée seuil d'écoulement (contrainte seuil) et notée τ_0 ; elle caractérise la fin de la déformation élastique et le début de l'écoulement viscoélastique.

Un tel comportement peut être interprété par le fait que ces fluides présentent au repos, une structure tridimensionnelle rigide, due à l'emboîtement des particules entre elles ou à leur

floculation. τ_0 ne serait que la force nécessaire pour détruire cet édifice et provoquer l'écoulement qui s'effectuera sous l'effet de la contrainte effective $\tau - \tau_0$.

On distingue deux types de comportement plastiques : les comportement plastique dit de Bingham et celui dit de Casson.

Au-delà de la contrainte seuil τ_0 , les fluides plastiques dits de Bingham se comportent comme des fluides Newtoniens ; toute augmentation de τ s'accompagne par une augmentation proportionnelle de $\dot{\gamma}$. Il s'agit d'un comportement plastique idéal.

$$\text{L'équation rhéologique d'état s'écrit : } \begin{cases} \tau \leq \tau_0 & \dot{\gamma} = 0 \\ \tau > \tau_0 & \tau = \tau_0 + \mu_P \dot{\gamma} \end{cases} \text{ avec}$$

$$\mu_P = \frac{\tau - \tau_0}{\dot{\gamma}} \text{ est la viscosité plastique.}$$

Les fluides plastiques dits de Casson manifestent un comportement plastique rhéofluidifiant qui se traduit par des rhéogrammes présentant une concavité dirigée vers le bas.

La plus part des fluides plastiques sont des fluides de Casson.

Ce comportement est décrit essentiellement par deux équations rhéologiques d'état :

➤ Equation de Casson :

$$\begin{cases} \tau \leq \tau_0 & \dot{\gamma} = 0 \\ \tau > \tau_0 & \tau^{1/2} = \tau_0^{1/2} + (\beta \dot{\gamma})^{1/2} \end{cases}$$

β : constante appelée aussi viscosité plastique

➤ Equation de Herschel Bulkley :

$$\begin{cases} \tau \leq \tau_0 & \dot{\gamma} = 0 \\ \tau > \tau_0 & \tau = \tau_0 + K \dot{\gamma}^n \end{cases} \quad n < 1 \quad \text{le plus souvent}$$

Noter l'existence extrêmement rare du comportement plastique rheoépaississant.

II.A.2.2.2 Les fluides dépendants du temps (thixotropie et antithixotropie)

Ce sont des fluides dont les caractéristiques rhéologiques dépendent des traitements antérieurs. La viscosité apparente de ces fluides n'est plus constante pour une valeur donnée de $\dot{\gamma}$ (ou τ), elle dépend également du paramètre temps.

Une telle dépendance est le plus souvent expliquée par des changements progressifs importants de la structure microscopique dans le temps.

Un fluide thixotrope est un fluide dont la viscosité apparente a tendance à décroître dans le temps quand on lui applique une contrainte τ (ou $\dot{\gamma}$) constante, avec une régénération de la structure initiale après un temps de repos suffisant après la suppression du cisaillement [38].

L'antithixotropie (la rhéopexie) est le phénomène inverse de la thixotropie, la viscosité apparente de ces fluides augmente dans le temps à contrainte (ou à vitesse) de cisaillement constante.

On distingue aussi le comportement rhéologique viscoélastique qui est un comportement intermédiaire entre celui d'un solide élastique parfait et celui d'un liquide visqueux Newtonien.

II.B. Application aux fluides de forage

II.B.1 Modèles rhéologiques

Les caractéristiques rhéologiques des fluides de forage sont très distinctes à cause de l'extraordinaire complexité et diversité de ces fluides. Leur comportement peut aller de celui d'un gel solide élastique à celui d'un simple liquide Newtonien. Pour cela, on a le plus souvent recours à la combinaison de plusieurs modèles ainsi qu'aux résultats empiriques [41].

La plus part des fluides de forage ont un comportement plastique rhéofluidifiant, et sont thixotropes dans de nombreux cas [42].

On a beaucoup utilisé le modèle de Bingham et celui d'Ostwald, bien qu'ils soient d'une faible précision. On a aussi eu recours à des modèles plus généraux, tels que le modèle de Casson, celui de Herschel Bulkley [43][44], et le modèle de Briant tel que

$$\tau = \mu_{\infty} \dot{\gamma} \left(\frac{\tau_{\infty}}{m \mu_{\infty} \dot{\gamma}} + 1 \right)^m \quad 0 < m < 1 \quad [7].$$

Cependant ces modèles sont très complexes ce qui les rend très peu pratiques. Pour cette raison, lors des tests rhéologiques sur les boues de forage, on opte toujours pour la détermination de paramètres simples et faciles à mesurer. Il s'agit essentiellement des paramètres de la loi de Bingham (contrainte seuil (YP) et la viscosité plastique (PV)) ou ceux de la loi d'Ostwald (K et n), en plus des mesures traduisant le caractère thixotrope (gel₀ et gel₁₀).

Les valeurs obtenues, ne sont que des indices pratiques reflétant les caractéristiques rhéologiques de la boue, et non pas les valeurs propres aux deux modèles suscités.

II.B.2 Signification et variation des paramètres rhéologiques

a. La viscosité plastique (PV)

Elle est liée à la viscosité du fluide de base (la phase liquide), ainsi qu'à la concentration, la taille et la forme des particules solides,. Elle augmente avec l'accroissement de la teneur et de la surface spécifique de ces particules. Elle peut être diminuée par la réduction des solides (centrifugation, dessablage ...) ou par dilution.

b. La contrainte seuil (YP yield point)

Elle est due aux interactions physiques ou chimiques entre les particules en suspension, causées entre autres, par les charges électriques surfaciales ou présentes au voisinage. L'amplitude de ces interactions est donc très dépendant du type, de la quantité et de la charge surfaciale du solide, ainsi que de la concentration de la phase fluide en ions.

En fait, la contrainte seuil (YP) est un indice de l'équilibre de la boue. Ainsi lors du forage, une contrainte seuil trop élevé, peut être causée par le broyage des solides par l'outil, l'augmentation de la teneur en solide, une contamination par le sel, le gypse ou le ciment, ou par un manque en fluidifiants. Elle permet ainsi de cibler le traitement curatif adéquat.

c. L'indice K et l'exposant n

K varie pour les mêmes raisons que la viscosité plastique PV. Les phénomènes responsables de la contrainte seuil YP sont aussi responsables de n mais ce qui cause une augmentation de YP cause une diminution de n. De plus n peut être diminué par l'ajout d'additifs spécifiques tels que les biopolymères, la bentonite préhydratée et floculée, les bentonites activées, certaines CMC, les attapulgités, la gomme de guar et autres. n est un paramètre lié au nettoyage du trou [42] [2].

d. Caractère thixotropique (gel_0 et gel_{10})

En pratique, le caractère thixotropique des boues est évalué par la mesure des contraintes nécessaires pour la destruction du gel édifié par la boue après un temps de repos donné, ainsi que l'évolution de ce gel dans le temps.

Selon les normes API, on détermine le gel_{10s} (gel_0) ; la contrainte mesurée après une agitation complète de la boue (temps de repos nul) et le gel 10min mesuré après un temps de repos de 10 minutes. Ces deux valeurs sont une indication des forces attractives mise en jeu dans le fluide en statique.

Lorsque la différence entre le gel initial et le gel_{10} est élevée, les gels sont appelés progressifs, alors qu'ils sont dits plats, lorsque la différence est très faible.

Les gels mesurent les forces attractives en statique, alors que YP est une mesure de ces forces en dynamique, les deux paramètres relèvent à peu près des mêmes traitements [3][7].

En réalité, les caractéristiques d'écoulement du fluide dépendent de la viscosité du fluide de base, de la teneur de la phase continue, en huile, eau, gaz et solides, de la phase discontinue et des différentes interactions entre ces constituants.

De ce fait, les paramètres ainsi mesurés, ne constituent que des indices d'évaluation et de contrôle qui permettent de juger de la qualité du fluide et d'attribuer les traitements nécessaires pour avoir les caractéristiques et performances requises [41].

Ainsi, selon les valeurs obtenues, et les performances désirées, on peut souvent avoir à agir de façon très ingénieuse :

- diminuer ou augmenter simultanément la viscosité et les gels.
- diminuer la viscosité et augmenter les gels ou le contraire.
- modifier les gels sans trop modifier la viscosité ou l'inverse
- modifier séparément le gel_0 ou le gel_{10}

Pour cela, le traitement à apporter peut être très banal ou très spécifique. Il peut aller de la simple dilution, à la réajustation totale de la composition du fluide ou même à son remplacement [45].

II.B.3 Importances des caractéristiques rhéologiques

Les caractéristiques rhéologiques ont une importance énorme dans les fonctions des fluides de forage. Cependant, il est pratiquement impossible de conférer à ces fluides les caractéristiques rhéologiques idéales pour chaque fonction, car elles sont le plus souvent contradictoires. Pour cela, on a toujours recours à des compromis entre ces propriétés, sauf dans les cas particuliers où on vise une fonction bien déterminée.

L'influence de ces caractéristiques n'est pas limitée aux fonctions du fluide, mais s'étale aussi à la circulation du fluide lui-même et le déroulement des manœuvres dans le sondage.

Ainsi de faibles paramètres rhéologiques permettront d'améliorer le rendement des pompes, de faciliter le refoulement du fluide et de diminuer les pertes de charge. Une faible thixotropie facilite la remise en circulation du fluide. De faibles viscosité et thixotropie faciliteront aussi la circulation de la boue en surface.

Quant aux manœuvres dans le sondage, les déplacements verticaux des tiges peuvent induire une surpression sur les formations à la descente, et une aspiration du fluide à la remontée. Ainsi la surpression peut causer la fracturation des couches, ce qui provoquerait des pertes de circulation. Par contre, l'aspiration conduit à une diminution de la pression hydrostatique qui peut faciliter la venue des fluides à partir des zones perméables, ce qui pourrait provoquer des éruptions en surface [6].

En ce qui concerne les fonctions de la boue, les propriétés rhéologiques requises peuvent être très différentes. Le nettoyage du fond du trou nécessite des paramètres rhéologiques moyennes. Pour la remontée des déblais, des caractéristiques rhéologiques faibles facilitent

le passage de ces déblais dans le courant ascensionnel du fluide et permettent leur séparation en surface à même titre que les gaz. Par contre des caractéristiques rhéologiques trop élevées, provoquent la formation de paquets qui peuvent coincer dans les irrégularités du trou.

Le maintien en suspension des particules lourdes est favorisé par des valeurs conséquentes de viscosité plastique (PV), de la contrainte seuil (YP) et de thixotropie. Aussi l'augmentation des paramètres rhéologiques peut s'avérer bénéfique pour améliorer la tenue des parois et diminuer les pertes de circulation.

Ceci dit, le problème est loin d'être aussi simple, les propriétés rhéologiques requises et leurs mécanismes d'action dépendent d'un grand nombre de paramètres : le type du puits (vertical, horizontal, incliné, degré d'inclinaison) [46][47][48], la nature des formations, les conditions du bas du trou (température, pression), les propriétés d'écoulement etc.

Pour cela, beaucoup de travaux ont été élaborés pour optimiser ces propriétés ou même faire des corrélations entre ces caractéristiques rhéologiques et les performances réalisées, telles que le transport des déblais [49].

D'une manière générale, les meilleures performances de nettoyage du trou, transport et suspension des déblais et leur séparation en surface, la stabilité des parois et la vitesse de pénétration, sont simultanément obtenues, par des fluides jouissant d'une viscosité structurale. Ceux-ci sont caractérisés par un rapport élevé de la contrainte seuil YP sur la viscosité plastique PV (YP/PV), ou une faible valeur de l'indice n ; c'est à dire une boue rhéofluidifiante.

La viscosité de ces fluides diminue pour les grandes valeurs de la vitesse de cisaillement (rencontrées sous l'outil, au voisinage des parois des tiges et dans les sections étroites du trou) et augmente pour les faibles valeurs de cette vitesse (rencontrées dans les sections élargies du trou et au voisinage de ces parois). Ces boues ainsi conçues ont aussi la capacité d'édifier au repos un gel facilement cassé par agitation.

La faible viscosité sous l'outil favorise la vitesse de pénétration, et le glissement des déblais dans le courant de la boue. Les viscosités élevées loin du train de sonde permettent une excellente tenue des parois. En plus, la formation d'un gel au repos permet une meilleure suspension des particules lourdes aux arrêts. Le fait que ce gel soit facilement cassable facilite la remise en circulation et la séparation des déblais en surface [3].

Des modèles tels que Ostwald, Herschel Bulkley, et Ellis ont été utilisés pour décrire le comportement rhéologique de boues de ce type [50].

II.B.4 Influence de la température et de la pression sur les propriétés rhéologiques

Sous l'influence de la température et/ou de la pression, les propriétés rhéologiques des fluides de forage au bas du trou, diffèrent totalement de celles mesurées en surface.

Une température même modérée peut avoir de grandes et d'imprévisibles influences sur les propriétés rhéologiques du fluide de forage. Ainsi, les traitements décidés en surface peuvent s'avérer de succès très limités.

L'influence des hautes températures et pressions sur les propriétés rhéologiques de la boue peut se manifester par : des variations de la viscosité du fluide de base, des évolutions réversibles et irréversibles de la structure de la boue, et des dégradations ou des désorptions irréversibles de certains additifs [7].

Ces effets peuvent être induits par les voies suivantes :

➤ Voies physiques: une augmentation de la température diminue la viscosité de la phase liquide, alors qu'une augmentation de la pression augmente la densité de cette phase et avec elle sa viscosité.

➤ Voies chimiques : par réaction des hydroxydes avec les minéraux argileux au delà de 200° F. Cet effet dépend de la nature de l'ion métallique, de l'hydroxyde et de la Composition de la boue.

➤ Voies électrochimiques : une élévation de la température augmente l'activité ionique des électrolytes, et la solubilité des sels partiellement solubles présents dans la boue. Cela aura pour effet la perturbation de l'équilibre des forces interparticulaires qui, à son tour affectera le degré de dispersion ou de floculation. L'amplitude et le sens de ces perturbations dépendra de la composition électrochimiques du fluide.

Il est clair que l'effet de ces deux paramètres (T, P) sur la rhéologie des boues à base d'huile diffère largement de celui sur les boues à base d'eau. En fait, la différence est d'une telle ampleur pour des boues du même type selon la diversité de la composition.

D'une manière générale, les propriétés rhéologiques des boues à base d'eau (PV et YP) sont très affectées par les hautes températures. Pour cela beaucoup de travaux ont été consacrés à l'amélioration de leur tenue des propriétés rhéologiques (entre autres propriétés) de ces boues sous de telles conditions [11][14][22][24][25].

Pour ces fluides, la pression semble avoir un effet minime.

Les boues à base d'huile sont moins altérées par les hautes températures et présentent une plus grande résistance que les boues à base d'eau. Cependant leur viscosité est assez influencée par les hautes pressions [3]. Pour ce type de boue aussi, l'influence dépend de la composition (boues à émulsion inverse, boues aux viscosifiants asphaltiques,...).

Ainsi beaucoup de recherches se sont intéressées à l'étude du comportement rhéologique des deux types de boues (à base d'eau et à base d'huile) dans les conditions de hautes températures et hautes pressions (HTHP) et à l'identification de l'effet de ces facteurs. Des modèles mathématiques ont été proposés pour la description et la prédiction de ces comportements [51-54].

En pratique, pour approcher les valeurs réelles des caractéristiques rhéologiques de la boue dans les conditions du bas du trou, on utilise des abaques qui permettent de porter les corrections nécessaires aux valeurs mesurées en surface, et ce, selon la nature du fluide, la température et la pression [41].

III. L'argile, la bentonite et les produits pontés

III.A Les argiles

III.A.1 Genèse des argiles

Le processus principal de la formation des argiles est l'altération des minéraux des couches profondes qui se trouvent amenées en surface. L'altération se fait principalement par fragmentation et par hydrolyse.

La fragmentation est la désintégration des roches par des mécanismes physiques tels que : le gel et le dégel, l'alternance des températures, l'humidité et la cristallisation des sels. L'hydrolyse est une réaction chimique, une action de l'eau sur les minéraux qui sont décomposés et transformés. La réaction est accélérée par la température, et la présence de la matière organique venant de la végétation.

L'altération des roches varie considérablement avec le climat; dans les régions tempérées, hydrolyse et fragmentation sont également actives.

Les sméctites se développent principalement à partir des basaltes et dans des endroits avec de longues saisons sèches et un mauvais drainage, de sorte qu'il y ait un enrichissement en silice et en éléments alcalins.

Un autre mécanisme de la formation des argiles est la néoformation. C'est la synthèse de nouveaux minéraux à partir des ions de silicium, aluminium, magnésium et potassium en solution. Ceci se produit dans les bassins sédimentaires ou l'évaporation concentre les ions [55].

III.A.2 Importance de l'argile pour les fluides de forage

L'argile est certainement le constituant le plus important dans les fluides de forage, puisque celle-ci forme la phase colloïdale de la plus grande partie des boues à base d'eau, comme elle est aussi utilisée dans les boues à base d'huile.

Dans les boues à base d'eau les propriétés rhéologiques requises de plasticité et de thixotropie, ainsi que la densité et les caractéristiques de filtration, ne sont obtenues que pour des charges argileuses bien définies. Aussi, grâce à son importante activité physique et chimique, l'argile constitue le point faible de l'équilibre établi entre les différents constituants de la boue. La connaissance des caractéristiques de l'argile utilisée, telles que le degré de substitution, la nature des atomes structuraux et des cations échangeables, est très importante pour la technologie des fluides de forage car les performances de la boue en sont très dépendantes.

L'argile des formations forées revête lui aussi d'une grande importance, car il peut incorporer le fluide lors du forage. Aussi, la stabilité du trou, dépend énormément de l'interaction entre la boue de forage et la partie exposée de la formation argileuse forée. De plus, l'interaction de l'argile du réservoir avec le filtrat d'une boue inadéquate, peut affecter considérablement la productivité [2] [3].

III.A.3 Composition des argiles

Les argiles sont constituées essentiellement de particules cristallines extrêmement fines ($\varnothing < 2\mu\text{m}$) d'un ou de plusieurs minéraux argileux. Ces derniers sont des silicates hydratés d'aluminium, qui peut être partiellement ou entièrement remplacé par le fer, le magnésium ou autres.

A l'état naturel, l'argile se présente comme une mixture hétérogène contenant en plus des minéraux argileux, d'autres minéraux tel que : le quartz, le feldspath, la calcite et la pyrite, des matières organiques, des sels hydrosolubles, et des substances non cristallines telles que l'allophane. De ce fait, les propriétés d'une argile donnée sont totalement tributaires de sa composition en minéraux argileux. Cependant, elles dépendent aussi de la teneur des autres composants, de la distribution des tailles des particules et de leurs formes, ainsi que des interactions entre les différents constituants [56].

III.A.4 Classification des minéraux argileux

Les minéraux argileux sont de fines particules de silicate à structure cristalline bidimensionnelle (Phylliteuse ou à feuillets) ou monodimensionnelle (fibreuse). L'identification des différentes espèces est basée sur l'analyse aux rayons X, la mesure de la capacité d'échange cationique (CEC), l'analyse thermique différentielle, la détermination de la surface spécifique (par la BET), et la microscopie électronique. Cependant, l'unanimité n'est pas tout à fait atteinte concernant la classification et la nomenclature de ces différentes espèces.

La classification rapportée dans la figure III.1 est la plus retenue [57-58].

III.A.5 Les minéraux argileux phylliteux

La grande majorité des minéraux argileux ont une structure phylliteuse. Ils sont constitués par la superposition suivant l'axe C, de feuillets élémentaires, eux-mêmes composés par l'empilement bidimensionnel continu de motifs répétitifs selon les directions A et B.

Deux unités de base entrent dans la structure de chaque feuillet élémentaire:

- Une couche octaédrique, constituée par l'empilement selon les axes A et B d'octaèdres où des atomes d'aluminium, de magnésium ou de fer, sont en coordination octaédrique avec des atomes d'oxygène ou des groupements hydroxyyles. Dans le cas de l'aluminium, seulement deux tiers des positions possibles sont occupées ; la couche est dite Dioctaédrique. Lorsque c'est le magnésium, toutes les positions sont occupées et la couche est dite Trioctaédrique.

- Une couche tétraédrique constituée par l'association plane de plusieurs tétraèdres de silice. Dans chaque tétraèdre, le silicium occupe le centre, et est en coordination tétraédrique avec quatre atomes d'oxygène qui eux occupent les sommets. Tous les tétraèdres ont la même orientation, et sont associés de façon à ce que les oxygènes forment un réseau hexagonal.

L'association de ces deux types de couches par la mise en commun des oxygènes pointes des tétraèdres, engendre un feuillet élémentaire. Cette combinaison peut avoir lieu entre une couche octaédrique et une ou deux couches tétraédriques [56].

La classification des minéraux argileux phylliteux est essentiellement basée sur le nombre de couches octaédriques et tétraédriques constituant le feuillet élémentaire.

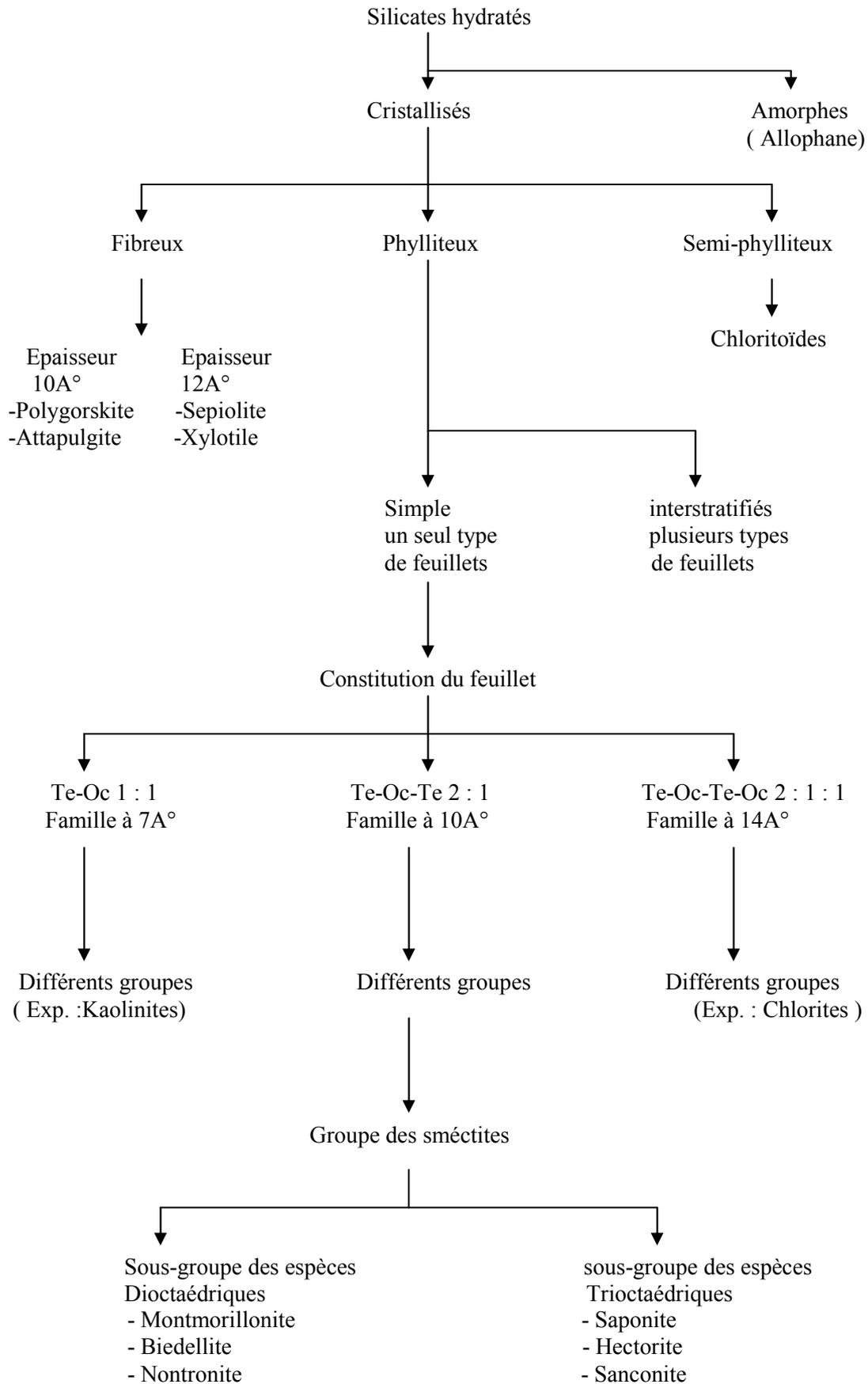


Figure III.1 : Schéma de la classification des minéraux argileux

III.A.5.1 Les sméctites et la montmorillonite

Les sméctites sont des argiles gonflantes par excellence. Ce sont des minéraux argileux phylliteux dont le feuillet élémentaire est constitué d'une couche octaédrique d'aluminium médiane entre deux couches tétraédriques. Ainsi, deux feuillets se côtoient par les plans d'oxygène des couches tétraédriques, ce qui entraîne de très faibles forces d'attraction et un excellent clivage. En plus, les substitutions isomorphes dans les deux types de couches, créent un déficit de charges positives dans les feuillets, et par conséquent une certaine répulsion entre ces derniers. Tout cela fait que l'eau et d'autres molécules polaires, ainsi que certaines molécules organiques, peuvent s'introduire entre les feuillets causant une expansion selon l'axe C faisant augmenter la distance basale. Ce phénomène est à l'origine du gonflement des sméctites.

La formule type de ces minéraux est celle de la pyrophyllite : $\text{Si}_8\text{Al}_4\text{O}_{20}(\text{OH})_4.n\text{H}_2\text{O}$. Cependant, aucune espèce ne s'y apparente vraiment à cause des substitutions isomorphes. Ces substitutions créent dans les feuillets des déficits de charges positives qui sont comblés par l'adsorption de cations échangeables sur les feuillets et à leurs bordures. La carence moyenne par maille est de -0.66 .

En effet, le silicium peut être partiellement remplacé par l'aluminium dans la couche tétraédrique, et l'aluminium partiellement ou totalement remplacé dans la couche octaédrique, par le magnésium, le fer ou autre. Selon cette variante, le groupe contient les espèces suivantes :

- ✓ Dioctaédriques : Montmorillonite, Nontronite, et Biedellite.
- ✓ Trioctaédriques : Saponite, Hectorite, Sanconite.

La montmorillonite est de loin l'espèce la plus connue du groupe. Elle a fait l'objet de plusieurs études à cause de son abondance et son importance économique. Elle présente le constituant principal de la bentonite et d'autres produits utilisés dans les boues de forage. Elle constitue aussi le composant actif de nombreuses formations argileuses, qui est à l'origine de beaucoup de problèmes lors du forage.

Les substitutions isomorphes sont modérées dans cette espèce où l'aluminium est remplacé par le magnésium. La formule de la maille peut être écrite comme suit :



Comme les autres sméctites, la montmorillonite est hautement gonflante grâce à sa structure expansible. Cette propriété dépend cependant de la nature du cation échangeable. La distance basale peut aller de 9.6\AA en absence de l'eau interfoliaire jusqu'à séparation totale dans l'eau, notamment, lorsque le cation échangeable est le Na^+ . Cela fait que la montmorillonite est facilement dispersible dans l'eau et possède une grande surface spécifique, ce qui lui confère une grande activité colloïdale [58].

La structure de la montmorillonite est schématisée dans la figure Fig. III.2.

III.A.6 L'échange ionique dans les argiles

Les minéraux argileux ont la capacité d'adsorber des ions et les mettre en position d'échange contre d'autres ions par simple traitement en solution aqueuse. Cet échange est une réaction d'équilibre gouvernée essentiellement par les concentrations des différentes espèces ioniques présentes dans les deux phases : solution-argile. Elle dépend aussi de la nature, de la taille et de la charge des ions mis en échange.

III.A.6.1 Cations échangeables

Pour satisfaire les carences en charges positives, les minéraux argileux adsorbent des cations tels que : Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , et les mettent en position d'échange. Ces déficiences de charges positives sont dues :

➤ Aux charges négatives engendrées par les cassures de liaisons sur les bordures des feuillets. Dans ce cas, les cations adsorbés sont dits superficiels. Pour la montmorillonite, ils ne représentent que 20% de la capacité d'échange.

➤ Aux substitutions isomorphes à l'intérieur des feuillets où des cations de charge élevée sont remplacés par d'autres de charge moindre. Dans ce cas, les cations échangeables sont adsorbés dans l'espace interfoliaire, et sont dits internes. Ces cations sont responsables de 80% de la capacité d'échange de la montmorillonite

Aussi, certains groupement hydroxyles exposés peuvent échanger leurs hydrogènes.

Le nombre total de cations adsorbés, exprimé en milliéquivalents par 100g d'argile sèche, est appelé capacité d'échange cationique notée C.E.C. Cette capacité peut varier considérablement même pour des espèces d'un même groupe.

La C.E.C des argiles et la nature du cation échangeable sont des indices de l'activité colloïdale. Ainsi, la montmorillonite qui présente une grande capacité (100meq /100g) gonfle énormément dans l'eau, et forme des suspensions visqueuses même à faible pourcentage, en particulier quand le cation échangeable est le Na^+ [3].

La capacité d'échange anionique est nettement plus faible que la C.E.C. Les anions échangeables les plus répons sont : sulfate, chlorure, phosphate, et nitrate. Cet échange d'anions peut être du aux cassures des liaisons sur les bordures des feuillets.

Fig.III.2 Schéma de la structure de la montmorillonite

III.B La bentonite et produits dérivés

III.B.1 Aperçu général sur la bentonite

La bentonite est une argile qui se présente sous forme de roches tendres, très anctieuse au touché, de teinte blanchâtre, grisâtre ou légèrement teintées de bleu ou rose. Elle est généralement issue de la transformation locale des cendres volcaniques vitreuses en milieu aqueux ou de l'altération hydrothermale des roches volcaniques.

Le terme bentonite est dérivé de Fort Benton (Wyoming USA), lieu où Knight, a mis en exploitation le premier gisement de cette argile en 1897.

Ce matériau est défini comme étant une argile constituée essentiellement de sméctites et possédant leurs caractéristiques physiques ou comme une argile constituée à plus de 85% de montmorillonite, ce qui lui confère toutes les propriétés de cette dernière. Les cations échangeables les plus rencontrés dans cette argile sont : Na^+ , Ca^{2+} et d'un degré moindre le Mg^{2+} .

Grâce à ces propriétés et son exploitation peu onéreuse, la bentonite trouve usage dans plusieurs secteurs : confection des moules à sable, Terre décolorante, traitement des eaux, liant en génie civil, pharmaceutique, peinture, catalyse (craquage), isolation des déchets nucléaires, agriculture, nourriture pour animal, cosmétique, et boue de forage.

Dans ces derniers, les bentonites sont classées en bentonite sodique, naturelle (de Wyoming) ou artificielle (activée) dite à rendement élève, et bentonite calssique dite à faible rendement [3].

La bentonite est utilisée dans les boues à base d'eau pour donner de la viscosité et améliorer les propriétés de filtration. Ceci dans le but d'améliorer le nettoyage du trou, réduire le suintement de l'eau et sa filtration dans les zones perméables, contribuer à la stabilité des parois, et éviter ou contrecarrer les pertes de circulation.

Pour être en mesure d'accomplir toutes ces tâches, les bentonites commerciales comme tout autre produit à boue, doivent se plier aux normes en vigueur principalement ceux API [59].

En fait la qualité d'une bentonite pour boue de forage dépend principalement de quatre paramètres : la teneur en matériaux autres que la montmorillonite, la nature des cations échangeables, la présence de polymères améliorants, la charge et la taille des feuilletts. Elle est évaluée par la combinaison d'un certain nombre de tests standardisés : C.E.C, analyse minéralogique, teneur en minéraux argileux, tests de rhéologie et de filtration [60].

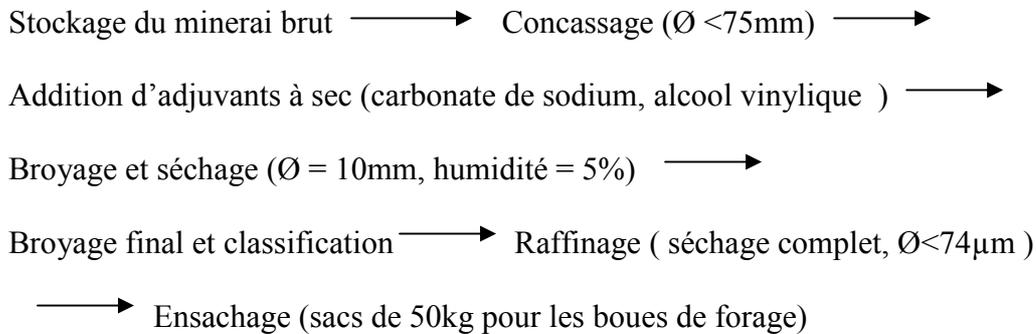
Cependant, la boue bentonitique perd ses propriétés en milieu salé (elle est remplacée par l'attapulgitite), sous l'influence de la température, par l'apport des argiles des formations, et sous l'effet des différents contaminants. Pour cela, suivant le besoin, plusieurs additifs sont ajoutés pour maintenir ou améliorer la tenue et les performances de ces boues.

En Algérie, les réserves de bentonite comptent parmi les plus importantes dans le monde. C'est dans l'Oranie (Ouest algérien) que se situent les gisements les plus importants. On relève en particulier ceux de M'Zila à 25km au N-E de Mostaganem et de Hammam Boughrara à 15km au N-E de Maghnia (voir les cartes en annexe).

Le gisement de M'Zila représente l'un des sites les plus importants de la région de Mostaganem. Il est exploité par l'ENOF, son extension est de 425ha. Les réserves géologiques sont de l'ordre de 1238512 t au 31/12/96, dont 843092 t sont exploitables. La production annuelle est de 16500 t. La région compte un deuxième gisement, celui de Djebel Meni. La bentonite issue de ces gisements est destinée pour les boues de forage [61].

Le site de Hammam Boughrara renferme deux secteurs : Roussel et Dar Embarek. Les réserves du gisement Roussel (II) s'estiment à 2380400 t, celles de Dar Embarek (I) à 1784300t.

La région de Maghnia compte aussi beaucoup d'autres indices et gisements avec d'énormes potentialités, mais avec à différents degrés de qualité [62]. Les caractéristiques (fiches techniques) des bentonites de forage commercialisées par l'ENOF (Unité de Mostaganem et celle de Maghnia) sont rapportées en annexe [63] [64]. Ces produits finis sont obtenus après traitement de la bentonite brute selon le procédé résumé dans le schéma suivant [65] :



III.B.2 Le fluide MMH-Bentonite

Les fluides de forage rhéofluidifiants à viscosité structurale, revêtent d'une grande importance, car ils présentent une bonne pompabilité et une viscosité qui diminue avec l'augmentation du cisaillement. Ces fluides sont caractérisés par une grande valeur de la Yield Point (YP) et une faible valeur de la Viscosité Plastique (PV).

Selon l'état actuel de l'art, la gomme Xanthane (Biopolymère) exhibe les meilleures performances dans ce sens. Cependant, elle est de coût élevé, et sa capacité de mise en suspension et de transport des solides n'est pas tout à fait parfaite. Pour cela, dès la fin des années 80, une alternative plus efficace et à moindre prix est née ; c'est les « Mixed Metal layered Hydroxide compounds MMLHCs » plus souvent appelés « Mixed Metal Hydroxide MMH ».

Les MMH sont des produits synthétiques inorganiques, sous forme de cristaux plats très fins, dur et dotés d'une grande densité de charge positive. Ils sont dispersibles dans l'eau mais insolubles, et ne sont pas nocifs pour l'environnement [66].

Les MMH possèdent une structure cristalline phylliteuse semblable à celle de la Brucite $Mg(OH)_2$, mais avec des feuillets séparés, caractérisés par un excès en charge positive due au remplacement d'une fraction des cations Mg^{2+} par des Al^{3+} . Ce surplus est neutralisé par des anions échangeables (OH^- , Cl^-), entre les feuillets et à leur surface. Cela donne la formule générale $[Mg_{1-x} Al_x (OH)_2](OH)_x$ (anion échangeable OH^-) [67].

Il existe plusieurs variétés de MMH selon le degré de substitution de Mg^{2+} , la nature de l'anion échangeable, la taille des particules et autre.

Dispersées dans une suspension de bentonite, les particules des produits MMH, interagissent grâce à leur finesse ($\varnothing < 0.05\mu m$) et leur grande densité de charge positive, avec la bentonite par un mécanisme d'échange cationique [68]. Les cristaux MMH diffusent dans l'espace interfoliaire de la bentonite (montmorillonite) et s'attachent aux sites négatifs sur les surfaces des feuillets. Comme la fixation se fait de part et d'autre des feuillets, cela va conduire à la formation d'un complexe tridimensionnel MMH-Bentonite jouissant de propriétés rhéologiques et de mise en suspension très particulières [69] [70].

L'ajout du MMH à une suspension de bentonite produit un effet épaississant unique, ce qui se traduit par une augmentation considérable de la viscosité. Il conduit aussi à un comportement extrêmement rheofluidifiant, avec une PV presque inchangée, et une YP nettement plus élevée. Au repos le fluide MMH-Bentonite est caractérisé par un gel instantané qui s'apparente plus à un solide élastique. Cet état lui permet de mettre en

suspension des solides de plusieurs kg. Par une action mécanique même de faible intensité (pompage, tamisage), ce gel est facilement converti en liquide rheofluidifiant. Si cette action est interrompue, le gel est immédiatement et complètement reconstitué. La gelation est donc non progressive, ce qui facilite la remise en circulation après les longs arrêts [71]. Plusieurs modèles rhéologiques : Casson, Hurchel Bulkly, et autres ont été proposés pour traduire le comportement de ces fluides. Cependant, aucun n'a permis de mettre en évidence la dualité solide – liquide [72].

Différents mécanismes ont été proposés pour expliquer ces propriétés rhéologiques particulières. Parmi les plus persistants, ceux qui affilient ce comportement aux interactions électrostatiques facilement rompues par agitation, entre les particules du MMH est celles de la bentonite [67]. Il y a aussi ceux qui l'expliquent par un état d'hydratation très structuré des particules du complexe MMH-Bentonite [66] [71].

Enfin grâce à ces caractéristiques exceptionnelles, les fluides de forage MMH-Bentonite réalisent d'excellentes performances [70] :

- ✓ Capacité optimale de transport des cuttings et de nettoyage du trou
- ✓ Excellente suspension des solides
- ✓ Très bonne stabilisation du trou
- ✓ Grande vitesse de pénétration, et autres

Pour cela, ces fluides sont très recommandés dans plusieurs techniques de forage.

III.B.3 Les argiles organophiles

Par un processus d'échange cationique, l'argile initialement hydrophile peut agir avec des sels d'amine aliphatiques ou avec des sels et bases d'ammonium quaternaires, pour donner une argile organophile. Cette dernière, peut servir à la formulation de boues à base d'huiles avec de très bonnes propriétés de suspension.

Ces produits sont préparés à partir de la bentonite ou de l'attapulгите, par l'ajout de cations amino-organiques à une suspension aqueuse de l'argile. Le groupement amino prend la place du cation échangeable (Na^+ ou Ca^{2+}) présent initialement dans l'espace interfolier, et la chaîne hydrocarbonée prend celle des molécules d'eau adsorbées [3].

Les propriétés rhéologiques et de suspension obtenues par l'utilisation de ces complexes organophile dans les boues à base d'huile, dépendent de la composition de l'huile de base, de la nature de l'argile organophile, de la phase aqueuse dispersée de l'émulsifiant, et des différents autres additifs [73].

III.B.4 Les argiles intercalées

Les produits intercales sont obtenus par l'insertion de gros cations organiques, métalliques ou organométalliques dans l'espace interfolier de minéraux argileux expansibles (en particulier la Montmorillonite sodique). Les cations organiques sont le plus souvent des alkylammonium. Les cations métalliques sont des polyhydroximetalliques obtenus par l'hydrolyse partielle du cation métallique désiré. L'intercalation est réalisée par traitement d'une suspension aqueuse de l'argile avec une solution de l'espèce cationique. Le phénomène est typiquement initié par un processus d'échange cationique, où le cation échangeable (généralement Na^+) du minéral argileux est remplacé par l'espèce intercalante. La calcination des produits intercalés aux polyhydroximetalliques, transforme ces derniers en piliers oxydes fixes et robustes, permettant de maintenir l'expansion de l'espace interfolier, on obtient ainsi un produit ponté. Celui-ci présente des propriétés nettement meilleures que l'argile de base : grande stabilité thermique, grande ouverture de pore, grande surface spécifique, meilleures propriétés adsorptives, et une activité catalytique prononcée.

L'histoire de ces produits montre que leur développement a été lent, et que leur évolution a été le fruit de nombreux travaux de recherche.

La tendance était en premier vers l'intercalation d'argile gonflante par de gros cations organiques. Les premiers pionniers sont bien Barrer et Mclaod [74] qui en 1955, ont utilisé des cations tétralkylammonium pour l'intercalation de la montmorillonite. Les produits obtenus présentaient de bons sorbants, et des propriétés catalytiques pour de nombreuses conversions. Cependant, ils étaient de faible stabilité thermique.

La crise du pétrole en 1973, a orienté les recherches vers la synthèse de nouveaux catalyseurs, stables thermiquement, et d'ouvertures de pore suffisamment grandes pour les réactions de craquage des fractions lourdes du pétrole. Ce besoin a entraîné un regain d'intérêt exceptionnel pour les produits intercalés. Cette fois ci, l'idée est d'utiliser des cations métalliques. Depuis, les recherches se sont intensifiées dans cette direction.

Les propriétés des produits obtenus, sont entièrement dépendantes de la nature, la forme, la taille, et la quantité du cation introduit [75]. Pour cela, plusieurs types de produits pontés ont fait l'objet d'études très approfondies, essentiellement ceux à base de Zr [76], Ti [77], Fe [78], Cr [79], Ga [80] et Si [81].

Cependant, les argiles intercalées aux polyhydroxialuminiques, sont de loin les plus étudiés, que ce soit la préparation et la caractérisation de l'agent d'intercalation ou le produit ponté, et sa caractérisation, son activité catalytique, sa capacité d'adsorption ainsi que ses différentes applications [82-90]. La forme intercalante qui revient le plus souvent pour ce produit, est celle avec le polycation : $[Al_{13}O_4(OH)_{24}(H_2O)_{12}]^{7+}$.

Il existe aussi de nombreuses études sur des produits pontés avec des complexes mixtes, c'est à dire avec deux types de cations, en particulier l'aluminium avec un deuxième cation [91] [92].

En Algérie, particulièrement à l'université Saâd Dahleb de Blida, les travaux dans ce domaine ont commencé au début des années 90. Dans ce sens, le laboratoire de valorisation des matériaux non ferreux, sous la direction du Pr. H.Khalaf, s'est distingué par de nombreuses études que ce soit dans le cadre des projets de fin d'étude, de Magister [93], [94] ou des publications internationales [95-100].

D'autres études ont été réalisées au sein du département [101-103] ou à l'école nationale polytechnique [104].

Dans l'ensemble, l'intérêt s'est porté sur l'étude des conditions de préparation, la caractérisation des produits pontés, ainsi que leurs applications.

Les domaines d'application les plus étudiés sont en particulier : l'adsorption et le traitement des eaux par l'élimination de certains polluants organiques, la catalyse dans différentes réactions de conversion, ainsi que la photocatalyse.

IV. La méthode des plans d'expériences

VI.A Introduction à la méthode des plans d'expériences

VI.A.1 Historique

Le terme plans d'expériences vient de l'anglais (Design of experiments) qui se traduit par (Conception des expériences). La méthode des plans d'expériences englobe aussi bien la séquence d'essais à réaliser que l'analyse algébrique et statistique des résultats. L'efficacité d'un plan d'expériences en terme d'informations acquises et de la fiabilité de ces informations, est supérieure à toute autre séquence d'essais non structurée de même volume. En effet, les plans d'expériences servent à optimiser l'organisation des essais. Cette organisation permet de maximiser le ratio informations recueillies/nombre d'essais réalisés. Elle permet aussi d'obtenir la meilleure précision possible sur la modélisation des résultats.

Cette méthode est basée sur des règles mathématiques strictes, et exige une démarche rigoureuse de la part de l'expérimentateur. Elle encourage le travail de groupe, et la mise en commun et la synergies du savoir et du savoir-faire, et la réflexion préalable à l'action.

L'histoire de la méthode remonte au début des années 30. C'est en cherchant à résoudre le problème de la minimisation des erreurs expérimentales dans le domaine de l'agronomie, que le statisticien anglais Sir Ronald A. Fisher, établit les fondements des plans d'expériences. Après 1945, les recherches et publications de statisticiens comme : Yate, Youden, Cochran, Plackette et Burman, Box et Hunter et bien d'autres [105], enrichissent et divulguent la méthode. A partir des années 50, les deux Japonais, Taguchi et Masuyama, élaborent des tables permettant de construire des plans orthogonaux adaptés aux problèmes industriels. Ils ont ainsi contribué à une méthodologie facile à appliquer.

Ainsi, initialement difficile d'accès, la méthode des plans d'expériences se laisse apprivoiser, adapter et vulgariser, pour conquérir un cercle d'utilisateurs de plus en plus large, et des domaines d'application de plus en plus divers : l'agronomie, la chimie, la mécanique, le marketing et même dans la qualité. Elle l'est d'autant plus de nos jours, avec l'existence de logiciels destinés à la construction des plans d'expériences et à l'analyse des résultats.

IV.A.2 Performances et limites de la méthode

La démarche traditionnelle d'expérimentation qui consiste à faire varier les facteurs étudiés l'un après l'autre, présente les failles suivantes :

- ✓ Les essais sont réalisés d'une manière séquentielle, sans planification préalable de l'ensemble, et l'interprétation des résultats se fait pas à pas. Cela conduit à une campagne expérimentale d'une durée longue et aléatoire, et jette le doute sur la solution retenue.
- ✓ Les facteurs sont variés l'un après l'autre, un facteur à la fois, ce qui ne permet pas la mise en évidence des interactions (couplage des effets) entre ces facteurs.
- ✓ La difficulté de la mise en évidence de la variabilité naturelle des grandeurs étudiées (réponses) occasionnée par les différentes sources de fluctuations. Cela entache les résultats, les prévisions et les conclusions d'une incertitude qui peut être importante.

Dans la méthode des plans d'expériences, la réflexion profonde dans la planification des essais, permet de réfléchir moins et de se poser moins de questions après la réalisation de ces essais. La méthode puise son efficacité dans l'utilisation de deux outils complémentaires :

- ✓ L'outil algébrique permet de faire varier tous les facteurs en même temps (à la fois) pour tenir compte de leurs couplages. Cela permet de gagner de la précision dans les résultats, la modélisation et les prévisions.
- ✓ L'outil statistique permet de faire la part de ce qui est dû à la variabilité naturelle, et de ce qui est dû aux effets réels des facteurs, car les résultats d'essais ne sont jamais parfaitement reproductibles (grandeurs aléatoires).

Cette méthode permet de répondre aux questions suivantes :

- Parmi les facteurs retenus a priori, quels sont ceux qui ont une influence réelle sur la réponse étudiée ? (Criblage).
- Parmi les facteurs ayant une influence réelle, quels sont ceux qui sont réellement importants ? (Hiérarchisation)
- Quelles valeurs (nominale ou tolérance) donner aux facteurs influents pour que la réponse soit optimisée ? (Optimisation)
- Comment minimiser, voir neutraliser les effets indésirables de facteurs non maîtrisables ou coûteux à maîtriser (facteurs bruit) ? (Robustesse).

Cependant, plusieurs contraintes peuvent restreindre son application, à savoir :

- Les résultats des essais doivent pouvoir être quantifiés.
- Les facteurs doivent pouvoir être maîtrisés lors de l'expérimentation
- Le système étudié doit être statistiquement stable, c'est à dire avoir une variabilité naturelle constante dans le temps.
- Les perturbations des procédures doivent être acceptables.

IV.A.3 Terminologie

La méthode des plans d'expériences utilise une terminologie bien adaptée dont les éléments les plus courants sont :

- Système : Le système à étudier peut être un produit, un processus ou un dispositif quelconque. Il est considéré comme une boîte noire
- Réponses : Ce sont les grandeurs qui intéressent l'expérimentateur, et qui sont mesurées à chaque essais. Elles sont notées (y_i) .
- Facteurs : Les facteurs sont les variables ayant a priori une influence sur une ou plusieurs des réponses étudiées. Ils sont notés A, B, C, \dots, Z en coordonnées d'origine (dans la modélisation discontinue), et par la lettre x en coordonnées centrées réduites. Des indices (i, j) permettent de distinguer le facteur et son niveau. Les niveaux d'un facteur sont les valeurs qu'il peut prendre dans son domaine de variation.

Le passage entre ces deux types de coordonnées se fait par :

$$x = \frac{A - (A_{+1} + A_{-1})/2}{(A_{+1} - A_{-1})/2} \quad \text{avec :}$$

A_{-1} et A_{+1} sont respectivement la borne inférieure et la borne supérieure du domaine de variation du facteur A auxquelles correspondent les niveaux -1 et $+1$ en coordonnées centrées réduites.

- Interactions : Deux facteurs A et B sont en interaction si les effets de l'un dépendent du niveau de l'autre et réciproquement. Elle est notée AB , et son

nombre de niveaux est le produit des nombres de niveaux de A et B . Seules les interactions d'ordre 2 (entre deux facteurs) sont prises en compte.

- Modèle : Les lois de comportement du système sont représentées par des modèles empiriques de la forme :

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_n) + h(w) \text{ ou } y = g(A, B, \dots, Z) + h(w) \quad \text{avec :}$$

y : la réponse étudiée

A, B, C, \dots, Z ou x_i : les facteurs

w : variable aléatoire

Il est décomposé en deux parties :

f, g : la part déterministe décrivant l'influence (les effets) des facteurs et leurs interactions. Elle est modélisée algébriquement.

h : La part aléatoire modélisée statistiquement par une loi de probabilité caractérisant la variabilité naturelle du système. L'écart type sera une caractéristique de sa dispersion.

- Plan (matrice) d'expériences : le plan d'expériences est la liste des combinaisons des niveaux des facteurs pour lesquelles la réponse y du modèle doit être observée. Il se présente sous la forme d'un tableau dans lequel chaque colonne identifie les niveaux d'un facteur, exprimés en coordonnées centrées réduites dans la matrice de conception (Design matrix) et en coordonnées réelles dans le plan d'expériences (Work sheet). Chaque ligne identifie une combinaison des niveaux des facteurs (c'est un essai à réaliser). Le choix de ces combinaisons et de leur nombre résulte des théories mathématiques fondamentales de la méthode.
- Représentation géométrique : Un facteur est représenté par un axe orienté, et l'ensemble des facteurs par un système d'axes orthogonaux. Dans ce système d'axes une expérience est représentée par un point dont les coordonnées sont les niveaux des facteurs. On attribue à la réponse un axe orthogonal à l'espace expérimental. L'ensemble des réponses associées à l'ensemble de tous les points du domaine d'étude, définissent la surface de réponse. Celle-ci peut être représentée par des courbes d'isoreponses, chacune obtenue pour une valeur précise de la réponse et qui peut être projetées sur les plans des facteurs.

IV.A.4 Variabilité naturelle (incertitude) et grandeurs aléatoires

La variabilité naturelle est la variabilité de la réponse observable en répétant les observations de la réponse lorsque sont maintenus constants tous les facteurs maîtrisés, et fluctuent les innombrables facteurs perturbateurs à effet généralement faible. Répéter un essai à facteurs maîtrisés constants, est la façon la plus objective pour observer la variabilité naturelle. Ces répétitions doivent obéir aux règles suivantes :

- D'une répétition à l'autre doivent varier les mêmes sources de variabilité que d'une combinaison du plan à une autre.
- Les sources de variabilité indésirables doivent être réduites.

La sélection des combinaisons à répéter et la détermination du nombre de répétitions dépendent des objectifs du plan d'expériences à réaliser (Quantification ou Modélisation).

En effet, la réponse mesurée est une grandeur aléatoire. L'infinité de valeurs qu'elle peut prendre en un point expérimental donné constitue une population dont les valeurs observées lors des répétitions constituent un échantillon tiré au hasard.

Les statistiques permettent de déterminer les caractéristiques de l'échantillon observé à partir desquelles celles de la population sont estimées

La variabilité naturelle (l'erreur expérimentale) suit le plus souvent la loi de distribution de Laplace-Gauss [106].

Ne pas tenir compte de la variabilité naturelle quand celle-ci n'est pas négligeable conduit à noyer les effets réels des facteurs à faibles influences, et à entacher les effets réels des autres facteurs et leurs interactions, d'une incertitude qui sera d'autant plus grande que la variabilité de la réponse est importante. Cela se répercutera directement sur la crédibilité de la modélisation et la précision des prévisions.

Ainsi dans certains cas, les répétitions complètes et uniformes d'un plan peuvent s'avérer la seule parade pour s'affranchir de ces effets indésirables.

IV.A.5 Phases de mise en œuvre d'un plan d'expériences

La conduite d'une expérimentation obéit à une démarche précise qui est facilitée par l'application de la méthode des plans d'expériences. Celle-ci met à profit une réflexion collective approfondie qui balise la préparation de l'expérimentation et prépare l'interprétation des résultats. Les principales étapes de la méthode sont : l'instruction du problème, la construction du plan, la préparation et la réalisation des essais, l'analyse des résultats, la validation de la solution, et enfin l'interprétation et les conclusions.

L'instruction du problème doit être traitée avec la plus grande minutie car elle constitue la base du travail à réaliser.

VI.A.6 L'instruction du problème

La première étape est l'observation des faits. Elle consiste à documenter d'une manière objective l'ensemble des questions susceptibles d'apporter une description exhaustive du problème. La formalisation du problème constitue la deuxième grande étape de l'instruction.

VI.A.6.1 Formalisation du problème

Cette étape appelle successivement à :

- La définition des objectifs et des contraintes de l'étude :

Les objectifs de l'étude doivent être formulés sous forme de cahier de charge qui précisera le thème de l'étude et les objectifs, de préférence quantifiés, à atteindre.

Les contraintes sont le plus souvent liées aux facteurs coût et durée de l'étude.

- La définition des réponses :

Suivant le type de l'étude, il s'agit de décliner les objectifs en grandeurs à modéliser ou à optimiser ou autres, auxquelles seront associées une ou plusieurs réponses. Ces dernières doivent être caractéristiques de l'objectif, quantitatives, économiques, faciles et rapides à mesurer.

- Choix de la stratégie d'expérimentation :

Ce choix dépend essentiellement de la nature du problème, des objectifs à atteindre des connaissances initiales sur le problème, et des contraintes de réalisation du plan.

Il permettra de définir la quantité de facteurs à retenir, le type de la modélisation et du plan d'expériences, ainsi que la séquentialité de l'enchaînement de l'étude.

Il existe trois types de stratégies : la prévision / optimisation (P), la quantification (Q) et la robustesse (R).

❖ La stratégie (Q) est qualifiée de screening, débroussaillage, criblage ou tamisage. Elle s'applique surtout pour identifier les facteurs influents et ceux qui ne le sont pas, hiérarchiser les facteurs selon l'importance de leurs effets, et la recherche d'extremums. Elle conduit généralement à choisir un modèle d'ordre 1 où toutes les interactions sont négligées, sauf celles connues comme étant très importantes. On prend généralement deux niveaux pour chaque facteur.

❖ La stratégie (*P*) répond à un objectif de recherche de valeur nominale ou à la nécessité de déterminer le modèle précis d'une loi de comportement pour la prévision et/ou l'optimisation. Elle conduit à choisir un modèle d'ordre 2 (avec interactions) avec généralement plus de deux niveaux pour chaque facteur.

Ce modèle permet de prévoir avec précision la valeur de la réponse pour n'importe quelle combinaison du plan complet ou même dans tout le domaine d'étude si le modèle est continu.

❖ La stratégie (*R*) est complémentaire aux deux précédentes. Elle est adoptée dans le cas où l'on cherche une solution robuste au problème, c'est à dire une solution qui soit la moins sensible à la variabilité naturelle occasionnée par les facteurs de bruit mal maîtrisés. Le principe est de chercher à positionner les facteurs bien maîtrisés à des niveaux susceptibles de neutraliser au mieux les effets des facteurs de bruit, et en même temps, atteindre les autres objectifs de l'étude.

➤ Recensement des facteurs :

Les facteurs identifiés doivent être élémentaires et indépendants. Ils peuvent être classés en quatre groupes : les facteurs à figer d'emblée dans l'étude, les facteurs principaux, les facteurs bruits et les facteurs blocs.

➤ Hiérarchisation des facteurs :

En stratégie (*P*) trois critères peuvent permettre de trier et hiérarchiser les facteurs : le rapport avec l'objectif de l'étude, l'importance a priori de l'influence, et la maîtrisabilité pendant l'expérimentation.

➤ Choix du domaine expérimental et du nombre de niveaux :

Le nombre de niveaux retenus pour chaque facteur dépend de la stratégie adoptée, de l'étendue du domaine d'étude, et des différentes contraintes. On évitera cependant des domaines de variation susceptibles d'introduire des changements d'états ou de comportements fondamentalement différents.

➤ Recensement des interactions :

L'interaction est un phénomène complexe et difficile à pressentir. Pour une meilleure précision, il est recommandé en stratégie (*P*) de prendre en compte toutes les interactions sauf celles connues comme étant très négligeables.

➤ Relevé des contraintes de l'expérimentation

Deux contraintes expérimentales sont le plus souvent rencontrées ; d'abord la limitation du nombre maximale d'essais essentiellement pour des raisons de coût et de la durée, ensuite la limitation liée à la variation des facteurs due aux incompatibilités de niveaux.

➤ Détermination du type de modèle et de plan :

Il s'agit d'affiner l'orientation prise au départ par le choix de l'une des stratégies : (*Q*), (*P*) ou (*R*). En fait, c'est la stratégie qui détermine le type de modèle, et c'est le type de modèle qui détermine le type de plan. Ainsi la stratégie (*Q*) se présente selon quatre variantes: *Q1*, *Q2*, *Q3* et *Q4*. Les caractéristiques des facteurs (nombre, niveaux, interactions et domaine de variation) constituent l'élément principal de la distinction entre ces variantes. Il en est de même pour la stratégie (*P*) : *P1*, *P2*, *P3* et *P4*.

➤ Expression du modèle à retenir et calcul de la taille du plan :

Il s'agit de faire le choix des facteurs et des interactions à introduire dans le modèle symbolique préliminaire compatible avec la stratégie retenue, et de déterminer le nombre de combinaisons du plan d'expériences à construire.

IV.B Modélisation discrète (Discontinue) et plans orthogonaux

IV.B.1 La modélisation

Dans ce type de modélisation, les facteurs quantitatifs (continus) sont discrétisés en un nombre donné de niveaux. Ils sont représentés comme des facteurs qualitatifs.

Cette représentation se justifie quand on n'a pas besoin d'interpoler entre les niveaux, ce qui est un choix courant en stratégie (Q). Elle est aussi utilisée en stratégie (P) dans les cas suivants :

Variante (P1) : lorsque le modèle comporte des facteurs quantitatifs et des facteurs qualitatifs et qu'il n'est pas possible d'effectuer un plan en modélisation continue pour chaque combinaison des facteurs qualitatifs.

Variante (P2) : lorsque le domaine d'étude est trop étendu pour utiliser un modèle quadratique.

La loi de comportement du système est supposée de la forme :

$$y = g(A, B, \dots, Z) + h(w) \quad \text{avec}$$

y : la réponse étudiée

A, B, \dots, Z : les facteurs

g : la part déterministe

h : la part aléatoire

w : variable aléatoire

IV.B.1.1 Modélisation de la part déterministe

a. Notions générales

- Le modèle postulé est toujours du premier degré avec ou sans interactions, il est symbolisé par : $y = I + A + B + C + AB + AC + BC$ (pour trois facteurs)

I : action d'ordre 0 (terme constant)

A, B, C : actions d'ordre 1 (facteurs)

AB, AC, BC : actions d'ordre 2 (interactions)

- Des actions sont dites disjointes si elles ne comportent pas de facteurs communs.

- Le nombre de coefficients indépendants d'un facteur A à n_A niveaux est $p_A = n_A - 1$. Celui d'une interaction AB est $p_{AB} = (n_A - 1)(n_B - 1)$. Celui du coefficient constant est égal à 1.

- Le nombre de coefficients indépendants p du modèle est la somme de ceux de ses actions.

- La représentation graphique d'un modèle (graphe linéaire) consiste à disposer les facteurs sur les sommets d'un polygone régulier. Chaque interaction est représentée par une branche reliant les deux facteurs qui la composent. Une symbolisation particulière permet de prendre en compte l'ordre de difficulté de changement de niveaux des facteurs.

b. Principe de la modélisation

Pour un modèle à deux facteurs avec interaction :

A : à n_A niveaux, B : à n_B niveaux

Après expérimentation, le modèle s'écrit :

$$y(A, B) = m + [a_1 \ a_2 \ \dots \ a_{n_A}]A + [b_1 \ b_2 \ \dots \ b_{n_B}]B + A' \begin{vmatrix} C_{11} & C_{1n_B} \\ \vdots & \vdots \\ C_{n_A 1} & C_{n_A n_B} \end{vmatrix} B$$

a_1, a_2, \dots, a_{n_A} : les effets moyens du facteur A aux niveaux A_1, A_2, \dots, A_{n_A}

b_1, b_2, \dots, b_{n_B} : les effets moyens du facteur B aux niveaux B_1, B_2, \dots, B_{n_B}

$C_{11}, \dots, C_{1n_B}, \dots, C_{n_A n_B}$: Les termes d'interaction AB aux niveaux AB de l'interaction AB

m : la moyenne des réponses y observées

A, B : les colonnes indicatrices de niveaux des facteurs A et B respectivement.

- L'effet d'un facteur donné sur la réponse y est toute variation de y consécutive à un changement de niveau de ce facteur.
- L'effet moyen du facteur A au niveau A_i est l'écart de la moyenne des réponses y observées pour ce niveau, à la moyenne de l'ensemble des réponses y observées. Il est indépendant des niveaux des autres facteurs.
- Le terme d'interaction est une correction (un écart) de l'effet moyen par rapport à l'effet réel à une combinaison donnée des autres facteurs.

IV.B.2 La construction des plans orthogonaux

a. Notation et Définitions

Les notations suivantes sont utilisées :

q : le nombre de combinaisons distinctes ou non d'un plan non uniformément répété.

r : nombre de répétitions de chacune des q combinaisons.

s : nombre de combinaisons distinctes d'un plan.

$n = rq$: nombre de combinaison d'un plan P répète r fois.

rP : plan d'expériences P répété r fois.

- Le plan d'expériences obtenu en répétant r fois les combinaisons distinctes ou non d'un plan, est qualifié d'uniformément répété.
- Le spectre d'un plan est la liste de ses combinaisons distinctes.
- Un plan factoriel complet est un plan dans lequel toutes les combinaisons distinctes de niveaux sont présentes.
- L'efficacité d'un plan P vis à vis de son modèle M à p coefficients indépendants est

définie par :
$$Eff(P, M) = \frac{P}{q} \leq 1$$

- Un plan d'expérience P est orthogonal et équilibré vis à vis d'un modèle M donné, si et seulement si pour chaque couple d'actions disjointes du modèle M , tous ses couples de niveaux possibles sont présent un même nombre de fois dans le plan d'expériences P .

- Tout plan factoriel complet à deux niveaux (uniformément répété) est orthogonal vis à vis du modèle (du premier degré) auquel il est associé.

- Les deux conditions nécessaires mais insuffisantes pour construire un plan P qui soit orthogonal vis à vis d'un modèle M donné sont :

. $q = k$. PPCM (des produits de niveaux des facteurs qui composent chaque couple d'actions disjointe du modèle).

. $q \geq p$ avec :

PPCM : est le plus petit commun multiple, et k : un entier

L'orthogonalité est une propriété algébrique qui confère au plan associé à un modèle donné, les spécificités suivantes :

. Les coefficients relatifs à des actions distinctes ne sont pas corrélés.

- . L'incertitude sur l'estimation des coefficients du modèle est minimale.
- . La construction des plans orthogonaux les plus usuels est facilitée par l'existence de tables et recueil de plans orthogonaux préétablis.
- . L'estimation des coefficients du modèle et l'analyse statistique se fait par de simples opérations arithmétiques

b. Construction des plans orthogonaux

Les plans orthogonaux sont construits à partir des tables et plans orthogonaux préétablis. L'identification de la table ou du plan à utiliser est basée essentiellement sur :

- La stratégie et le type de modèle-plan adopté (Q, P, R)
- Le nombre d'actions du modèle symbolique (facteurs et interaction)
- Le nombre de niveaux des facteurs
- La taille q du plan à construire

Les tables se présentent sous la forme de tableaux rectangulaires, accompagnés pour certaines, de graphes linéaires et de tableaux triangulaires.

Le tableau rectangulaire est un ensemble de colonnes à q termes, orthogonales entre elles, duquel seront extraites celles qui constitueront le plan d'expériences à q combinaisons. Le nombre de colonnes correspond au nombre maximal d'actions pouvant y être affectées. Ces tables permettent de prendre en compte l'ordre de difficulté de changement de niveaux des facteurs.

Les graphes linéaires indiquent les différentes familles de modèles pouvant être étudiés, en précisant le positionnement des facteurs et des interactions dans les colonnes du tableau. Cela permet d'éviter que deux actions différentes soient affectées à une même colonne, ce qui empêcherait la distinction de leurs effets. Ainsi ces graphes constituent des modes d'emploi des tables, permettant d'éviter la confusion des effets.

A défaut de ces graphes, les tableaux triangulaires d'interactions permettent de localiser la colonne contenant l'interaction entre deux facteurs affectés à deux colonnes quelconques de la table.

Les tableaux rectangulaires de confusion d'actions permettent de recenser les confusions d'action après avoir affecté les facteurs aux différentes colonnes.

Certaines tables ne comportent pas de tableaux triangulaires ou de graphes linéaires et les plans correspondants ne permettent pas d'étudier les interactions ; c'est le cas des tables de débroussaillage. La structure de ces tables est telle qu'une interaction quelconque entre deux facteurs n'occupe pas une seule colonne, mais plutôt toutes les colonnes du tableau à la fois. Ainsi une colonne quelconque va représenter non seulement l'effet du facteur qui l'occupe, mais aussi une partie de chacune des interactions de tous les autres facteurs. Cela provoque un biais de type aléatoire sur l'effet estimé des facteurs.

La procédure de construction des plans orthogonaux à partir des tables consiste à établir la liste des q combinaisons possibles du plan d'expériences selon la double condition d'orthogonalité, de choisir la table adéquate à utiliser selon les critères suscités, puis affecter les facteurs et les interactions dans les colonnes appropriées en utilisant les graphes linéaires ou les tableaux triangulaires.

IV.B.3 L'analyse des résultats

Après la réalisation des essais, la procédure générale d'analyse des résultats des plans orthogonaux est basée sur les étapes suivantes :

IV.B.3.1 Estimation de la constante, des effets moyens et des termes d'interaction (les coefficients du modèle)

- L'estimation m de la constante I du modèle est la moyenne arithmétique de tous les résultats y observés $m = \bar{y}$

- L'effet moyen du facteur A au niveaux A_k est estimé par : $a_k = \bar{y}(A_k) - m$

$\bar{y}(A_k)$: est la moyenne de tous les résultats y observés lorsque A est au niveau A_k dans le plan

- Le terme $(ab)_{kl}$ de l'interaction AB lorsque A est au niveau A_k et B au niveau B_l est estimé par $(ab)_{kl} = \bar{y}(A_k, B_l) - m - a_k - b_l$

$\bar{y}(A_k, B_l)$: est la moyenne des résultats y lorsque à la fois A est au niveau A_k et B au niveau B_l

Ces effets et interactions ainsi estimés peuvent être représentés par deux types de graphiques complémentaires :

✓ Graphe des réponses moyennes :

- Pour un facteur A , on reporte les moyennes $\bar{y}(A_k)$ en fonction des niveaux A_k .

- Pour une interaction AB , on reporte les moyennes $\bar{y}(A_k, B_l)$ en fonction au choix soit des niveaux A_k de A ou des niveaux B_l de B .

✓ Graphes d'effets

- Pour un facteur, on reporte directement ses effets moyens en fonction de ses niveaux.

- On représente les termes d'interaction en fonction des niveaux des facteurs en corrigeant les effets moyens de ceux ci.

IV.B.3.2 Analyse de la variance (ANAVAR)

En supposant que les hypothèses de la normalité de la réponse soient vérifiées c'est à dire que l'erreur expérimentale suit une loi de distribution de Laplace Gauss, alors les variances et les rapports de deux variances suivent respectivement la loi de distribution du χ^2 et la loi de Fisher Snedecor.

a. Définition et principe

L'analyse de la variance est une technique statistique qui a pour but d'interpréter les coefficients relatifs s à chaque action du modèle. Elle permet de s'assurer s'il est possible de reconnaître dans ceux ci un effet réel nul pour chacune des actions, compte tenu de l'incertitude occasionnée par le bruit de fond de la variabilité naturelle de la réponse y .

Elle a pour principe de comparer pour chaque action A du modèle :

- Une estimation $V(A)$ de la variance de la réponse y associée à l'action A et ce à partir des effets de cette dernière.

- Une estimation de la variance de la variabilité naturelle de la réponse y , soit à partir des résidus $V(e)$, soit à partir des répétitions $V(\varepsilon)$.

Ainsi, on calcule le rapport $F exp$: $F exp = \frac{V(A)}{V(e)}$ ou $F exp = \frac{V(A)}{V(\varepsilon)}$ auquel on pratique le

test de Fisher. Ce dernier consiste à comparer pour un niveau de confiance $(1 - \alpha)$ donné (généralement 95% ou 99%), la valeur calculée $F exp$ avec une valeur critique $F crit$ tirée

des tables statistiques de Fisher Snedecor. F_{crit} dépend du niveau de confiance $(1 - \alpha)$ et des degrés de liberté du numérateur et du dénominateur du rapport F_{exp} .

Deux cas se présentent :

- Si $F_{exp} < F_{crit}$: l'hypothèse d'effet réel nul apparaît avec une probabilité $(1 - \alpha)$ élevé. On dira que les effets de A ne sont pas significatifs compte tenu de la variabilité naturelle de la réponse y .
- Si $F_{exp} \geq F_{crit}$: l'hypothèse de l'effet réel nul de l'action A apparaît avec une probabilité α très faible. On dira que les effets réels de A sont significatifs

b. Estimation des variances

➤ L'estimation des variances des actions du modèle à partir de ses coefficients est donnée par les relations suivantes :

- Pour un facteur A : $V(A) = SCE(A) / ddl(A)$ avec :

$$SCE(A) = \frac{n}{n_A} \sum_{1 \leq k \leq n_A} a_k^2, \quad ddl(A) = n_A - 1$$

- Pour une interaction AB entre deux facteurs A et B : $V(AB) = SCE(AB) / ddl(AB)$

$$SCE(AB) = \frac{n}{n_A \cdot n_B} \sum_{1 \leq k \leq n_A} \sum_{1 \leq l \leq n_B} (ab)_{kl}^2$$

$$ddl(AB) = (n_A - 1)(n_B - 1)$$

n : nombre de résultats du plan d'expériences, répétition comprises

n_A, n_B : nombre de niveaux de A et B

a_k : estimation de l'effet moyen du facteur A au niveau A_k

$SCE(A)$: somme des carrés des écarts du facteur A

$ddl(A)$: degré de liberté du facteur A

$(ab)_{kl}$: estimation du terme d'interaction AB correspondant aux niveaux A_k de A et au niveau B_l de B .

$SCE(AB)$: Somme des carrés des écarts de l'interaction AB

$ddl(AB)$: degré de liberté de l'interaction AB

➤ L'estimation de la variance de la loi de la variabilité naturelle est donnée par :
 . A partir des résidus :

$$V(e) = SCE(e) / ddl(e) \Rightarrow V(e) = \frac{\sum_{1 \leq i \leq n} e_i^2}{n - p}$$

$SCE(e)$: la somme des carrés des résidus

$ddl(e) = n - p$: degré de liberté des résidus

$e_i = y_i - y_{prev i}$: résidu associé au i^{eme} résultat y_i

$y_{prev i}$: réponse prévue au point i par le modèle estimé.

. A partir des répétitions

Lorsque tout ou une partie des combinaisons du plan sont répétées, la variances des répétitions est donnée par :

$$V(\varepsilon) = \frac{v_1 \sigma_1^2 + v_2 \sigma_2^2 + \dots + v_g \sigma_g^2}{v_1 + v_2 + \dots + v_g}$$

g : nombre de combinaisons répétées

r_i : nombre de répétitions de la combinaison i

$v_i = r_i - 1$: nombre de degré de liberté de l'estimation de la variance de répétition pour la combinaison i

σ_i^2 : estimation de la variance de répétition pour la combinaison i

Dans le cas d'un plan répété uniformément

$$V(\varepsilon) = SCE(\varepsilon) / dd\ell(\varepsilon) = \frac{\sum_{1 \leq i \leq q} \sum_{1 \leq k \leq r} (y_{ik} - \bar{y}_i)^2}{n - q}$$

y_{ik} : résultat obtenu pour la combinaison i et la répétition k

\bar{y}_i : moyenne des résultats des répétitions pour la combinaison i

n : nombre de résultats du plan répété

q : nombre de combinaisons du plan répété

r : nombre de répétition de chaque combinaison du plan

Après l'analyse de la variance, les effets moyens des facteurs non significatifs sont remplacés par 0 dans le modèle, et les interactions non significatives sont supprimées.

IV.B.3.3 Analyse des résidus

L'analyse de la variance s'appuie sur l'hypothèse de la normalité de la loi de la variabilité naturelle de la réponse. Lorsque le plan est répété uniformément, une hétérogénéité de la variance se traduit par plusieurs combinaisons présentant une dispersion des résultats plus importante que les autres. Une valeur aberrante se traduit généralement par une combinaison présentant une dispersion plus importante que les autres.

Pour examiner l'homogénéité de la variance, la normalité des résidus et détecter d'éventuels résultats aberrants, plusieurs graphes sont utilisés :

✓ Le graphe représentant la réponse observée en fonction de la réponse estimée :

Dans certaines parties du graphe, les écarts par rapport à la première bissectrice peuvent être plus importants. Cela traduit soit des résultats aberrants, soit une variance hétérogène soit un défaut d'adéquation du modèle.

✓ Le graphe représentant les résidus en fonction de la réponse estimée :

On peut repérer sur ce graphe soit des résultats suspects, associés à des résidus anormaux, soit une variance non homogène fonction du niveau de la réponse.

Ce genre de situation peut être imputé soit à l'influence d'un facteur perturbateur bruit ou bloc ou d'un incident lors des essais, soit à la nature même de la réponse quand celle-ci ne suit pas une loi normale de variance homogène.

IV.B.3.4 Validation du modèle discret

Il s'agit de vérifier si le modèle estimé explique correctement la variation de la réponse observée. Le modèle sera considéré comme adéquat si pour une combinaison donnée, l'écart entre la réponse moyenne observée et la réponse moyenne prédite est acceptable.

L'adéquation du modèle discret portera sur les combinaisons du plan réalisé et celles du plan complet non présentes dans le plan réalisé.

➤ Adéquation du modèle pour les combinaisons du plan réalisé :

Il s'agit de vérifier si le modèle explique les variations de la réponse pour toutes les combinaisons du plan. Le principe de la vérification consiste à comparer la variance résiduelle à la variance de la variabilité naturelle. En effet les résidus cumulent :

. Le défaut ou l'erreur d'adéquation (d'ajustement), qui est la différence pour un combinaison donnée, entre la réponse moyenne vraie et la réponse moyenne prévue par le modèle estimé.

. Les fluctuations aléatoires qui sont seulement imputables à la variabilité naturelle (erreur expérimentale).

- Si le plan n'est pas répété :

On compare la variance résiduelle $V(e)$ à la variance de répétition $V(\varepsilon)$ estimée par des répétitions préliminaires. Les deux variances sont indépendantes, on peut appliquer le test

$$\text{de Fisher au rapport } F_{exp} = \frac{V(e)}{V(\varepsilon)}$$

Le modèle sera considéré comme adéquat si $F_{exp} < F_{crit}$ où F_{crit} est déterminé à partir des tables de Fisher pour le niveau de confiance retenu.

- Si le plan est répété uniformément :

La variance de la variabilité naturelle estimée à partir des répétitions du plan et la variance résiduelle ne sont pas indépendantes. Pour cela on décompose la variance résiduelle en faisant apparaître l'erreur d'adéquation du modèle et l'erreur de répétitions. Le test de

$$\text{Fisher est appliqué au rapport } F_{exp} = \frac{V(\Delta)}{V(\varepsilon)} \quad \text{avec :}$$

$$V(\Delta) = \frac{SCE(\Delta)}{ddl(\Delta)}$$

$SCE(\Delta) = SCE(e) - SCE(\varepsilon)$: somme des carrés des écarts du défaut d'adéquation

$ddl(\Delta) = q - p$: le degré de liberté du défaut d'adéquation

Le modèle sera considéré comme adéquat si $F_{exp} < F_{crit}$.

➤ Adéquation du modèle pour les combinaisons du plan complet non présentes dans le plan réalisé :

Il s'agit de vérifier le caractère prédictif du modèle discret lorsque la stratégie est (P). Le principe de la vérification consiste à réaliser des essais avec des combinaisons non testées du plan complet et à comparer les résultats obtenus avec ceux fournis par le modèle. On calcule la différence $(y_{prev} - y)$ appelée l'erreur de prévision, et on vérifie si elle est significative, en comparant sa valeur absolue avec la demi-largeur IC de l'intervalle de confiance sur l'erreur de prévision.

Si la comparaison porte sur un seul résultat y (non répété), la valeur de IC pour une combinaison donnée est obtenue par la formule :

$$IC(y_{prev} - y) = t_{h:1-\alpha/2} \cdot \sigma(y_{prev} - y) \quad \text{avec} \quad V(y_{prev} - y) = \left(1 + \frac{p}{n}\right) \cdot V(\varepsilon)$$

Expression dans laquelle :

h : degré de liberté ayant servi pour l'estimation de $V(\varepsilon)$

$t_{h:1-\alpha/2}$: est un fractile de la loi de Student, tiré à partir des tables statistiques

Lorsque le plan est uniformément répété et que $V(\varepsilon)$ est estimée par la variance de répétition, alors : $h = n - q$. Lorsque le plan n'est pas répété, $V(\varepsilon)$ est à remplacer par la variance résiduelle $V(e)$ et $h = n - p$

Le modèle sera considéré comme adéquat si une proportion $(1 - \alpha)$ des résultats observés sont compris dans l'intervalle $[y_{prev} - IC \quad y_{prev} + IC]$.

Lorsque le modèle est juger inadéquat, il convient :

- De réexaminer les données afin de s'assurer qu'elles ne contiennent pas de valeurs aberrantes ou qu'elles ne soient pas polluées par des facteurs cachés.
- De rechercher les actions négligées à tort dans le modèle initial retenu.

IV.B.3.5 Intervalles de confiance sur les effets estimés et les réponses moyennes

❖ Intervalle de confiance sur les effets

Si IC est la demi-largeur de l'intervalle de confiance, et $(1 - \alpha)$ est le niveau de confiance retenu, la probabilité que la valeur vraie de l'effet soit à l'intérieur de l'intervalle de confiance est $(1 - \alpha)$

Lorsque le plan est orthogonal et équilibré, la demi-largeur IC de cet intervalle est donnée par :

. Pour un facteur indépendant :

$$IC = t_{h;1-\alpha/2} \sigma(a_k) \quad \text{avec} \quad V(a_k) = \frac{n_A - 1}{n} V(\varepsilon)$$

. Pour une interaction AB entre deux facteurs :

$$IC = t_{h;1-\alpha/2} \sigma((ab)_{kl}) \quad \text{avec} \quad V((ab)_{kl}) = \frac{(n_A - 1)(n_B - 1)}{n} V(\varepsilon)$$

. Pour la constante m du modèle :

$$IC = t_{h;1-\alpha/2} \sigma(m) \quad \text{avec} \quad V(m) = \frac{V(\varepsilon)}{n}$$

❖ Intervalle de confiance sur les réponses moyennes

Les valeurs moyennes de la réponse associées à des niveaux donnés d'un facteur peuvent être assorties d'un intervalle de confiance. Lorsque le plan est orthogonal et équilibré, on a pour le niveau A_k du facteur A :

$$\bar{y}(A_k) = \frac{n_A}{n} \sum_{1 \leq i \leq \frac{n}{n_A}} y_i(A_k)$$

$$V(\bar{y}(A_k)) = \frac{n_A}{n} V(\varepsilon) \quad \text{et} \quad IC = t_{h;1-\alpha/2} \sigma(\bar{y}(A_k))$$

h : le degré de liberté de l'estimation de la variance de la variabilité naturelle.

A défaut de connaître $V(\varepsilon)$ on peut prendre $V(e)$.

IV.B.4 Inconvénients des plans orthogonaux

Les plans orthogonaux présentent les inconvénients suivants :

- Les plans orthogonaux n'existent pas pour n'importe quelle taille n du plan
- L'orthogonalité est parfois coûteuse, la taille du plan orthogonal peut être très supérieure à p . L'efficacité n'est donc pas toujours optimale.
- les plans orthogonaux n'admettent pas de combinaisons de niveaux interdites entre deux facteurs quelconques.
- Il faut réaliser des essais supplémentaires pour affiner un modèle issu d'un plan orthogonal.
- les plans orthogonaux n'existent pas pour les modèles du second degré.
- Ils ne sont pas adaptés à l'étude des facteurs dépendants.

Il existe d'autres types de plans qui permettent de contourner ces handicaps. Il s'agit des plans optimaux destinés essentiellement à la modélisation continue (en surfaces de réponse) et à l'optimisation, ainsi que les plans de mélanges.

IV.C. Modélisation en surface de réponse (continue) et plans optimaux

IV.C.1 Introduction

Les plans optimaux ont été introduits à partir des années 60 [105]. Ils s'utilisent dans le cadre d'une stratégie orientée vers l'optimisation ou la prévision des réponses. Le principe de construction de ces plans consiste généralement à chercher les combinaisons des facteurs qui optimisent un critère de qualité de la modélisation. Les facteurs doivent tous être quantitatifs et continus. Leur influence est généralement non linéaire. Le comportement de la réponse est modélisé par une loi du second degré. Le modèle permet notamment :

- La visualisation de la surface de réponses avec des courbes d'isovaleurs ou avec une représentation tridimensionnelle.
- La recherche de solution permettant d'atteindre une valeur nominale de la réponse.
- L'optimisation sous contrainte d'une réponse ou d'un critère fonction de plusieurs réponses.

Pour ce type de modélisation, les niveaux des facteurs sont toujours exprimés en coordonnées centrées réduites (CCR), et les coefficients du modèle déterminés par un calcul matriciel.

IV.C.2 Calcul matriciel

Le calcul classique des effets et des interactions (coefficients du modèle) consistent à multiplier les réponses par les signes respectifs des colonnes identificatrices des niveaux et à prendre la moyenne des valeurs obtenues. Cette méthode est aisément applicable pour les plans factoriels à deux niveaux (complets ou fractionnaires orthogonaux), lorsque les facteurs sont bien fixés aux niveaux hauts (+1) et bas (-1) pour chacune des expériences, et que le modèle postulé est du premier degré. Cependant, elle est mise en défaut si les points expérimentaux ne se trouvent pas parfaitement aux sommets du domaine d'étude ou lorsqu'il y a un nombre quelconque d'essais ou lorsque le modèle n'est pas du premier degré ou le plan est un peu plus compliqué que le plan factoriel à deux niveaux. L'outil valable dans tous ces cas est le calcul matriciel.

Ainsi pour trouver les coefficients du modèle, il suffit de résoudre le système d'équations obtenu en appliquant le modèle à l'ensemble des points expérimentaux. Le système s'écrit sous la forme condensée $\underline{y} = X\underline{a}$ avec :

\underline{y} : est le vecteur réponse dont les éléments sont les valeurs des réponses mesurées.

\underline{a} : est le vecteur coefficient dont les éléments sont les coefficients du modèle à déterminer.

X : est la matrice de calcul des coefficients. Ses éléments dépendent du choix des coordonnées des points expérimentaux, et du modèle mathématique retenu.

Les coefficients du modèle sont obtenus par $\underline{a} = X^{-1}\underline{y}$ avec :

X^{-1} : est la matrice inverse de X

Ainsi, le calcul matriciel est applicable dans tous les cas de figure, sauf lorsque la matrice X n'est pas inversible (Le Déterminant de X est nul).

En fait la méthode classique n'est qu'un cas tout à fait particulier du calcul matriciel celui où la matrice X est une matrice D'Hadamard [106]. Cas où l'on a : $X^{-1} = 1/n X'$ et

donc $\underline{a} = 1/n X^t \underline{y}$ qui n'est autre que la relation utilisée dans la méthode classique, avec :

X^t : la matrice transposée de X et n : le nombre d'essais.

VI.C.3 Modèle du second degré (quadratique) et analyse canonique

L'étude de ces modèles sera illustrée sur un exemple à deux facteurs facilement généralisable au cas à k facteurs

IV.C.3.1 Modèle du second degré

Le modèle du second degré est la relation mathématique utilisée pour analyser et interpréter les résultats des plans optimaux. Il permet de mettre en évidence les courbures des surfaces de réponses dues à la non linéarité des influences des facteurs. Ainsi, ces modèles sont constitués d'une part linéaire comprenant les effets linéaires des facteurs et leurs interactions, et d'une part quadratique traduisant l'effet non linéaire.

a. Expression du modèle

Pour deux facteurs le modèle s'écrit (en coordonnées centrées réduites) :

$$y = a_0 + a_1 x_1 + a_2 x_2 + a_{12} x_1 x_2 + a_{11} x_1^2 + a_{22} x_2^2 \quad \text{avec :}$$

\longleftrightarrow

\longleftarrow
Part linéaire avec interaction

\longrightarrow
Part quadratique

a_0 : coefficient constant

x_1, x_2 : termes du premier degré

$x_1 x_2$: termes rectangles

x_1^2, x_2^2 : termes carrés

La forme matricielle s'écrit :

$$y = a_0 + [x_1 \quad x_2] \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \end{bmatrix} + [x_1 \quad x_2] \begin{bmatrix} a_{11} & 1/2 a_{12} \\ 1/2 a_{12} & a_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_1 \\ x_2 \end{bmatrix}$$

Dans le cas général à k facteurs :

$$y = a_0 + [x_1 \quad x_2 \quad \dots \quad x_k] \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \\ \vdots \\ a_k \end{bmatrix} + [x_1 \quad x_2 \quad \dots \quad x_k] \begin{bmatrix} a_{11} & 1/2 a_{12} & \dots & 1/2 a_{1k} \\ 1/2 a_{12} & a_{22} & \dots & 1/2 a_{2k} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1/2 a_{1k} & 1/2 a_{2k} & \dots & 1/2 a_{kk} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x_1 \\ x_2 \\ \vdots \\ x_k \end{bmatrix}$$

La forme condensée :

$$y = a_0 + \underline{x}_k^t \underline{a}_k + \underline{x}_k^t A \underline{x}_k \quad \text{avec :}$$

\underline{x}_k : est le vecteur des coordonnées d'un point p , $\underline{x}_k^t = [x_1 \quad x_2 \quad \dots \quad x_k]$

\underline{a}_k : le vecteur des coefficients des termes du premier degré

A : est la matrice centrale des termes du second degré. Les éléments diagonaux sont les coefficients a_{ii} des termes carrés. Les éléments non diagonaux sont égaux à la moitié des coefficients a_{ij} des termes rectangles.

a_0 : terme constant, c'est la valeur de la réponse au centre du repère ($y(x_i = 0)$)

b. Signification des différents termes du modèle

Dans le modèle du premier degré, les coefficients reflètent directement les effets des facteurs et leurs interactions. Pour les modèles du second degré la signification des coefficients est un peu plus compliquée. Graphiquement, le modèle est représenté par une surface de réponses et des courbes d'isovaleurs. La projection de ces courbes sur les plans des facteurs donne des coniques dont la nature et la forme sont déterminées par les coefficients des termes carrés. La position et l'orientation sont déterminées par les coefficients des termes du premier degré et les termes rectangles.

Lorsque le modèle ne contient que les termes carrés ($y = a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2$), le centre S de la conique coïncide avec l'origine O et ses axes coïncident avec les axes de référence. Les valeurs des coefficients (a_{11}, a_{22}) des termes carrés indiquent la vitesse de variation de la réponse le long des axes de la conique. Les variations sont rapides dans la direction d'un fort coefficient. Le facteur correspondant a une forte influence et la surface de réponse a une forte pente dans cette direction.

Les variations sont lentes dans la direction d'un faible coefficient, le facteur correspondant a une faible influence, et la surface de réponse a une faible pente dans cette direction.

Les signes de ces mêmes coefficients indiquent la nature de la surface de réponse et le type des courbes d'isovaleurs. Les cas suivants peuvent se présenter :

- Si les deux coefficients sont de mêmes signes, la surface de réponse est un paraboloides et la conique une ellipse. Si les deux coefficients sont positifs, le sommet S (le point stationnaire) est un minimum. S'ils sont négatifs c'est un maximum.

- Si les deux coefficients sont de signes différents, la surface de réponse est un paraboloides hyperbolique et la conique une hyperbole. Le point stationnaire S est un minimum pour le facteur à coefficient positif, et un maximum pour le facteur à coefficient négatif ; c'est un minimax.

Lorsqu les autres termes sont présents dans le modèle, l'orientation et la position de la conique changent. Ainsi la présence du terme du premier degré traduit la non coïncidence de l'origine O avec le sommet S de la conique. Par contre la présence des termes rectangles traduit le non parallélisme des axes de référence avec ceux de la conique. Dans ce cas, l'identification des influences des facteurs ne peut plus se baser uniquement sur l'examen des coefficients des termes carrés.

Cette analyse graphique est aisément applicable pour interpréter les modèles à deux facteurs. Cependant, elle devient impraticable au-delà de trois facteurs, d'où le recours à d'autres méthodes plus générales (à k facteurs) telle que l'analyse canonique.

IV.C.3.2 Analyse canonique

a. Directions propres, vecteurs propres et valeurs propres

Les directions propres sont les directions des axes de la conique. Les vecteurs propres sont les vecteurs unités portés ces axes. Ils sont orthogonaux entre eux et leurs composantes

(m_1, m_2) sont exprimées dans le repère initial. $m_1 \begin{cases} m_{11} \\ m_{12} \end{cases} \quad m_2 \begin{cases} m_{21} \\ m_{22} \end{cases}$

Les valeurs propres sont les coefficients des termes carrés lorsque les axes de la conique coïncident ou sont parallèles avec les axes de référence, c'est à dire lorsque les coefficients des termes rectangles sont nuls. Pour les déterminer, il suffit de diagonaliser (éliminer les termes non diagonaux) la matrice centrale A du modèle. Les valeurs propres sont les éléments diagonaux de la matrice obtenue. Graphiquement, cela se ramène à faire pivoter les axes de références avec un angle β qui les met en coïncidence ou en parallèle avec les

directions propres de la conique. L'angle β est donné par la relation $\operatorname{tg} 2\beta = a_{12}/(a_{11} - a_{22})$

L'intérêt de cette opération est de se ramener au cas simple du modèle sans les termes rectangles. Ainsi l'interprétation se fera par rapport aux directions propres et suivant les signes et les valeurs relatives des valeurs propres.

b. Principe de l'analyse canonique

Le principe de l'analyse canonique consiste à simplifier la relation générale du modèle du second degré en éliminant les termes rectangles. Cela permet d'obtenir un modèle simple et avec des variables sans interactions. Ainsi l'analyse sera basée simplement sur les valeurs propres et pourra être conduite séparément pour chacune des nouvelles variables.

Il existe deux types d'analyse canonique (R et RT) selon la position du sommet S de la conique par rapport au domaine d'étude.

❖ Analyse canonique R (Rotation)

L'analyse canonique R consiste à faire une rotation des axes de référence autour de l'origine O pour les mettre en coïncidence ou en parallèle avec les axes de la conique. Le passage des coordonnées z_i d'un point dans le nouveau repère R , aux coordonnées x_i dans le repère initial est assuré par la matrice des vecteurs propres M . Cette matrice est diagonale et ses éléments sont les composantes des vecteurs propres

$$\begin{bmatrix} x_1 \\ x_2 \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} z_1 \\ z_2 \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad M \begin{bmatrix} m_{11} & m_{21} \\ m_{12} & m_{22} \end{bmatrix}$$

Dans le cas général $\underline{x}_k = M \underline{z}_k$

\underline{z}_k : Le vecteur des coordonnées d'un point dans le nouveau repère R

En remplaçant \underline{x}_k dans l'équation générale du modèle, l'expression de la surface de réponse dans le nouveau repère R devient

$$y = a_0 + \underline{z}_k^t M^t \underline{a}_k + \underline{z}_k^t M^t AM \underline{z}_k$$

$M^t AM$: est une matrice diagonale dont les éléments diagonaux sont les valeurs propres.

$M^t \underline{a}_k$: est le nouveau vecteur des coefficients des termes du premier degré.

L'analyse canonique R est conduite suivant les axes R_i du nouveau repère. Elle est basée sur l'examen des valeurs propres (signes et valeur relatives) et des vecteurs propres (orientation).

❖ Analyse canonique RT (Rotation, Translation)

L'analyse canonique RT ne peut se faire que si le centre S de la conique se trouve dans le domaine d'étude. Il faut donc déterminer au préalable la position de ce point en déterminant ses coordonnées \underline{x}_S (z_S dans R) ou la distance D_S qui le sépare de l'origine O .

Dans l'analyse RT la rotation précédente est complétée par une translation qui amène le centre de référence O à l'emplacement du centre S de la conique.

On passe des coordonnées w_i dans le nouveau repère RT au coordonnées z_i dans le repère R par la relation : $z_k = w_k + z_S$

\underline{w}_k : est le vecteur des coordonnées d'un point dans le nouveau repère RT

En remplaçant \underline{z}_k dans l'équation du modèle, l'expression de la surface de réponse dans le nouveau repère RT devient : $y = y_S + \underline{w}_k^t M^t AM \underline{w}_k$

y_S : est la valeur de la réponse au centre de la conique

$M'AM$: est la même matrice que dans R

C est une expression avec les termes carrés seulement, les termes du premier degré sont éliminés.

Les axes et le centre du repère RT coïncident avec ceux de la conique. L'analyse se fera suivant ces axes avec le même raisonnement que pour l'analyse R .

Ainsi, l'analyse canonique permet d'imaginer la forme de la surface de réponse et l'importance de ses courbures pour des dimensions inaccessibles à la méthode graphique.

IV.C.4 Qualité du modèle et transmission des erreurs

IV.C.4.1 Calcul des coefficients du modèle par la régression multilinéaire

Les réponses mesurées par l'expérimentateur sont entachées d'une erreur expérimentale dont il faut tenir compte lors de la modélisation. Ainsi la réponse y_i en un point expérimental i quelconque est modélisée par la relation :

$$y_i = a_0 + a_1 x_{1,i} + a_2 x_{2,i} + a_{12} x_{1,i} x_{2,i} + a_{11} x_{1,i}^2 + a_{12} x_{2,i}^2 + e_i$$

e_i : résidu (écart) au point i qui réunit l'erreur d'ajustement Δ et l'erreur expérimentale (du à la variabilité naturelle) ε

Pour l'ensemble des n expériences du plan réalisé, on obtient un système de n équations à $n + p$ inconnus qui s'écrit sous la forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} y_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ y_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & x_{1,i} & x_{2,i} & x_{1,i} \cdot x_{2,i} & x_{1,i}^2 & x_{2,i}^2 \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ 1 & x_{1,n} & x_{2,n} & x_{1,n} \cdot x_{2,n} & x_{1,n}^2 & x_{2,n}^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_0 \\ a_1 \\ a_2 \\ a_{12} \\ a_{11} \\ a_{22} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} e_1 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ e_n \end{bmatrix}$$

La forme condensée : $\underline{y} = X\underline{a} + \underline{e}$

\underline{e} : est la matrice des résidus (écarts)

La régression multilinéaire apporte les p équations qui manquent. L'objectif est de trouver les p coefficients qui résolvent le mieux possible le système d'équations. On cherche les coefficients qui minimisent la somme des carrés des écarts $\underline{e}'\underline{e}$. Cela se traduit

par la relation : $\frac{\partial \underline{e}'\underline{e}}{\partial \underline{a}} = 0$

Pour trouver les coefficients du modèle, il suffit de résoudre le système :

$$\begin{cases} \underline{y} = X\underline{a} + \underline{e} \\ \frac{\partial \underline{e}'\underline{e}}{\partial \underline{a}} = 0 \end{cases}$$

La solution est : $\hat{\underline{a}} = (X'X)^{-1} X' \underline{y}$

$\hat{\underline{a}}$: est le vecteur des coefficients du modèle, calculés sous l'hypothèse des moindres carrés.

$X'X$: est la matrice d'information.

$(X'X)^{-1}$: est la matrice de dispersion

Les réponses calculées par le modèle sont appelées les réponses prédites \hat{y}

IV.C.4.2 Evaluation de la qualité du modèle mathématique

Le modèle mathématique obtenu doit être le plus proche de la loi réelle du comportement du système étudié. Pour cela il doit expliquer au mieux les résultats obtenus au cours des essais. Cela signifie que l'erreur d'adéquation (d'ajustement) du modèle doit être la plus faible possible, soit de l'ordre de grandeur de l'erreur expérimentale.

Plusieurs techniques sont utilisées pour évaluer la qualité ou le manque d'ajustement du modèle.

La méthode graphique est basée sur l'examen visuel et la comparaison des courbes expérimentales avec les courbes théoriques des modèles.

La méthode du F de Fisher est la plus utilisée. L'importance du manque d'ajustement est évaluée en calculant le rapport F de la variance des écarts d'ajustement à la variance de l'erreur expérimentale. Le modèle sera d'autant plus adéquat que ce rapport F est faible. A côté de ce rapport, les logiciels de calcul indiquent la probabilité que la variance d'ajustement soit négligeable devant la variance de la variabilité naturelle.

L'analyse des résidus permet aussi de tirer des informations très concluantes.

Une autre méthode consiste à faire une évaluation globale de l'ajustement. Le principe est de chercher si le modèle explique bien l'ensemble des résultats. Pour cela on calcule le rapport R^2 défini par :

$$R^2 = \frac{(\underline{\hat{y}}' \underline{\hat{y}} - \bar{y}' \bar{y})}{(\underline{y}' \underline{y} - \bar{y}' \bar{y})} \quad \text{avec :}$$

$\underline{\hat{y}}' \underline{\hat{y}}$: La somme des carrés des réponses prédites aux points expérimentaux $\underline{\hat{y}} = X \underline{\hat{a}}$

$\bar{y}' \bar{y}$: La somme des carrés de la moyenne

$\underline{y}' \underline{y}$: La somme des carrés des réponses mesurées

Le numérateur correspond à la partie de la variance de la réponse expliquée par le modèle. Le dénominateur correspond à la variance totale de la réponse observée.

Plus le R^2 est proche de 1, plus le modèle est proche d'expliquer la totalité de la variance observée, et plus le manque d'ajustement est négligeable (faible).

Si le modèle est jugé inadéquat, un autre modèle doit être adopté. Le modèle jugé adéquat, doit être validé.

IV.C.4.3 Transmission des erreurs

La qualité d'un travail de modélisation se reflète en grande partie par la qualité des prévisions qu'il permet de faire. Il est donc très important d'évaluer la précision du modèle obtenu.

a. Précision sur les coefficients

Les variances des coefficients $\underline{\hat{a}}$ du modèle, calculés par la méthode des moindres carrés sont données par la relation : $Diag V(\underline{\hat{a}}) = \sigma_r^2 Diag (X' X)^{-1}$ avec :

$Diag V(\underline{\hat{a}})$: est la diagonale principale de la matrice des variances des coefficients. Les éléments de cette diagonale sont les variances des coefficients $\underline{\hat{a}}$ du modèle.

$Diag (X' X)^{-1}$: est la diagonale de la matrice de dispersion $(X' X)^{-1}$

σ_r^2 : est la variance des résidus.

Cette relation montre que l'erreur induite sur les coefficients dépend de l'erreur commise sur la réponse mesurée (à travers σ_r^2), de l'emplacement des points expérimentaux dans le domaine d'étude (à travers X) et du modèle mathématique choisi (à travers X et σ_r^2).

b. Précision sur les réponses prédites

La réponse prédite \hat{y}_p en un point p quelconque du domaine expérimental est donné par la relation $\hat{y}_p = \underline{x}_p' \hat{a}$ avec :

\underline{x}_p : est le vecteur modélisé du point p . Il dépend des coordonnées du point p et du modèle choisi. ($\underline{x}_p' = [1 \quad x_{1,p} \quad x_{2,p} \quad x_{1,p}x_{2,p} \quad x_{1,p}^2 \quad x_{2,p}^2]$)

L'incertitude sur les coefficients se transmet à la réponse calculée par la relation :

$$V(\hat{y}_p) = V(\underline{x}_p' \hat{a}) \quad \text{d'où on obtient la variance de la réponse calculée :}$$

$$V(\hat{y}_p) = \sigma_r^2 \underline{x}_p' (X'X)^{-1} \underline{x}_p$$

Cette relation permet de calculer l'incertitude sur la réponse prédite en n'importe quel point p du domaine d'étude. Cette incertitude dépend de l'erreur expérimentale sur la réponse mesurée (à travers σ_r^2), de la position du point p dans le domaine d'étude (à travers le vecteur \underline{x}_p), de l'ensemble des points expérimentaux, c'est à dire du plan d'expériences (à travers la matrice X) et du modèle choisi (à travers la matrice X , le vecteur \underline{x}_p et le terme σ_r^2)

Pour montrer la part de la théorie (le choix du plan et du modèle) dans cette erreur, on définit la fonction erreur de prédiction $d^2(\hat{y}_p)$:

$$d^2(\hat{y}_p) = \frac{\sigma^2(\hat{y}_p)}{\sigma_r^2} \Rightarrow d^2(\hat{y}_p) = \underline{x}_p' (X'X)^{-1} \underline{x}_p$$

La racine carrée de $d^2(\hat{y}_p)$ donne la fonction d'erreur de prédiction $d(\hat{y}_p)$

$$d(\hat{y}_p) = \frac{\sigma(\hat{y}_p)}{\sigma_r} \Rightarrow d(\hat{y}_p) = [\underline{x}_p' (X'X)^{-1} \underline{x}_p]^{1/2}$$

La fonction $d(\hat{y}_p)$ est le rapport de l'écart type de la réponse prédite à l'écart type des résidus. Elle est indépendante des résultats de l'expérience, elle dépend essentiellement de l'emplacement des points expérimentaux dans le domaine d'étude, et du modèle choisi a priori. Elle permet de calculer l'erreur de prédiction dans tout le domaine expérimental. Sa valeur change en fonction du point pour lequel on calcule la réponse prédite.

Par cette fonction, on peut savoir avant de commencer l'expérimentation, comment la précision des réponses prédites sera affectée par le choix de l'emplacement des points expérimentaux (le plan d'expériences) et du choix du modèle.

Si le modèle est bien ajusté, l'écart type des résidus se confond avec l'erreur expérimentale, et on aura $d(\hat{y}_p) = \frac{\sigma(y_{prédite})}{\sigma(y_{mesurée})}$

En comparant la valeur de $d(\hat{y}_p)$ à 1, on pourra savoir au préalable si les réponses prédites seront obtenues avec une meilleure, une semblable ou une pire précision que la réponse mesurée. Elle indique donc la perte ou le gain de précision de la réponse prédite par rapport à la réponse mesurée.

IV.C.5 Les critères d'optimalité

Le modèle mathématique choisi à priori doit être le plus proche possible du modèle réelle. Un bon plan d'expériences est un plan qui permettra d'obtenir de bonnes qualités prédictives du modèle obtenu. La règle est d'obtenir une erreur sur la réponse prédite qui soit de l'ordre de grandeur de l'erreur sur la réponse mesurée ; c'est à dire une fonction erreur de prédiction inférieure à 1 :

$$\left[\underline{x}_p^t (X^t X)^{-1} \underline{x}_p \right]^{1/2} \leq 1$$

En excluant la position du point où on veut calculer l'erreur de prédiction, la fonction $d(\hat{y}_p)$ dépendra essentiellement de la matrice $(X^t X)^{-1}$. Cette matrice est indépendante de l'expérience, il est donc possible de connaître à l'avance les propriétés prédictives du modèle à obtenir. D'un autre côté, la matrice $(X^t X)^{-1}$ ne dépend que du couple modèle-plan, on peut donc au préalable orienter le choix de la disposition des points expérimentaux (le plan) de façon à ce que le modèle calculé répond au critère de qualité (optimalité) désiré.

Certains critères d'optimalité s'intéressent à la répartition de la variance de la réponse prédite dans le domaine d'étude, en particulier :

- ◆ Le critère d'isovariance par rotation (Rotatability):

Il est respecté si l'erreur de prédiction est la même pour des points situés à égale distance

ρ ($\rho_p^2 = \sum_{i=1}^{i=k} x_{i,p}^2$) du centre du domaine d'étude. Cela veut dire que la fonction $d(\hat{y}_p)$ doit être l'équation d'un cercle, une sphère ou une hypersphère. Elle doit donc être une fonction de la distance ρ du point courant au centre du domaine d'étude.

- ◆ La variance uniforme

Il y a variance uniforme dans une zone expérimentale, lorsque les variations de l'erreur de prédiction sont presque nulles sur une grande partie du domaine d'étude.

D'autres critères s'intéressent à la qualité prédictive du modèle en se basant sur la précision de ces coefficients, en particulier :

- ◆ Critère de A-Optimalité (Average variance of parameters)

Ce critère vise à minimiser la somme des variances des coefficients du modèle. Sachant que les variances des coefficients sont les éléments de $Diag V(\hat{a})$ et que

$Diag V(\hat{a}) = \sigma_r^2 Diag (X^t X)^{-1}$, un plan sera A-Optimal si la trace (la somme des éléments diagonaux) de la matrice de dispersion $(X^t X)^{-1}$ est minimale.

- ◆ Critère de D-Optimalité

Plus le déterminant de la matrice d'information $X^t X$ est grand, plus les éléments de la matrice de dispersion $(X^t X)^{-1}$ sont faibles, plus les variances des coefficients du modèle sont faibles aussi.

Le critère de D-Optimalité correspond à la disposition des points expérimentaux qui maximise le déterminant de la matrice d'information $X^t X$ et donc minimise la variance globale de tous les coefficients du modèle.

- ◆ Critère de G-Optimalité (General variance)

Ce critère cherche à minimiser la valeur de la plus grande variance des coefficients du modèle.

- ◆ Critère de O-Optimalité (Orthogonalité)

Un plan est orthogonal vis à vis du modèle postulé si la matrice de calcul X est orthogonale. La matrice X est orthogonale si la matrice d'information $X^t X$ est diagonale.

Dans ce cas, la matrice de dispersion $(X^T X)^{-1}$ est aussi diagonale. Cette disposition permet de faciliter les calculs, et d'obtenir un modèle avec des coefficients non corrélés, et calculés avec la meilleure précision possible. La construction de ces plans est facilitée par l'existence de tables et plans orthogonaux préétablis.

Lorsque l'orthogonalité est respectée, tous les autres critères le sont simultanément (sauf parfois l'isovariance par rotation).

Les plans orthogonaux les plus utilisés sont les plans factoriels à deux niveaux (complets ou fractionnaires) [107], les plans de Plackett Burman, et les tables de Taguchi [105]. Les modèles postulés dans ces cas sont toujours du premier degré.

◆ Critère de presque Orthogonalité

Avec les modèles du second degré, il est impossible de satisfaire le critère d'orthogonalité, car la matrice d'information $X^T X$ ne peut jamais être parfaitement diagonale. Dans ce cas, on vise la sous matrice obtenue en éliminant la première ligne et la première colonne de la matrice $X^T X$. Le critère de presque orthogonalité est respecté si cette sous matrice est diagonale.

IV.C.6 Les plans optimaux

IV.C.6.1 Les plans composites

Les plans composites présentent l'avantage de se prêter au déroulement séquentiel d'une étude. On démarre par un modèle du premier degré et un plan factoriel à deux niveaux complété par des essais de validation au centre du domaine. Si le modèle est valide on achève l'étude sinon on entreprend des essais supplémentaires pour établir un modèle d'ordre 2. Ces essais sont constitués d'un plan en étoile et de nouveaux points centraux. Ainsi, les plans composites présentent trois parties :

- Le plan factoriel, complet ou fractionnaire, à deux niveaux avec n_f essais

- Le plan en étoile comprenant n_α essais. Les points expérimentaux sont situés sur les axes des facteurs, généralement à égale distance α (en coordonnées centrées réduites) du centre. Le choix de cette distance est lié à des considérations expérimentales dictées essentiellement par les limites du domaine d'étude, et des conditions théoriques suivant le critère d'optimalité à respecter. Pour l'isovariance par rotation la distance doit être $\alpha = \sqrt[4]{n_f}$

Ainsi, suivant la position de ces points en étoile, on distingue les plans centraux composites à face centrée CCF ($\alpha = 1$), composites extérieurs CCE ($\alpha > 1$) et composites intérieurs CCI ($\alpha < 1$).

Pour chaque facteur le nombre de niveaux est donc égale à 5 ($-\alpha, -1, 0, +1, +\alpha$) sauf dans le cas des plans CCI où il est égal à 3.

- Les essais au centre au nombre n_0 , sont répartis sur les deux séquences. Ils servent à tester la validité du modèle du premier degré, et s'assurer qu'il n'y a pas de glissement entre les deux séries d'essais. Ils permettent aussi d'obtenir une estimation de l'erreur expérimentale et de réduire l'erreur de prédiction au centre. Pour certains critères d'optimalité (presque orthogonalité), le nombre de ces points intervient dans la fixation de α .

Avec ces trois parties, le nombre total d'essais des plans composites est $n = n_f + n_0 + n_\alpha$.

IV.C.6.2 Plans de Box Behnken

Ces plans ont été proposés par Box et Behnken en 1960 [106]. Tous les facteurs ont trois niveaux $-1, 0, +1$. Le principe de construction de ces plans est le suivant : deux facteurs décrivent un carré (4 essais d'un plan factoriel), les coordonnées correspondantes des autres facteurs valent 0. Cette disposition permet de placer les points expérimentaux à égales distances du centre du domaine d'étude (sur une sphère ou une hypersphère). On ajoute toujours des points expérimentaux au centre. Ainsi le plan de Box Behnken à trois facteurs comporte $12+3$ essais dont trois au centre. Le plan à 4 facteurs comprend $24+3$ essais, celui à 5 facteurs $40+6$ essais. Ces plans ont de bonnes propriétés prédictives, mais surtout ils permettent de faire une étude séquentielle des facteurs. Ainsi pour 4 facteurs, on peut commencer par l'étude de 3 facteurs avec les 15 essais du plan à 3 facteurs, en maintenant le quatrième au niveau 0. Ensuite si on veut étudier ce dernier, on complète par les 12 essais restants du plan à 4 facteurs, plus quelques essais supplémentaires au centre.

IV.C.6.3 Les plans D-Optimaux

La construction de ces plans est basée sur le critère de D-Optimalité qui cherche à maximiser le déterminant de la matrice d'information $X'X$.

Les plans D-Optimaux s'appliquent souvent lorsque l'expérimentation est soumise à des contraintes qui interdisent l'accès à certaines régions du domaine d'étude. Ils présentent aussi l'avantage de pouvoir diminuer le nombre des essais d'un plan classique, en choisissant dès le départ le nombre d'essais à réaliser.

Le principe consiste à choisir parmi un grand nombre (n_c) de points expérimentaux les (n) points qui donnent le déterminant maximale de la matrice $X'X$. Ce choix est réalisé par des algorithmes spéciaux basés sur l'échange de points.

Ainsi, on commence par définir un nombre élevé (n_c) de points expérimentaux candidats qui pourraient être inclus dans le plan final, et qui tiennent compte des contraintes de l'étude. On choisit en suite le modèle mathématique à priori, et on définit le nombre (n) d'essais que l'on désire réaliser. Enfin par le biais de l'algorithme d'échange, on détermine les (n) points expérimentaux qui donnent le déterminant le plus élevé de la matrice $X'X$. Ces points constituent le plan D-Optimal à réaliser.

IV.C.6.3 Les plans de Doehlert

Ces plans ont été proposés par David H. Doehlert en 1970 [106]. Les points expérimentaux sont simplement répartis de façon à remplir d'une manière uniforme l'espace expérimental, sans choisir un modèle à priori ou chercher à respecter un critère d'optimalité donné. Cette disposition donne la possibilité d'étendre le plan vers n'importe quelle direction en ajoutant de nouveaux points régulièrement répartis. Cela permet d'étaler le champ d'investigation dans le domaine d'étude.

Ainsi, pour deux facteurs, le plan comporte un point au centre et six points disposés sur un hexagone régulier. Si on veut étendre le plan, il suffit d'ajouter trois points expérimentaux pour former un nouveau plan de Doehlert.

Ces plans se prêtent aussi à l'étude séquentielle des facteurs en prenant juste la précaution de maintenir les facteurs non étudiés au départ, au niveau 0.

Le nombre total d'essais pour un plan à k facteurs, sans compter les essais au centre est $n = k(k + 1)$

IV. D. Les plans de mélanges

Les plans de mélanges entrent dans un cadre différent de celui des plans de criblage utilisés en stratégie (Q), ou ceux de modélisation utilisés en stratégie (P). Ce sont des plans particuliers adaptés aux facteurs dépendants. Ils sont surtout utilisés pour étudier l'influence des proportions (x_i) des constituants (i) d'un mélange sur une ou plusieurs propriétés (y) de ces derniers. La somme de l'ensemble de ces proportions étant égale à 1 $\left(\sum_i^k x_i = 1\right)$, la modification de la proportion d'un seul constituant conduit à modifier au moins celle d'un autre. Cette contrainte est à l'origine de la particularité de ce genre de plans et de leur modélisation.

IV. D. 1 Modèles mathématiques

L'objectif est de traduire la variation d'une propriété y (la réponse) du mélange en fonction des teneurs (x_i) de ses différents constituants, sachant que $\left(\sum_i^k x_i = 1\right)$. Les modèles mathématiques utilisés sont des polynômes qui peuvent être du 1^{er}, du 2^{ème} ou même du 3^{ème} degré. Pour un mélange à k constituants, ces modèles s'écrivent :

◆ Modèle du 1^{er} degré : $y = a_1x_1 + a_2x_2 + \dots + a_kx_k$

◆ Modèle du 2^{ème} degré :-

$$x_i^2 = x_i \left(1 - \sum_{j \neq i} x_j \right) : y = a_1x_1 + a_2x_2 + \dots + a_kx_k + \sum_{i>j} a_{ij}x_ix_j$$

◆ Modèle du 3^{ème} degré:

$$y = \sum_i a_i x_i + \sum_{i<j} a_{ij} x_i x_j + \sum_{i<j} \alpha_{ij} x_i x_j (x_i - x_j) + \sum_{i<j<k} a_{ijk} x_i x_j x_k$$

Le modèle réduit du 3^{ème} degré :

$$y = \sum_i a_i x_i + \sum_{i>j} a_{ij} x_i x_j + \sum_{i<j<k} a_{ijk} x_i x_j x_k$$

IV. D. 2 Les différents types de plans de mélanges

Les plans de mélanges sont des plans optimaux qui permettent de choisir les mélanges à tester, de façon à obtenir une meilleure estimation des coefficients du modèle [108].

Il existe plusieurs types de plans de mélanges selon les contraintes auxquelles sont soumises les teneurs (x_i) des différents constituants:

➤ Le type I est utilisé lorsqu'il n'y a pas de contraintes particulières sur les x_i sauf $\sum x_i = 1$

➤ Le type II correspond au cas où les x_i ont des limites inférieures (l_i) telles que $x_i \geq l_i$. Cette situation apparaît lorsque pour différentes raisons la teneur x_i du constituant i doit être supérieure à une teneur minimale l_i .

➤ Le type III plus complexe et moins fréquent, est destiné au cas où les x_i ont une borne inférieure (l_i) et une borne supérieure (μ_i) telles que $l_i \leq x_i \leq \mu_i$. C'est le cas où le constituant i doit être présent avec une teneur suffisante mais sans dépasser un certain seuil pour des raisons de coût, d'effet inverse ou autres.

➤ Le type IV correspond à la contrainte $\sum_{i=2}^k x_i \ll x_1$, c'est le cas des solutions où

le constituant 1 est le solvant, et les autres constituants $i \neq 1$ sont les solutés présents en faibles concentrations et soumis à la contrainte $l_i \leq x_i \leq \mu_i$. Pour ce type, certaines propositions permettent de traiter les x_i comme des facteurs indépendants, ce qui permet d'utiliser les plans classiques. D'autres types de contraintes peuvent survenir selon le problème étudié.

Certaines situations nécessitent le couplage d'un plan de mélange avec un plan factoriel classique pour donner ce qui est appelé un plan mixte [108]. C'est le cas où en plus de l'étude de la composition du mélange, on désire remplacer certains constituants par d'autres ou étudier l'influence d'un facteur classique de fabrication de conditionnement telles que la température et pressions.

V. Préparation des produits argileux et application comme viscosifiants

Introduction

Le travail entrepris dans cette étude entre dans le cadre général de la valorisation des matériaux non ferreux, en l'occurrence, la bentonite. Le domaine d'application visé est celui des fluides de forage. L'objectif est de porter des modifications à cette argile afin d'obtenir des produits viscosifiants de meilleures performances et d'utilisations plus diversifiées dans ces fluides.

Ces modifications sont essentiellement des traitements de purification et d'intercalation. L'intérêt est porté sur trois produits : la montmorillonite sodique (Mont-Na), l'argile organophile (AO), et l'argile hydrophile modifiée (AHM). Selon leur nature, ces produits sont testés dans des boues à base d'eau ou de gasoil.

Pour chacun de ces produits, les paramètres rhéologiques de la boue formulée, sont étudiés et modélisés en fonction des facteurs retenus, en utilisant la méthode des plans d'expériences. Le but est d'explorer les performances de ces produits afin de les mettre en valeurs, puis de prévoir leur comportement suivant la variation des facteurs étudiés. Les propriétés rhéologiques choisies sont des indices permettant d'évaluer la capacité du fluide à accomplir ses tâches et à répondre à certaines exigences du forage.

Ainsi, le travail expérimental comporte deux parties principales : la préparation des produits argileux et les tests de rhéologie des boues formulées.

V.A. Préparation des produits argileux

V.A.1 produits et appareillage

❖ Produit et réactifs

- Bentonite brute (des gisements de Maghnia) -Chlorure de Sodium (NaCl)
- Eau distillée -Hydroxyde de Sodium (NaOH) -Trichlorure d'Aluminium (AlCl₃)
- Tensioactif cationique (C₁₄-C₂₀) -Film d'acétate de cellulose.

❖ Appareils

- Verrerie usuelle -Agitateurs mécanique et magnétique -Tiges d'agitation métalliques et en verre -Pipette « Robinson Kohn » -Centrifugeuse
- Pompe péristaltique -Pompe à vide -Etuve -Broyeur.

V.A.2 La montmorillonite sodique (Mont-Na)

Le produit brut utilisé est de la bentonite blanche issue des gisements de Maghnia, aimablement fournie par le directeur de l'unité ENOF de Maghnia.

La montmorillonite sodique est obtenue par traitement de purification et d'homoionisation sodique de cette argile, réalisé selon les étapes suivantes :

➤ **Dispersion et homoionisation sodique :**

Pour une élimination préliminaire des impuretés caillouteuses et une bonne dispersion de l'argile, une masse de 500g de bentonite est mise dans 4L d'eau distillée et agitée pendant 8h, puis mise à décanter dans des éprouvettes de 2L. Le surnageant est ensuite remplacé par une solution 1N de NaCl et la fraction lourde au bas de des éprouvettes est éliminée. La suspension est remise à l'agitation pendant 4h. L'homoionisation sodique (Na⁺) est ainsi réalisée en répétant l'opération quatre fois pour permettre un échange complet.

➤ **Récupération de la fraction $\varnothing < 2\mu\text{m}$:**

Après le quatrième lavage, le surnageant est remplacé par de l'eau distillée, et la suspension est remise en agitation. L'opération est répétée jusqu'à élimination totale de l'électrolyte en excès, ce qui se traduit par une séparation difficile de l'argile de la phase aqueuse. La suspension est ensuite diluée jusqu'à 1% et mise dans des éprouvettes de 2L pour la récupération de la fraction $\varnothing < 2\mu\text{m}$. Cette étape est la plus déterminante dans la procédure de purification, car elle permet la collecte du minéral argileux montmorillonite débarrassé des impuretés cristallines (quartz, feldspath, ...).

La procédure est basée sur un fractionnement granulométrique par sédimentation dont la vitesse des différentes fractions de particules à une température donnée, est déterminée par la loi de Stocks. On peut donc connaître la distance parcourue par une fraction ciblée après un temps de sédimentation fixé. A 20°C, après 8h de repos une distance de 10cm est parcourue par la fraction $\varnothing = 2\mu\text{m}$. Le siphonnage du volume de la suspension au dessus de cette profondeur permet la récupération de la fraction $\varnothing < 2\mu\text{m}$. L'opération est réalisée à l'aide d'une pipette « Robinson Kohn » dotée d'orifices latéraux permettant l'aspiration horizontale de la suspension (voir annexe). La démarche est répétée jusqu'à l'épuisement de toute la quantité du minéral argileux.

➤ **Séparation de la Mont-Na :**

Le solide est récupéré de la phase aqueuse par centrifugation, puis soumis à la dialyse à travers un film d'acétate de cellulose pour l'élimination des sels résiduels. On obtient ainsi

de la montmorillonite sodique (Mont-Na) à un degré élevé de pureté. Elle est mise au séchage à l'étuve pendant 72h à 40°C, puis broyée.

Ce produit constitue la matière première pour la préparation de l'argile organophile (AO) et l'argile hydrophile modifiée (AHM).

V.A.3 L'argile organophile (AO)

L'argile organophile AO est obtenue par le traitement d'une suspension aqueuse de Mont-Na à faible pourcentage avec une solution du tensioactif cationique utilisé. Les quantités sont calculées de façon à avoir un rapport précis de mmoles de tensioactif par gramme de Mont-Na. La suspension de tensioactif est ajoutée à faible débit par le biais de la pompe péristaltique, et sous forte agitation de la suspension argileuse. Le mélange est laissé encore à l'agitation pendant 6h pour assurer un échange cationique complet. En effet, le processus est basé sur un échange cationique où le tensioactif avec sa longue chaîne hydrocarbonée ira remplacer les cations Na^+ et les molécules d'eau dans l'espace interfolier de la mont-Na.

Immédiatement après l'arrêt de l'agitation, le solide se sépare spontanément de la phase aqueuse, ce qui montre son caractère organophile.

L'argile organophile est récupérée et lavée par filtration sous vide puis séchée et broyée.

V.A.4 L'argile hydrophile modifiée AHM

L'idée d'utiliser un tel produit dans les boues de forage est inspirée du fluide MMH-Bentonite. L'objectif est de formuler une boue présentant un caractère très rhéofluidifiant (YP élevée, PV faible) et des propriétés rhéologiques proches de celles de ce fluide présenté comme étant des plus performants.

La préparation de ce produit consiste à insérer des espèces polyhydroxialuminiques dans l'espace interfolier de la montmorillonite. Cela est basé sur un échange cationique entre la solution polymérique d'aluminium et la suspension argileuse. Ainsi la confection de ce produit comprend deux étapes principales : la préparation de la solution polymérique en premier, puis l'intercalation du minéral argileux.

➤ Préparation de la solution polyhydroxialuminique

La solution intercalante est obtenue par titrage d'une solution diluée de $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ avec une solution de NaOH. L'ajout est réalisé à très faible débit et sous forte agitation du mélange. Cela est fait pour éviter la formation du précipité $\text{Al}(\text{OH})_3$ par suralcalinité locale. L'agitation est réalisée par un agitateur mécanique muni d'une tige en verre pour éviter toute interaction.

Les paramètres opératoires suivants, ont un rôle déterminant dans la formation des espèces polycationiques :

- . La concentration finale en Aluminium $[\text{Al}]_F$
- . Le rapport OH /Al
- . Le temps de vieillissement de la solution après dosage

➤ Intercalation de la Mont-Na :

L'intercalation est typiquement initiée par un échange cationique entre la solution polyhydroxialuminique préparée et la montmorillonite en suspension. Cet échange permettra l'insertion de l'espèce polycationique dans l'espace interfolier du minéral en remplaçant les cations Na^+ . Pratiquement, cela est réalisé par l'ajout à faible débit de la solution polymérique d'aluminium à une suspension bien dispersée de Mont-Na, sous forte agitation. Les proportions sont calculées de façon à avoir un rapport précis de mmoles

d'aluminium par gramme d'argile. Après titrage, le mélange est laissé à l'agitation pour compléter l'échange. Le solide est ensuite récupéré de la suspension floculée et lavé par filtration sous vide. Il présente un aspect pâteux.

Pour la synthèse du produit AHM, les conditions opératoires adoptées sont celles optimisées dans les travaux antérieurs de H. Khalaf [96]. En deuxième lieu, certains de ces paramètres ont été variés pour étudier l'influence des conditions de synthèse sur certaines propriétés rhéologiques de la boue formulée.

V.A.5 Techniques de caractérisation

V.A.5.1 Diffraction de rayons X (DRX)

La diffraction de rayon X est une technique d'analyse propre aux produits cristallins. Pour ce genre de composés, elle fournit des renseignements importants sur l'identité minéralogique (quartz, calcite...), ainsi que la forme cristalline (dimensions de la maille, position des atomes, ...). Elle permet même la détermination quantitative des différentes phases minéralogiques.

Les échantillons analysés par cette technique sont ceux des produits : la bentonite brute, la Mont-Na, l'argile organophile et le produit AHM.

Pour les deux premiers, la comparaison des diffractogrammes permet d'évaluer la validité de la procédure de purification et d'homogénéisation. Par contre, la détermination de la distance basale d_{001} des trois derniers échantillons permet de dire si oui ou non, il y a eu insertion des espèces désirées dans l'espace interlamellaire de la montmorillonite. Cette distance est déterminée par la loi de Bragg : $\lambda = 2d \sin \theta$

➤ **Appareillage**

L'appareil utilisé est un diffractomètre de poudre de marque PHILIPS PW1710

Les conditions opératoires sont : un tube de rayon X avec anticathode en cuivre et filtre de Nickel (Radiation $\lambda_{\text{CuK}\alpha} = 1.54 \text{ \AA}$), une tension de 45 kV et une intensité de 35 mA. Il est piloté par micro-ordinateur doté du logiciel SEIMENS / BRUCKER EVA version 6.0 pour l'acquisition et l'exploitation des résultats.

La plage 2θ balayée est de 2° à 60°

➤ **Préparation des échantillons**

En suspension très diluée, la montmorillonite a tendance à sédimenter suivant une direction perpendiculaire aux plans basaux des feuillets, mettant ces derniers en positions parallèles. Cette caractéristique est mise à profit pour la préparation des échantillons pour l'analyse DRX des produits Mont-Na et AHM ; c'est la méthode des agrégats orientés. Elle permet d'avoir une plus grande intensité des pics relatifs à la distance basale d_{001} . La méthode consiste à étaler quelques gouttes d'une suspension à 1% du produit sur des lames en verre. Après séchage à température ambiante et à l'abri des perturbations, on obtient une pellicule d'épaisseur uniforme collée à la lame.

Pour la bentonite brute et l'argile organophile on utilise des échantillons en poudre finement broyée.

V.A.5.2 Spectrophotométrie infrarouge

La spectrophotométrie infrarouge est une technique d'analyse très fine qui permet de recueillir des informations très importantes sur les énergies de liaison des atomes ou encore la position et les énergies de liaison des protons au squelette.

L'infrarouge analytique s'intéresse à l'étude des spectres d'absorption dans le domaine $10.000\text{cm}^{-1} < \bar{\nu} < 10\text{ cm}^{-1}$. La partie la plus accessible et la plus riche en informations est celle du moyen infrarouge $4.000\text{cm}^{-1} < \bar{\nu} < 400\text{cm}^{-1}$. Elle correspond au domaine des états d'énergie vibrationnelle et rotationnelle, qui constituent de véritables empreintes des liaisons.

Cette technique est parfaitement complémentaire de la précédente (DRX). Pour les produits Mont-Na et l'argile organophile AO, l'étude de l'évolution du spectre infrarouge, avant et après modification, permet d'identifier la nature des espèces présentes dans l'espace interfolier.

L'utilisation d'un spectrophotomètre à transformée de Fourier (FTIR) permet un meilleur affinement des spectres obtenus.

➤ **Appareillage**

L'appareil utilisé est un spectrophotomètre à transformé de Fourier de marque Hattson type Genesis II. Il est équipé d'un détecteur sulfate trigliaire (DTGS) à température stabilisée. L'appareil est piloté par micro-ordinateur muni d'un logiciel spécialisé pour l'acquisition et le traitement des résultats.

La plage balayée : $4.000\text{cm}^{-1} < \bar{\nu} < 400\text{cm}^{-1}$.

➤ **Préparation des échantillons**

Les produits analysés sont la Mont-Na, l'argile organophile et le tensioactif cationique utilisé. La préparation des échantillons consiste à mélanger 1mg du produit solide, sec et finement broyé, avec 250mg de KBr pur séché à 105 °C. Le mélange est broyé puis compressé sous vide à température ambiante, à l'aide d'une pastilleuse prévue pour cet effet. On obtient ainsi des pastilles solides et transparentes prêtes pour l'analyse.

V.B. Formulation des boues et tests de rhéologie

V.B.1 Produits et appareillage

❖ Produits et réactifs

- La montmorillonite sodique (Mont-Na) - L'argile organophile (AO)
- L'argile hydrophile modifiée (AHM) - Le VG 69 (viscosifiant MI)
- Le KRATONG (additif viscosifiant MI) - Eau du robinet - Eau distillée - Gasoil
- Chlorure de Calcium(CaCl_2) - La chaux éteinte ($\text{Ca}(\text{OH})_2$)
- Versamul, Versacoat (émulsifiants anioniques) - Versatrol (réducteur de filtrat)
- Barite (BaSO_4 alourdissant) -Hydroxyde de Sodium (NaOH)
- Indicateur coloré - EDTA - Carbonate de Sodium (Na_2CO_3)
- Hexametaphosphate de sodium (dispersant)

❖ Appareillage

- Agitateur mécanique Hamilton Beach - Densimètre à boue -Testeur d'émulsion
- Rhéomètre Fann + thermocup -Filtre presse API -Tamis de $75\mu\text{m}$
- Etuve rotative et cellule Haute température - Stéréopycnomètre

Ce sont des appareils standards propres au domaine des fluides de forage selon les normes API.

- Agitateur mécanique - Rhéomètre (Physica Rhéolab MC1)
- Etuve - Granulomètre Laser.

V.B.2 Protocole des testes de rhéologie

V.B.2.1 Mesures avec le rhéomètre Fann 35SA

a. Description de l'appareil

C'est un appareil de type rotatif à deux cylindres coaxiaux, entraîné par un moteur électrique. La boue se trouve dans l'espace annulaire entre les deux cylindres. Le cylindre extérieur (rotor) tourne à une vitesse constante. La rotation produit un couple de torsion dans la boue qui se transmet sur le cylindre intérieur (Bob). Un ressort de rappel (Spring) arrête le mouvement de ce cylindre. La tension sur le ressort est transmise à une aiguille liée à un cadran de lecture étalonné (voir annexe).

Ce genre d'instruments est fourni sur une large variété de modèle, essentiellement selon la gamme de vitesses de rotation réalisées.

L'appareil utilisé est le Fann 35 SA de Fann instruments. Il présente les caractéristiques suivantes :

- ✓ Moteur Synchrone(115V, 50Hz) à deux vitesses (High, low)
- ✓ Gamme de vitesse de rotation N : 3, 6, 100, 200, 300, 600 trs /min
($\dot{\gamma}$ respectivement 5.1,10.2, 170, 340, 510,1020 s^{-1}). Elles sont variées par le biais de l'interrupteur et du bouton moleté de changement de vitesse au-dessus de l'appareil.
- ✓ Gamme de viscosité : 1-30.000 cP
- ✓ Température maximale 200°F
- ✓ Cylindre extérieur (rotor):
 - Diamètre intérieur 36.83mm - longueur 87mm
 - Trait (repère) d'immersion 58.4 mm à partir du bas du cylindre
- ✓ Cylindre intérieur (Bob):
 - Diamètre 34.49mm - Longueur 38mm

✓ Constante de torsion du ressort (Spring) : 386 dyne.cm/ degré
Lors des tests, la boue est mise dans un récipient thermostaté (Thermocup), muni d'un thermomètre (en °F).

b. Protocole des mesures

Selon les normes API, la boue est assimilée à un fluide thixotrope obéissant au modèle de Bingham. Son comportement rhéologique est essentiellement caractérisé par la viscosité plastique (PV), la contrainte seuil (Yield point YP), ainsi que la résistance du gel et son évolution dans le temps.

Les tests se font comme suit :

On met la boue récemment agitée dans le thermocup, et on immerge les cylindres coaxiaux exactement jusqu'à la ligne de repère du rotor. On agite doucement jusqu'à atteindre la température désirée. On fait tourner le moteur à 600trs/min, on attend que l'aiguille se stabilise et on prend la lecture à 600trs/min. On fait passer la vitesse à 300trs/min, on attend la stabilité de l'aiguille, et on prend la lecture à cette vitesse. On suit la même démarche d'une manière descendante pour les autres vitesses 200, 100, 6, et 3trs/min.

Les constantes de l'appareil sont prévues de telle façon que les lectures sur le cadran correspondent aux contraintes de cisaillements exprimées en livre/100 pieds carrés (lbs/100ft²) et que la viscosité plastique PV (cP) et la yield point YP (lbs/100ft²) soient déterminées directement à partir des lectures à 600trs/min et 300trs/min.

Ainsi, selon ces normes on a :

$$PV (cP) = \text{lecture à (600trs/min)} - \text{lecture à (300trs/min)}$$

$$YP(\text{lbs}/100\text{ft}^2) = \text{lecture à (300trs/min)} - PV (cP)$$

Par ces mêmes normes, le caractère thixotrope de la boue est évalué par la mesure de la force du gel après 10 s et 10 min de repos. (Gel₀ et Gel₁₀ respectivement).

Pour les déterminer on agite la boue à 600trs/min pendant 15s, on laisse reposer pendant 10s puis on fait tourner à 3trs/min. La déviation maximale relevée sur le cadran constitue le gel₀ (en lbs/100ft²). On agite à nouveau, on laisse reposer pendant 10 min, et on refait la même chose pour obtenir le gel₁₀ (en lbs/100ft²).

Les paramètres du modèle de Bingham (PV, YP) ainsi déterminés, ne constituent pas les caractéristiques réelles du fluide étudié. En fait, ce sont des indices pratiques adoptés par les normes API, qui permettent d'avoir certaines informations sur le comportement rhéologique du fluide et surtout de juger de sa qualité, d'où leur grande importance, surtout sur chantier.

□ Conversion :

$$\dot{\gamma} (s^{-1}) = 1.7 N (\text{trs}/\text{min})$$

$$\text{Pa} = 2.0885. \text{ lbs}/100\text{ft}^2$$

$$\text{Pa.s} = 10^3. \text{ cP}$$

$$T(^{\circ}\text{C}) = [T(^{\circ}\text{F})-32]/1.8$$

V.B.2.2 Mesures avec le rhéomètre Physica Rheolab MC1

a. Description de l'appareil

L'appareil utilisé est un rhéomètre à cylindres coaxiaux de marque Physica Rhéolab MC1. L'échantillon à étudier est contenu dans l'espace annulaire, le cylindre extérieur est fixe tandis que le cylindre intérieur tourne à une vitesse constante.

Les mesures peuvent se faire à contrainte de cisaillement imposée ou à vitesse de cisaillement imposée. L'appareil permet de faire toutes les mesures en régime stationnaire, ainsi que la détermination de certaines propriétés viscoélastiques.

Il est relié à un thermostat qui permet de travailler sur une grande plage de température. Il présente aussi l'avantage de posséder plusieurs systèmes de mesure, ce qui offre la possibilité de travailler sur une large gamme de viscosité (semi-solide liquide léger). Les caractéristiques de certains systèmes sont rapportées dans le tableau Tab.V.B.1.

TabV.B.1 : Systèmes de mesure du rhéomètre Rhéolab MC1

Système	Z1	Z2	Z3	Z4
$\dot{\gamma}$ max. (s^{-1})	6047.52	1549.2	1549.2	1549.2
τ max. (Pa)	65.49	195.78	1141.76	6501.46
Volume de l'échantillon (ml)	22.5	100	17	3
Diamètre intérieur (mm)	Double gap	45	25	14

L'appareil est piloté par micro-ordinateur muni du logiciel Rhéolve US200, pour la gestion du matériel, l'acquisition, et l'exploitation des résultats. Ce logiciel permet le contrôle digital de tous les paramètres de mesure ainsi qu'un affichage direct des résultats mesurés ou calculés.

b. Protocole des mesures

Les tests réalisés avec le rhéomètre Rheolab MC1 concernent la détermination de la contrainte seuil τ_0 , la thixotropie (relaxation à vitesse de cisaillement constante), et la courbe d'écoulement d'équilibre.

Après l'agitation, l'échantillon de boue préparé est laissé au repos pendant 10 min puis mis dans le système de mesure approprié. Un pré-cisaillement à 2 trs/min pendant 1min permet d'étaler le fluide dans l'entrefer, et d'uniformiser l'état initial pour l'ensemble des échantillons. Les tests sont réalisés dans l'ordre suivant :

➤ Test de contrainte seuil τ_0

Le seuil de l'écoulement τ_0 est la contrainte nécessaire pour la transition de l'état rigide à l'état fluide, caractérisée par le passage de l'échantillon de la déformation élastique à l'écoulement. Expérimentalement, cela se traduit par l'apparition d'un point d'inflexion avec une pente montrant une brusque augmentation de la déformation en fonction de la contrainte imposée. Cela reflète une vitesse de déformation $\dot{\gamma}$ non nulle annonçant le début de l'écoulement.

En pratique, on impose une rampe (logarithmique) de contrainte τ et on suit la variation de la déformation (γ). Un modèle d'analyse spécial (Yield stress II) du logiciel US200, permet de détecter sur la courbe le point d'inflexion dont l'abscisse correspond à la contrainte seuil τ_0 .

L'intervalle de contrainte τ imposée dépend de la consistance du fluide testé, par contre le temps de mesure pour chaque point expérimental est fixé à 4s.

➤ Teste de thixotropie

Ce test consiste à imposer une vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ constante et de suivre l'évolution de la viscosité du fluide en fonction du temps. Il permet de déterminer le temps d'équilibre t_{eq} au bout duquel l'échantillon atteint un état d'équilibre dynamique sous la vitesse de cisaillement imposée. Cet équilibre correspond à un palier dans la courbe de viscosité.

Ce test permet d'un côté de juger du caractère thixotrope de la boue, et d'un autre, de déterminer le temps t_{eq} qui sera utilisé dans le test de la courbe d'écoulement.

Afin d'obtenir un temps d'équilibre adéquat, la vitesse de cisaillement imposée est de $\dot{\gamma}=2s^{-1}$. L'intervalle de temps fixé est de 100s, avec une mesure de viscosité pour chaque seconde.

➤ Test de la courbe d'écoulement d'équilibre

Le rhéogramme d'équilibre représente la variation de la contrainte τ en fonction de la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$. Pour pouvoir uniformiser le test pour l'ensemble des échantillons, on impose une rampe (logarithmique) de $\dot{\gamma}$ sur un intervalle de 1 à $1300s^{-1}$, et on suit la variation de la contrainte τ . Pour chacun des points expérimentaux, le temps de mesure correspond au temps d'équilibre déjà déterminé. Cela permet de s'assurer que pour toutes les vitesses $\dot{\gamma} > 2s^{-1}$, le temps de mesure est suffisamment grand pour atteindre l'équilibre dynamique.

Les paramètres des modèles rhéologiques adéquats aux rhéogrammes expérimentaux sont déterminés à l'aide du logiciel STATISTICA [109], avec une fonction de dispersion relative.

Entre chaque deux tests, l'échantillon est laissé au repos pendant 10min. Les paramètres de mesure sont fixés de façon à assurer une procédure uniforme pour l'ensemble des échantillons appartenant à un même plan d'expériences.

V.B.3 Organisation des essais

L'organisation des essais est basée sur la méthode des plans d'expériences. Celle-ci permet de réduire le nombre d'essais à réaliser afin de palier aux contraintes de durée et/ou de coût, et d'assurer au préalable des critères de qualité pour la modélisation.

L'objectif est d'abord d'explorer et de décrire les propriétés rhéologiques des boues formulées afin de mettre en valeur leurs performances et d'évaluer la qualité des viscosifiants proposés, puis de modéliser ces propriétés de manière à pouvoir prévoir le comportement rhéologique de ces fluides.

Les réponses étudiées sont donc les paramètres obtenus à partir des tests rhéologiques effectués avec les deux types de rhéomètre.

La stratégie d'expérimentation adoptée est la stratégie (P) qui permet une modélisation fine des réponses choisies (modélisation en surface de réponse MSR).

Par conséquent, les plans d'expériences utilisés sont des plans optimaux associés pour chaque réponse à un modèle quadratique tenant compte de toutes les interactions entre les facteurs retenus.

Pour chacun de ces plans, les essais sont réalisés selon un ordre aléatoire.

Le recours aux logiciels de plans d'expériences et statistiques (Modde0.5 DEMO et JMP DEMO) [110] [111] permet le choix judicieux de la séquence d'essais à réaliser et surtout un traitement plus exhaustif des résultats et une meilleure exploitation.

V.B.3.1 La Mont-Na

a. Tests API

Les tests API sont des mesures standards permettant d'évaluer la qualité des différents produits à boue. La comparaison des résultats de ces mesures avec les valeurs requises par ces normes permet de juger des performances de ces produits.

Ces tests dépendent de la nature du produit et de son utilisation dans la boue.

Les protocoles détaillés de ces mesures ainsi que les propriétés requises pour chaque produit sont rapportés dans une édition spéciale API [59].

Pour la bentonite, les spécifications concernent particulièrement les propriétés physiques de la suspension (propriétés rhéologiques, filtrat, et granulométrie), ainsi que le pourcentage d'humidité. Les valeurs requises dépendent aussi de la nature de la bentonite.

Selon ces normes, une suspension est préparée en dispersant 22.5g de l'argile dans 350ml d'eau distillée. On agite pendant 20min et on laisse reposer pendant 16h à température ambiante. Après une nouvelle agitation pendant 5min, le test de rhéologie est réalisé à 25 °C à l'aide du rhéomètre à lecture directe.

La même boue est ensuite réagitée, puis soumise au test de filtration pendant 30min à 25°C, sous une pression de 100psi (6.9bar libérée par une capsule deCO₂), à l'aide du filtre presse API. Le volume du filtrat est $V_f = 2V_c$ où V_c est le volume qui filtre après l'instant 7.5min.

Une deuxième suspension est préparée en dispersant 10g d'argile dans 350ml d'eau distillée contenant 0.2g d'hexametaphosphate de sodium(dispersant).On agite pendant 30min puis on fait passer à travers un tamis de 75µm. Après séchage on détermine la masse cumulée sur le tamis.

Le pourcentage d'humidité est déterminé en utilisant un échantillon de 10g séché à 105 °C. Les résultats de ces tests appliqués au produit Mont-Na sont comparés avec les spécifications de la bentonite traitée, de grade OCMA (Oil companies material association), rapportées dans la section 6 de l'édition suscitée.

b. Etude de l'effet du pourcentage de Mont-Na

Cette séquence d'essais est réalisée afin de déterminer l'évolution des paramètres rhéologiques (déterminés avec le rhéomètre Physiqua) de la boue de Mont-Na dans l'eau distillée, en fonction du pourcentage de Mont-Na. Le domaine expérimental exploré est localisé dans l'intervalle : % Mont-Na : [4 12] %. Les points expérimentaux sont réparties sur 5 niveaux distants d'un pas régulier de 2 %, plus deux répétitions au centre (à 8 %).

Le modèle postulé pour chaque réponse est un modèle quadratique de la forme :

$$y = a_0 + a_1x + a_{11}x^2 \quad (\text{en coordonnée centrées réduites CCR}) \quad \text{avec :}$$

y : le paramètre rhéologique étudié

x : % Mont-Na

Les essais à réaliser sont répartis comme montrés dans le tableau Tab.V.B.2.

Tab.V.B.2 : Répartition des essais de l'étude de l'effet du pourcentage de Mont-Na

Essai	1	2	3	4	5	6	7
x	-2	-1	0	1	2	0	0
% Mont-Na	4	6	8	10	12	8	8

Les échantillons sont tous soumis à la même procédure de préparation et de test.

On disperse la Mont-Na dans l'eau distillée en proportions requises, on agite pendant 30 min, puis on laisse reposer pendant 16h à température ambiante.

Le test de rhéologie est réalisé à 25°C avec le rhéomètre Physica sans agitation préalable de l'échantillon.

V.B.3.2 L'argile organophile AO

L'argile organophile AO est testé comme viscosifiant dans le gasoil seul, ainsi que dans deux formulations complètes de boue à émulsion inverse (MI-VERSADRIL)

La densité de ce produit mesurée à l'aide du stéréopycnomètre est $d(AO) = 1.81$.

Le gasoil utilisé présente une densité $d(\text{gasoil}) = 0.82$.

a. Application de l'argile organophile AO dans le gasoil

L'objectif est d'évaluer les performances du produit AO comme viscosifiant pour le gasoil. Pour cela, les tests de rhéologie sont effectués à différentes températures sur des boues AO + gasoil à différentes concentration, et ce avant et après vieillissement a haute température (Hot rolling). Les réponses étudiées sont donc les paramètres rhéologiques (déterminés avec les deux types de rhéomètre) des boues ainsi formulées.

Les facteurs à varier sont : le pourcentage du mélange en argile organophile, et la température des tests de rhéologie. Le domaine expérimental se situe comme suit :

- Le pourcentage (la concentration) en AO : [2 8] %, soit [7 27] ppb.
- La température des tests T : [86 180]°F, soit [30 82.2] °C.

Pour chaque réponse le modèle postulé est un modèle du second degré (quadratique) avec interaction. En coordonnées centrées réduites (CCR), il s'écrit :

$$y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2 + a_{12}x_1x_2 \quad \text{avec :}$$

y : la réponse étudiée

x_1 : la température

x_2 : le % AO

Le plan d'expérience adopté est un plan composite centré extérieur, respectant le critère d'optimalité d'isovariance par rotation. La distance en étoile est de

$\alpha = 1.414$ (en CCR). Ce plan comporte 11 essais dont :

- ✓ 4 essais d'un plan factoriel à deux niveaux
- ✓ 4 essais en étoile
- ✓ 3 essais (répétitions) au centre

Chacun des deux facteurs prend 5 niveaux : $-\alpha, -1, 0, +1, +\alpha$

La répartition des essais est rapportée en CCR (Design Matrix) et en coordonnées réelles (Work Sheet) dans le tableau Tab.V.B.3.

TabV.B.3 : Plan d'expériences du mélange AO + Gasoil

Essai	x_1	x_2	Temperature (°F)	% AO
1	-1	-1	100	2.88
2	+1	-1	166	2.88
3	-1	+1	100	7.12
4	+1	+1	166	7.12
5	- 1.414	0	86	5
6	+ 1.414	0	180	5
7	0	- 1.414	133	2
8	0	+ 1.414	133	8
9	0	0	133	5
10	0	0	133	5
11	0	0	133	5

Les échantillons sont préparés par simple dispersion du produit AO dans le gasoil. La quantité adéquate d'argile organophile est ajoutée doucement au volume de gasoil sous forte agitation. Pour l'ensemble des échantillons, le mélange est laissé au mixage pendant 30 min pour assurer un gonflement complet.

En plus des tests de rhéologie, la densité des boues à différents pourcentages: 2 %, 2.88 %, 5 %, 7.12 %, 8 % est mesurée à l'aide du densimètre à boue.

Le même plan des tests est répété après hot rolling. Cela permet d'étudier le comportement de ces boues après un tel traitement et de déterminer l'influence de ce dernier. Ainsi, les échantillons préparés et testés sont soumis au vieillissement dynamique à 250°F (121.11°C) pendant 16h dans l'étuve rotative. Ils sont testés à nouveau après refroidissement et une brève agitation.

Aussi pour être compatibles avec les normes API pour les boues à base d'huile, les échantillons à différents pourcentages, sont soumis avant et après vieillissement, au tests de rhéologie à 150 °F (65.55 °C).

Les performances ainsi déterminées du produit AO dans le gasoil sont comparées avec celles d'un produit commercial MI, soluble dans le gasoil. Il s'agit du KRATONG, utilisé plutôt comme agent épaississant dans certaines boues à base de gasoil, et non pas comme viscosifiant pour le gasoil seul.

Il est soumis aux mêmes conditions de préparation et de tests.

b. Application de l'argile organophile dans les boues « MI-Versadril »

Il s'agit de tester l'argile organophile AO comme viscosifiant dans deux types de boues à base de gasoil (MI-Versadril). Ce sont des boues à émulsion inverse eau dans le gasoil, de pourcentages volumiques 95/5 et 70/30. Pour chacun de ces systèmes les résultats sont comparés avec ceux de la boue de même densité, formulée avec la même teneur en VG69($d = 1.57$), le viscosifiant commercial MI utilisé.

Les compositions de ces boues pour ces deux viscosifiants(AO et VG69) sont rapportées dans le tableau Tab.V.B.4 :

TabV.B.4 : composition des boues 95/5 et 70/30 avec le VG69 et le AO

Produits	La boue 95/5		La boue 70/30	
	VG69	AO	VG69	AO
Gasoil (ml)	319.21	320.65	203.63	204.23
Viscosifiant (g)	12	12	8	8
La chaux (g)	10	10	10	10
Versa-mul (ml)	4.44	4.44	5.56	5.56
Vesa-coat (ml)	3.11	3.11	4.14	4.14
CaCl ₂ (g)	7.58	7.46	39.37	38.67
Eau (ml)	16.42	16.65	85.30	86.37
Barite (g)	0	0	114.28	113.41
Versa-trol (g)	4	4	4	4
Total (ml)	350	350	350	350

- 350ml est le baril équivalent, c'est le volume expérimental utilisé pour les tests de laboratoire selon les normes API.
- Les volumes mesurés sont bien sûr arrondis à des valeurs pratiques.

Pour chacune de ces formulations, l'ordre et la durée de mixage de ces constituants sont comme suit :

1. gasoil
2. Le viscosifiant (5min)
3. La chaux (10min)
4. Versa-mul (5min)
5. Versa-coat (5min)
6. Saumure ; eau + CaCl₂ (15min)
7. Barite (10min)
8. Versa-trol (10min).

L'ajout au mélange se fait doucement pour assurer une bonne dispersion.

La densité de la boue 95/5 est de 7.5 lbs/gal (0.9 g/cm³), celle de la boue 70/30 est de 10.5 lbs/gal (1.26 g/cm³).

Suivant les normes API pour les boues à base d'huile, les tests de rhéologie sont réalisés à 150°F, avant et après vieillissement dynamique pendant 16h à 250°F dans l'étuve rotative.

La stabilité de l'émulsion est mesurée après chaque test à l'aide du testeur d'émulsion.

V.B.3.3 L'argile hydrophile modifiée AHM

a. Application du produit AHM dans l'eau

Le produit AHM est utilisé comme viscosifiant dans l'eau. Tout d'abord, il est question de tester la sensibilité de ce produit vis à vis de la qualité de l'eau utilisée. Pour cela, trois échantillons de boue à 6 % en AHM sont formulés respectivement avec de l'eau brute (du robinet), de l'eau adoucie au carbonate de sodium (0.41g dans 350 ml), et avec de l'eau distillée.

Les tests rhéologiques réalisés à 120°F, selon les normes API pour les boues à base d'eau, montrent la robustesse du produit AHM envers ce paramètre. Cela offre l'avantage d'utiliser l'eau sans aucun additifs ou traitement préalable.

Le premier objectif est d'étudier la variation des paramètres rhéologique du fluide AHM + Eau, en fonction du pourcentage en AHM. Pour ce faire, des tests rhéologiques sont réalisés à 120°F pour des boues de concentrations : 3 %, 4 %, 5 %, 6 %, et 7 % (respectivement: 10.5, 14, 17.5, 21, et 24.5 ppb).

Ensuite afin d'évaluer l'influence du vieillissement aux hautes températures, et le comportement rhéologique de cette boue, en fonction de sa concentration et de la température après un tel traitement, un plan d'expériences est engagé après vieillissement des échantillons à 250 °F pendant 16 h dans l'étuve rotative.

Il s'agit d'un plan factoriel complet, avec deux facteurs à trois niveaux chacun.

La température est variée dans l'intervalle: [120 180] °F, avec les niveaux : 120 °F 150 °F, et 180 °F.

Le pourcentage de AHM est varié sur la gamme la plus intéressante : [5 7] %, avec les niveaux : 5 %, 6 %, et 7 %.

Le plan comporte 11 essais dont trois répétitions au centre.

Les réponses étudiées sont évidemment les paramètres rhéologiques des boues formulées. Pour chacun de ces paramètres, le modèle postulé est un modèle du second degré avec interaction : en CCR

$$y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2 + a_{12}x_1x_2 \quad \text{avec :}$$

y : la réponse étudiée

x_1 : la température du test

x_2 : le % AHM

Les essais à réaliser sont rapportés en CCR et en coordonnées réelles dans le tableau Tab.V.B.5.

Tab.V.B.5 : Plan d'expérience du mélange AHM + eau après hot rolling à 250 °F

Essai	x_1	x_2	Temperature (°F)	% AHM
1	-1	-1	120	5
2	0	-1	150	5
3	1	-1	180	5
4	-1	0	120	6
5	0	0	150	6
6	1	0	180	6
7	-1	1	120	7
8	0	1	150	7
9	1	1	180	7
10	0	0	150	6
11	0	0	150	6

Les échantillons sont préparés par simple mixage pendant 30 min, des proportions adéquates d'eau et du produit AHM. La densité du fluide est de 8.58 ppg (SG 1.03).

b. Etude de l'influence des paramètres de synthèse du produit AHM

Le produit AHM qui est une Mont-Al-OH, est synthétisé selon un mode opératoire renfermant des paramètres clés. Sans doute, les plus importants et les plus accessibles sont : le rapport OH/Al, le vieillissement des solutions polymériques

Al-OH, la concentration de la suspension de Mont-Na et le rapport Al/Mont-Na.

Ces quatre facteurs ajoutés à la concentration en Mont-Al-OH, peuvent être déterminants pour les propriétés rhéologiques de la boue Mont-Al-OH dans l'eau distillée.

Dans ce sens, le prochain plan d'expériences vise l'étude de la variation des paramètres rhéologiques de la boue Mont-Al-OH dans l'eau distillée en fonction des 5 facteurs suscités.

Le domaine expérimental exploré se situe comme suit :

- OH / Al: [0.1 2] mmol/mmol
- vieillissement : [1 9] jours
- % Mont-Na : [1 5] %
- Al / Mont-Na : [0.1 6] mmol/g
- % Mont-Al-OH : [4 12] %

Le modèle postulé pour chacun des paramètres rhéologiques étudiés est un modèle quadratique tenant compte de toutes les interactions d'ordre 2. Il s'écrit en CCR comme suit :

$$y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_3x_3 + a_4x_4 + a_5x_5 + a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2 + a_{33}x_3^2 + a_{44}x_4^2 + a_{55}x_5^2 + a_{12}x_1x_2 + a_{13}x_1x_3 + a_{14}x_1x_4 + a_{15}x_1x_5 + a_{23}x_2x_3 + a_{24}x_2x_4 + a_{25}x_2x_5 + a_{34}x_3x_4 + a_{35}x_3x_5 + a_{45}x_4x_5$$

y : la réponse étudiée

x_1 : le rapport OH /Al

x_2 : le temps de vieillissement des solutions polymérique

x_3 : le pourcentage de la suspension de Mont-Na

x_4 : le rapport Al / Mont-Na

x_5 : le pourcentage en Mont-Al-OH

Le plan d'expériences adopté est un plan composite centré extérieur respectant l'isovariance par rotation comme critère d'optimalité. La distance en étoile est $\alpha = 2$ (en CCR). Le plan comporte 29 essais dont :

- ✓ 16 essais d'un plan factoriel fractionnaire à deux niveaux
- ✓ 10 essais en étoile
- ✓ 3 répétitions au centre

Chaque facteur prend 5 niveaux : $-\alpha, -1, 0, 1, +\alpha$ (en CCR)

La séquence d'essais à réaliser est rapportée en coordonnées réelles (Work sheet) dans le tableau Tab.V.B.6 :

Tab.V.B.6 : plan d'expériences de la boue de Mont-Al-OH dans l'eau distillée

Essai	OH /AL	Vieillessement (j)	% Mont-Na	Al/Mont-Na (mmol/g)	% Mont-Al -OH
1	0.575	3	2	1.575	10
2	1.525	3	2	1.575	6
3	0.575	7	2	1.575	6
4	1.525	7	2	1.575	10
5	0.575	3	4	1.575	6
6	1.525	3	4	1.575	10
7	0.575	7	4	1.575	10
8	1.525	7	4	1.575	6
9	0.575	3	2	4.525	6
10	1.525	3	2	4.525	10
11	0.575	7	2	4.525	10
12	1.525	7	2	4.525	6
13	0.575	3	4	4.525	10
14	1.525	3	4	4.525	6
15	0.575	7	4	4.525	6
16	1.525	7	4	4.525	10
17	0.1	5	3	3.05	8
18	2	5	3	3.05	8
19	1.05	1	3	3.05	8
20	1.05	9	3	3.05	8
21	1.05	5	1	3.05	8
22	1.05	5	5	3.05	8
23	1.05	5	3	0.1	8
24	1.05	5	3	6	8
25	1.05	5	3	3.05	4
26	1.05	5	3	3.05	12
27	1.05	5	3	3.05	8
28	1.05	5	3	3.05	8
29	1.05	5	3	3.05	8

Les échantillons de boue sont préparés et testés suivant la même procédure que pour la Mont-Na. Les résultats des deux produits sont comparés.

VI. Résultats expérimentaux

VI.A. Caractérisation des produits argileux

VI.A.1. La diffraction de rayons X

La figure Fig.VI.A.1 représente le diffractogramme du produit brut utilisé comme étant de la bentonite. Le spectre obtenu confirme l'identité présumée de ce produit, avec l'apparition des pics relatifs aux différents constituants habituels de cette argile. La présence de ces éléments est particulièrement mise en évidence par les raies d_{001} , relatives à chacun d'eux.

On relève en premier, le pic typique de la Montmorillonite calcique (Mont-Ca), situé à $2\theta = 4.86^\circ$, avec une distance basale égale à $d_{001} = 15.33 \text{ \AA}$. Ce pic est d'assez faible intensité à cause des impuretés, en particulier cristallines, qui étouffent la présence de cet élément, bien qu'il soit majoritaire.

On note aussi la présence, en tant qu'impuretés, de deux autres types de minéraux argileux.

Le premier est la Kaolinite ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$), localisée avec un très faible pic vers

$2\theta = 12.40^\circ$, avec une distance basale de $d_{001} = 7.13 \text{ \AA}$. Le second est l'Illite

$[\text{K}(\text{Al}, \text{Fe})_2\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}]$, identifiée avec le pic situé à $2\theta = 19.8^\circ$ avec $d_{001} = 4.48 \text{ \AA}$.

De même que pour la Mont-Ca, ces minéraux argileux apparaissent avec des pics très atténués, à cause de leurs très faibles proportions et leurs moindre cristallinité (cristaux bidimensionnels), par rapport aux impuretés cristallines proprement dites.

Parmi ces dernières, l'espèce la plus présente est bien le quartz (SiO_2). Celui-ci marque sa présence avec plusieurs pics très fins. Le plus intense se situe à $2\theta = 26.6^\circ$ correspondant à une distance basale de $d_{001} = 3.35 \text{ \AA}$.

Tel qu'il apparaît sur la figure, tous ces éléments font ressortir d'autres pics, de plus faibles intensités, attribués aux raies secondaires : d_{002} , d_{003} , etc.

Le diffractogramme présenté en figure Fig.VI.A.2, relatif au produit noté Mont-Na, fait valoir la qualité de la procédure d'homéionisation sodique et de purification de la bentonite brute. En effet, le pic relatif à la montmorillonite apparaît maintenant à $2\theta = 6.8^\circ$, ce qui correspond à une distance basale de $d_{001} = 12.9 \text{ \AA}$. Celle-ci est typique de la montmorillonite sodique avec une seule couche moléculaire d'eau dans l'espace interfolier. Remarque que ce pic est nettement plus clair et plus intense que le précédent.

On relève aussi, l'aplatissement ou même la disparition de la plus part des autres pics et un éclaircissement du spectre.

Ces deux observations reflètent le degré de pureté du produit Mont-Na, récupéré à la fin de la procédure de purification, qui a conduit à l'élimination de la plus grande fraction d'impuretés.

Cependant, des résidus de quartz et de kaolinite, très tenaces, persistent encore, mais avec un pic de moindre intensité pour le SiO_2 . Par contre, celui de la kaolinite est plus intense que précédemment.

Pour l'argile hydrophile modifiée AHM et l'argile organophile AO, les diffractogrammes seront limités aux raies d_{001} . La comparaison de ces dernières avec celle de la Mont-Na (le produit de départ) permet d'évaluer le degré d'expansion de ces nouveaux produits. Ce paramètre permettra de dire si oui ou non il y a eu insertion des espèces désirées, dans l'espace interlamillaire du minéral.

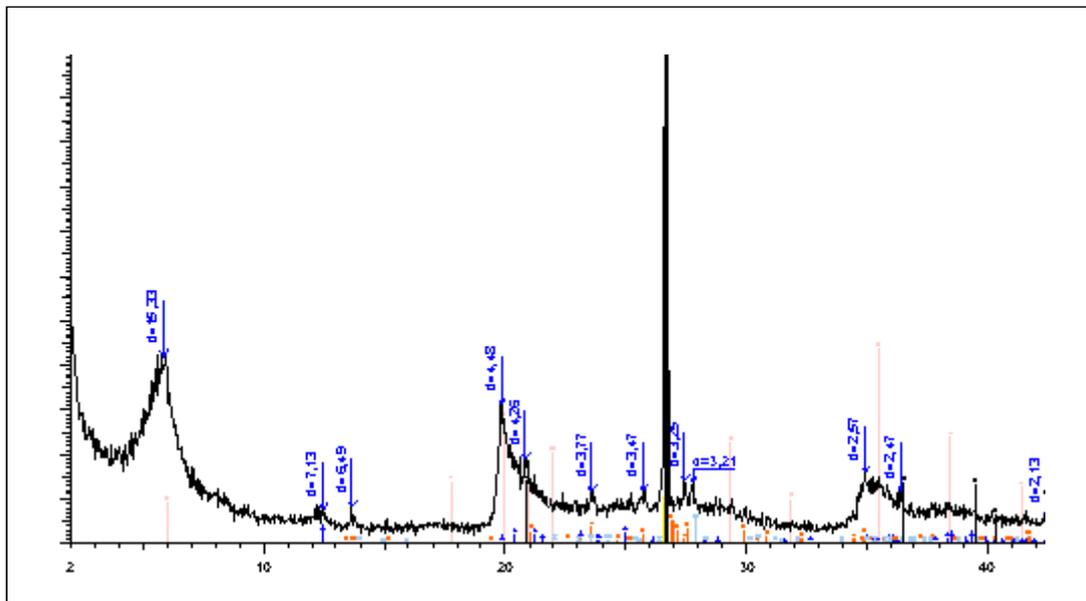


Fig.VI.A.1 : Diffractogramme de la bentonite brute

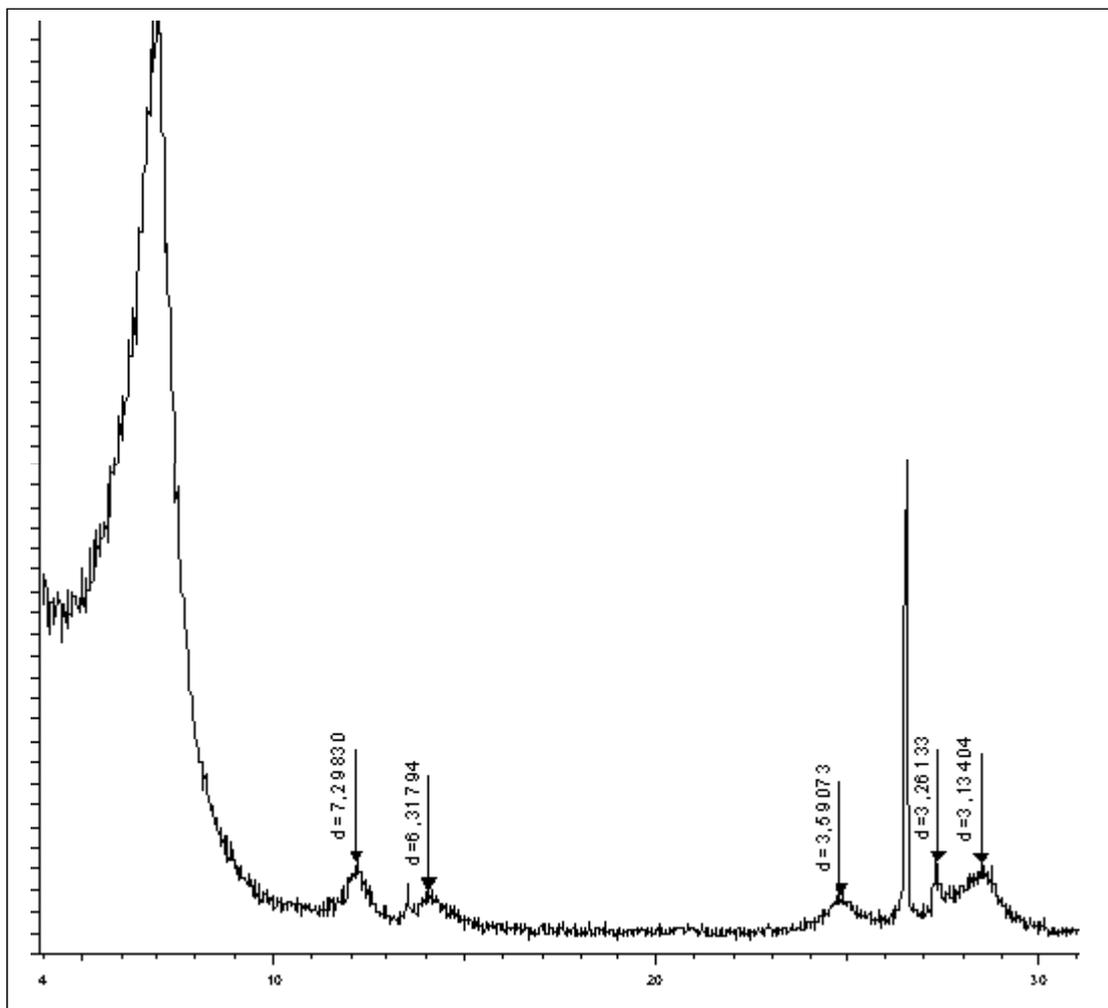


Fig.VI.A.2 : Diffractogramme du produit Mont-Na

La raie d_{001} de l'argile hydrophile modifiée AHM est rapportée dans la figure Fig.VI.A.3. Ce produit présente une distance basale égale à $d_{001} = 19.19 \text{ \AA}$, traduite par un pic très intense et très clair, localisé à $2\theta = 4.6^\circ$.

Ce résultat est le synonyme d'une intercalation réussie de la montmorillonite, par la forme polyhydroxy-aluminique désirée. Cela prouve que cette dernière a trouvé les conditions propices à sa formation, et en quantité suffisante pour assurer son insertion dans l'espace interfolier du minéral.

La clarté de ce pic reflète aussi l'absence, sur le produit intercalé, de toutes les autres espèces d'aluminium provenant de la solution polymérique. Celles-là ont vraisemblablement été éliminées par le lavage.

Ainsi, le traitement de la Mont-Na avec la solution d'aluminium partiellement hydrolysé, a permis de réaliser une expansion de plus de 6.3 \AA de l'espace interfolier de ce minéral argileux.

Le résultat de l'analyse du produit AO, est représenté par les deux diffractogrammes affichés dans la figure Fig.VI.A.4

Le premier est celui du produit AO, à proprement parler. Il fait apparaître une succession de pic entremêlés, dans l'intervalle $2\theta : 3.32^\circ$ à 4.42° , correspondant à des distances basales $d_{001} : 26.53 \text{ \AA}$ à 19.93 \AA . On remarque aussi, la disparition totale du pic relatif à la Mont-Na, ce qui signifie qu'il y a bien eu insertion du tensioactif dans l'espace interlamillaire de ce minéral.

Un tel résultat peut trouver explication dans deux hypothèses principales. La première est qu'il y aurait eu formation de plusieurs types de produits intercalés, selon la position du tensioactif (inclinée, horizontale, verticale ou aléatoire) dans l'espace interfolier. Cela aurait donc conduit à la formation d'un mélange difficilement identifiable par DRX.

La deuxième proposition est que le tensioactif (produit organique amorphe) aurait enrobé le minéral, masquant ainsi sa structure cristalline.

Le deuxième diffractogramme est obtenu après un lavage intensif du produit AO. Il fait apparaître un pic clair et de très bonne intensité, positionné à $2\theta = 3.94^\circ$, avec une distance basale de $d_{001} = 22.40 \text{ \AA}$.

En comparant cette expansion de l'espace interfolier (9.57 \AA), avec la taille du tensioactif utilisé, on déduit aisément que celui ci s'est inséré en position inclinée.

Cette clarté du pic est obtenue grâce à l'élimination par lavage, du tensioactif en surface, ce qui a permis l'apparition du produit intercalé (à structure cristalline).

En fin du compte, ce dernier résultat, donne raison, à parts égales, aux deux hypothèses.

L'argile organophile AO est un produit intercalé (en position inclinée) et enrobé par le tensioactif cationique utilisé.

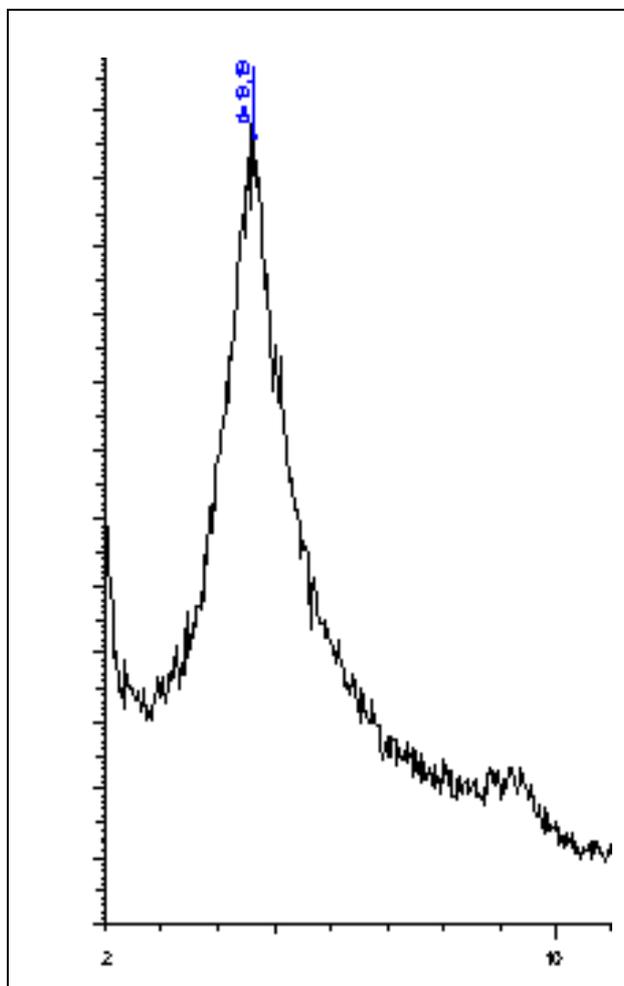


Fig.VI.A.3 : La raie d_{001} du produit AHM

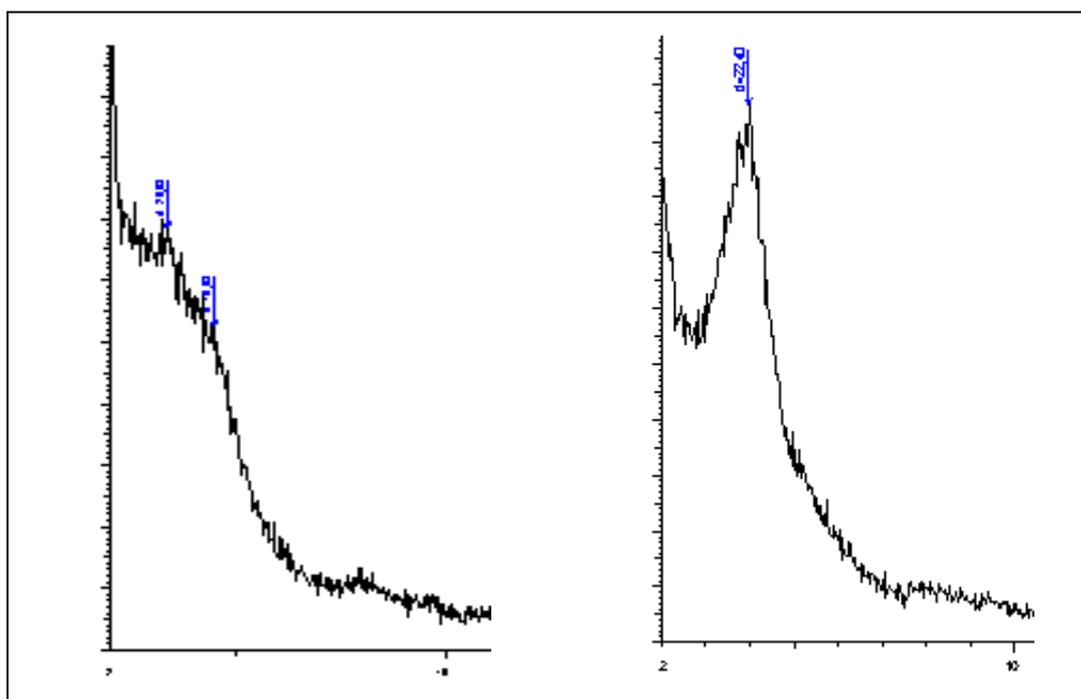


Fig.VI.A.4 : La raie d_{001} du produit A.O

VI.A.2 La spectrophotométrie infrarouge (FTIR)

La présence du tensioactif dans le produit AO est confirmée par l'analyse à l'infrarouge.

Dans les figures Fig.A.5-7, sont rapportés les spectres infrarouges respectivement, de la Mont-Na, du tensioactif cationique utilisé et du produit AO. L'analyse du spectre relatif à la Mont-Na permet de faire les affectations suivantes :

La bande caractéristique de la Mont-Na s'étale entre 3200cm^{-1} et 3800cm^{-1} . Elle correspond aux vibrations d'élongation des groupements O-H de la couche octaédrique. Celle entre 1600cm^{-1} et 1700cm^{-1} , centrée vers 1660cm^{-1} , est attribuée aux vibrations de valence du groupement O-H de l'eau de constitution et de l'eau interfoliaire.

La petite bande à 1380cm^{-1} est caractéristique du quartz (impureté cristalline résiduelle).

La bande localisée entre 950cm^{-1} et 1150cm^{-1} , centrée vers 1050cm^{-1} , correspond à la vibration de valence de la liaison Si-O.

Les deux dernières bandes vers 460cm^{-1} et 530cm^{-1} , sont attribuées respectivement, aux vibrations de déformation de Si-O-Al et Si-O-Mg de la couche octaédrique.

En plus des bandes typiques de la montmorillonite, le spectre IR du produit AO, fait apparaître de nouvelles bandes, qui coïncident parfaitement avec celles propres au tensioactif cationique utilisé.

On relève en particulier, celles entre 2800cm^{-1} et 3000cm^{-1} , dues aux vibrations de valence de la liaison $\text{CH}_2\text{-CH}_3$ et celle $\text{CH}_3\text{-N}$.

Ajouter à cela, la petite bande entre 1400cm^{-1} et 1500cm^{-1} qui correspond aux vibrations de déformation du groupement CH_2 .

L'apparition de ces nouvelles bandes dans le spectre du produit AO, par rapport à celui du produit de départ (Mont-Na), est une preuve irréfutable de la présence du tensioactif.

Celui-ci, en intercalant et en enrobant le minéral montmorillonite, il lui confère un caractère purement organophile.

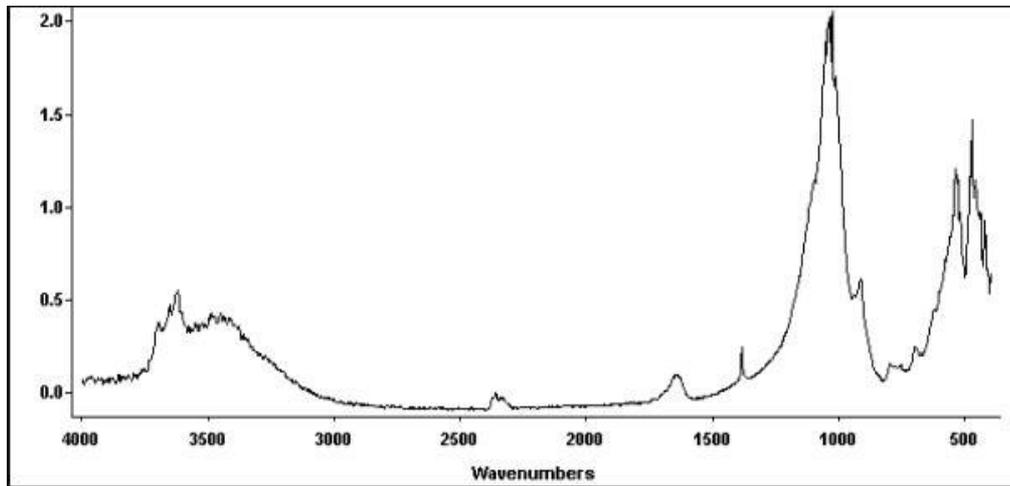


Fig.VI.A.5 : Spectre infrarouge du produit Mont-Na

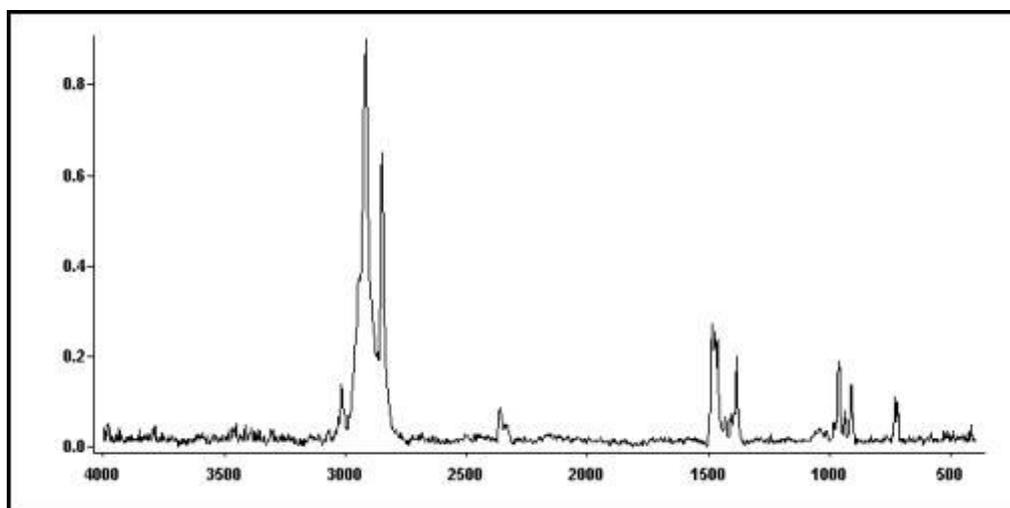


Fig.VI.A.6: Spectre infrarouge du tensioactif cationique

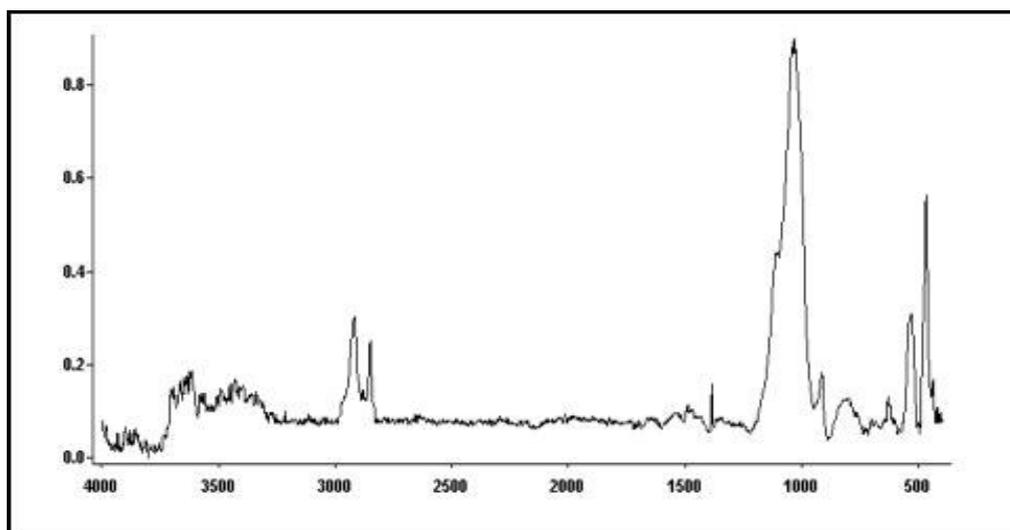


Fig.VI.A.7: Spectre infrarouge du produit AO

VI.B. Application des produits argileux comme viscosifiants

VI.B.1 La montmorillonite sodique (Mont-Na)

VI.B.1.a Tests API

Les résultats des tests API appliqués au produit Mont-Na, ainsi que les spécifications requises du grade OCMA, sont rapportés dans le tableau suivant :

Tab.VI.B.1: Résultats des tests API du produit Mont-Na et les spécifications du grade OCMA

Paramètres	Résultats du produit Mont-Na	Spécifications du grade OCMA
Lecture du viscosimètre à 600 tr/min	28	30 minimum
Lecture du viscosimètre à 300 tr/min	21	/
PV (cP)	7	/
YP (lbs/100ft ²)	14	/
YP/PV	2	6 maximum
Volume du filtrat (ml)	14.4	16 maximum
Résidus > 75µm (% massique)	0.1	2.5 maximum
Humidité (% massique)	2.9	13 maximum

Ces résultats montrent que le produit Mont-Na répond parfaitement aux spécifications physiques de la bentonite traitée du grade OCMA. A noter seulement que la lecture à 600tr/min au viscosimètre Fann 35SA est légèrement inférieure à la valeur requise.

Effectivement, le % d'humidité (2.9 %) est largement inférieur à la valeur maximale tolérée (13 %), ce qui permet un gain de masse de plus de 10% et un meilleur rendement (une plus grande quantité d'eau susceptible d'être adsorbée).

Le résidu au tamis de 75µm est pratiquement nul (0.1 %). Cela indique une très grande pureté du produit Mont-Na et une excellente dispersion. Il laisse aussi croire à la formation d'un cake fin, compacte et peu perméable.

Le volume du filtrat (14.4 ml) est inférieur au volume maximal prescrit (16ml), ce qui indique de bonnes propriétés de filtration et confirme la qualité du cake.

Aussi la comparaison du rapport YP/PV obtenu (égal à 2) avec le maximum admissible (6 max.) montre des propriétés rhéologiques et de suspension très satisfaisantes de la boue de Mont-Na, avec de bonnes valeurs de PV et de la YP.

L'analyse granulométrique réalisée à l'aide du granulomètre laser (CILAS 920) de l'échantillon de poudre de Mont-Na utilisé, a donné la distribution massique suivante de la taille des particules :

Diamètre médian : 42.94 µm

Diamètre (D) à 10 % du cumule : 5.30µm

Diamètre à (D) à 90 % du cumule : 173.63 µm

% cumulé à 100µm : 75.44 %

Tab.VI.B.2: Distribution de la taille des particules de l'échantillon de Mont-Na en poudre

D (µm)	0.30	0.60	1.00	1.40	1.70	2.00	2.60	3.20	4.00	5.00
%cumulé	0.01	0.05	0.22	0.76	1.41	2.15	3.76	5.33	7.26	9.39
D (µm)	6.00	8.00	10.00	12.00	15.00	18.00	23.00	30.00	36.00	45.00
%cumulé	11.28	14.60	17.53	20.20	23.91	27.40	32.83	39.70	44.82	51.37
D (µm)	56.00	70.00	90.00	110.00	135.00	165.00	210.00	260.00	320.0	400.0
%cumulé	58.08	65.05	72.63	78.25	83.71	88.88	94.19	97.44	99.12	100.0

VI.B.1.b Etude de l'effet du % Mont-Na

Les tests de relaxation réalisés à vitesse de cisaillement $\dot{\gamma} = 2s^{-1}$ ont donné des courbes avec une viscosité constante dans le temps. Cela montre que pour les différentes concentrations, le caractère thixotrope de la boue de Mont-Na est pratiquement nul. Une courbe typique de ce résultat est rapportée sur la figure FigVI.B.1

Les valeurs obtenues de la contrainte seuil τ_0 , du gel_0 et du gel_{10} (mesurés avec le Rhéolab MC1) sont affichées dans le tableau suivant :

Tab.VI.B.3: Valeur de τ_0 , gel_0 et gel_{10} pour la boue de Mont-Na à différents pourcentages

Essai	1	2	3	4	5	6	7
% Mont-Na	4	6	8	10	12	8	8
τ_0 (Pa)	3.37	11.23	29.34	52.94	83.61	28.2	30.8
Gel_0 (lbs/100ft ²)	2.61	13.05	42.82	90	135.55	44.75	46.6
Gel_{10} (lbs/100ft ²)	3.11	13.14	42.19	91.25	136.38	44	45.8

Il apparaît clairement que ces paramètres évoluent beaucoup avec la concentration. La contrainte seuil τ_0 est très importante même à faible concentration (11.23 Pa pour 6%) et passe à $\tau_0 = 83.61$ Pa pour 12 %. Le gel_0 et le gel_{10} sont élevés et présentent des valeurs tout à fait identiques. Cela montre que la boue de Mont-Na est dotée d'un gel consistant et plat (non progressif), ce qui confirme d'ailleurs les résultats du test de relaxation.

Le modèle rhéologique de Sisko et celui de Casson, semblent les plus adéquats aux rhéogrammes expérimentaux obtenus. Le modèle de Herschel Bulkley présente lui aussi une bonne corrélation. Les paramètres de ces trois modèles déterminés avec le logiciel Statistica [109] sont rapportés sur le tableau Tab.VI.B.4.

Les courbes correspondant aux rhéogrammes expérimentaux et aux modèles de Casson et de Sisko pour chaque essai, sont tracées sur les figures Fig.VI.B.2-7.

TabVI.B.4: Paramètres des modèles rhéologiques adéquats aux rhéogrammes expérimentaux de la boue de Mont-Na à différents pourcentages

Essai	1	2	3	4	5	6	7
Casson							
τ_{0c} (Pa)	1.782	7.07	21.88	49.907	66.701	24	21.975
μ_{pC} (Pa.s)	0.00149	0.00102	0.00044	0.0006	0.00069	0.0005	0.00054
R ² %	96.66	90.8	93.08	93.77	97.38	93.82	96.5
Sisko							
μ_{∞} (Pa.s)	0.00381	0.00247	0.0032	0.00632	0.00926	0.0035	0.004
K	1.7369	6.499	21.305	49.362	66.399	24.634	21.519
n	0.0857	0.06	0.02411	0.0149	0.01182	0.028	0.0234
R ² %	97.38	95.03	96.12	96.43	99.24	97.23	98.1
H.Bulkley							
τ_0 (Pa)	1.706	3.482	21.31	50.216	67.393	20.74	21.777
K	0.134	2.993	0.4585	0.227	0.1986	0.77	0.291
n	0.4947	0.1464	0.394	0.565	0.6152	0.3255	0.471
R ² %	95.73	93.25	92.9	93.85	97.77	94.51	96.45

Les rhéogrammes expérimentaux et les paramètres de ces modèles, reflètent bien la consistance de cette boue et sa résistance à l'écoulement au seuil (à travers K et τ_0).

L'ensemble de ces résultats traduit l'excellent gonflement du produit Mont-Na dans l'eau.

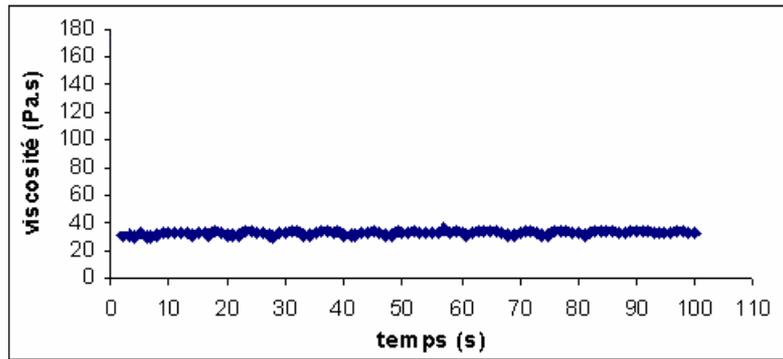
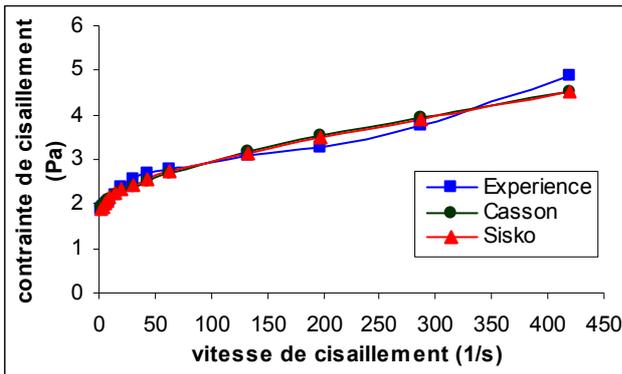
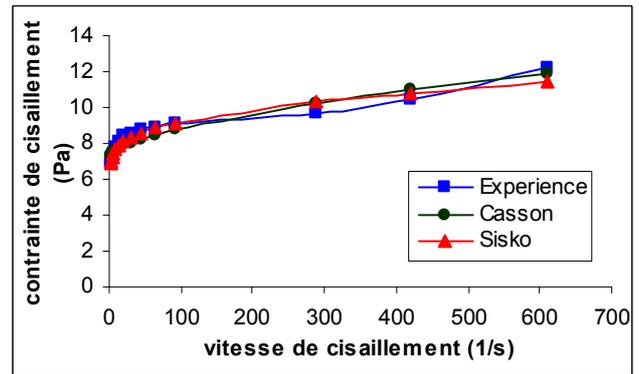


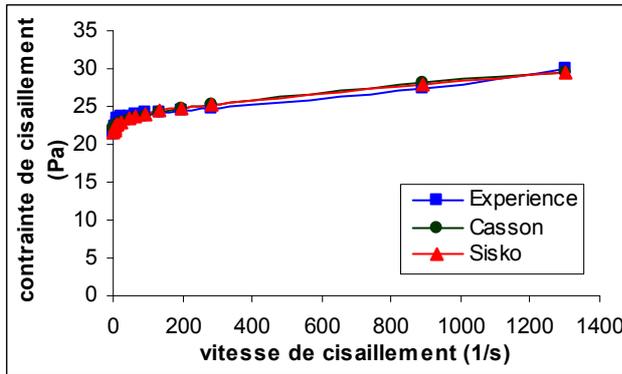
Fig.VI.B.1: Courbe typique du test de relaxation de la boue de Mont-Na



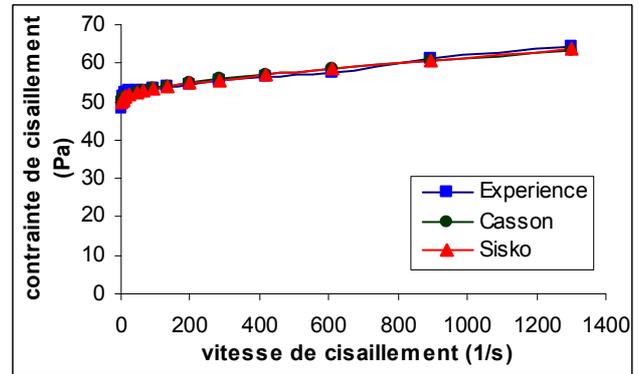
Essai 1



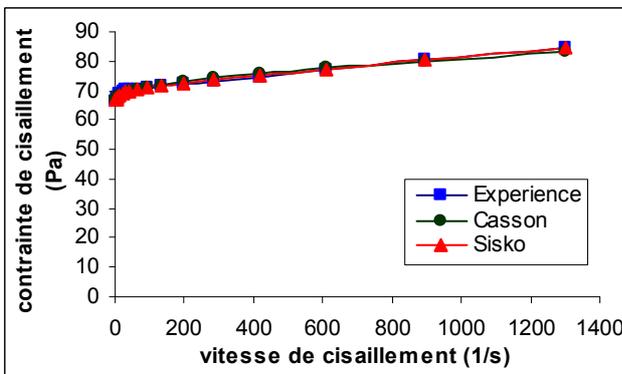
Essai 2



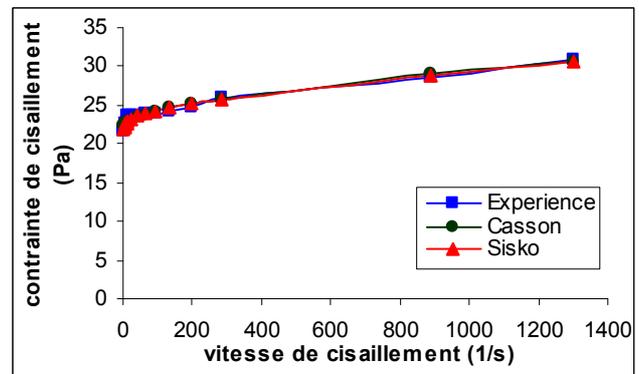
Essai 3



Essai 4



Essai 5



Essai 6

Fig.VI.B.2-7: Courbes d'écoulement d'équilibre des échantillons de la boue de Mont-Na

VI.B.2 L'argile organophile AO

VI.B.2.1 Application dans le gasoil

La dispersion du produit AO (poudre blanche) dans le gasoil donne après une brève agitation (15 min), une boue de couleur jaune blanchâtre très homogène et très stable (pas de séparation). Elle se présente sous l'aspect d'une graisse souple et très légère. Suivant le pourcentage du produit AO, cette graisse peut être très fluide (apparence huileuse pour les % AO < 3 %) ou très consistante (% AO > 5 %).

Cela est synonyme d'un excellent gonflement du produit AO dans le gasoil, ce qui prouve son affinité prononcée vis à vis de ce solvant et confirme son caractère très organophile.

Il semblerait même, qu'au-delà d'un certain pourcentage (% AO > 7 %), le volume du gasoil ne satisfait que difficilement la totalité de la capacité de gonflement du produit AO.

Les résultats des tests de rhéologie, permettront de toucher du doigt les propriétés de cette boue et d'évaluer d'une manière plus pratique (quantitative) sa qualité et ses performances.

a. Mesures avec le rhéomètre Fann 35SA :

Ces résultats comportent les valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ mesurés à l'aide du rhéomètre Fann 35SA, ainsi que les lectures (contraintes τ exprimées en lbs/100ft²) relevées pour les différentes vitesses de rotation.

❖ Résultats du plan adopté :

➤ Tests avant vieillissement à haute température :

Ces résultats sont obtenus à partir des tests réalisés juste après un bref délai de repos des échantillons de boue préparés. Ils sont répartis comme suit :

Tab.VI.B.5 : Valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ du plan réalisé avant vieillissement

Essai	1	2	3	4	5	6
600 tr/min	20	10	91	75	46	33
300 tr/min	13	7	77	66	35	27
200 tr/min	11	6	68	65	32	25
100 tr/min	9	5	66	64	28	22
6 tr/min	5	4	52	31	26	17
3 tr/min	5	3	47	30	23	12
PV (cP)	7	3	14	9	11	6
YP (lbs/100ft ²)	6	4	63	57	24	21
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	5	4	43	25	23	11
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	5	4	42	25	21	11

Essai	7	8	9	10	11
600 tr/min	12	110	40	41	42
300 tr/min	8	96	33	33	35
200 tr/min	6	93	30	29	29
100 tr/min	5	90	27	27	25
6 tr/min	3	50	21	22	22
3 tr/min	2	45	19	17	16
PV (cP)	4	14	7	8	7
YP (lbs/100ft ²)	4	82	26	25	28
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	3	40	15	16	14
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	3	41	14	17	14

➤ Tests après vieillissement à haute température :

Ces essais sont réalisés après vieillissement dynamique des échantillons de boue à 250 °F pendant 16h à l'étuve rotative. La boue est désormais devenue de couleur marron. Il est à noter qu'après un tel traitement, cette boue se fluidifie presque totalement, pour retrouver toutes ces propriétés après une simple et très courte agitation. Les résultats de ces tests sont affichés dans le tableau suivant :

Tab.VI.B.6 : Valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ du plan réalisé après vieillissement

Essai	1	2	3	4	5	6
600 tr/min	18	9	97	85	41	26
300 tr/min	13	6	84	75	32	21
200 tr/min	10	5	80	70	28	19
100 tr/min	8	4	77	68	23	17
6 tr/min	5	3	71	51	18	15
3 tr/min	4	3	54	40	17	10
PV (cP)	5	3	13	10	9	5
YP (lbs/100ft ²)	8	3	71	65	23	16
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	5	3	51	35	17	9
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	5	3	51	32	17	10

Essai	7	8	9	10	11
600 tr/min	9	119	33	35	40
300 tr/min	6	107	28	29	33
200 tr/min	5	93	25	27	30
100 tr/min	4	88	21	24	27
6 tr/min	2	69	18	20	23
3 tr/min	2	56	16	17	20
PV (cP)	3	12	5	6	7
YP (lbs/100ft ²)	3	95	23	23	26
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	2	58	14	16	18
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	3	57	14	15	18

❖ **Résultats des tests à 150 °F :**

Ces tests sont effectués à 150 °F (65.5 °C) conformément aux normes API pour les boues à base d'huile. Les résultats des essais réalisés avant et après vieillissement sont rapportés dans les tableaux : Tab.VI.B.7 et Tab.VI.B.8 respectivement.

Ces résultats serviront aussi à la validation des modèles qui seront estimés par la suite, pour les paramètres rhéologiques étudiés.

Tab.VI.B.7 : Valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ des essais réalisés à 150°F avant vieillissement

Boue à % en AO	2%	2.88%	5%	7.12%	8%
600 tr/min	10	13	36	81	102
300 tr/min	7	9	30	70	90
200 tr/min	6	7	26	55	83
100 tr/min	4	5	23	53	77
6 tr/min	3	4	16	37	51
3 tr/min	2	3	14	32	48

PV (cP)	3	4	6	11	12
YP (lbs/100ft ²)	4	5	24	59	78
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	3	4	12	29	38
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	3	4	12	26	36

Tab.VI.B.8 : Valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ des essais réalisés à 150°F après vieillissement

Boue à % en AO	2%	2.88%	5%	7.12%	8%
600 tr/min	9	10	30	88	113
300 tr/min	6	7	25	78	102
200 tr/min	5	6	23	74	88
100 tr/min	4	4	21	71	82
6 tr/min	3	3	18	59	62
3 tr/min	2	3	14	43	58
PV (cP)	3	3	5	10	11
YP (lbs/100ft ²)	3	4	20	68	91
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	2	4	14	37	51
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	3	4	13	35	49

A la lumière de l'ensemble de ces résultats, on peut apprécier la qualité de la boue formulée, en particulier pour les % AO ≥ 4 %. En effet, ce fluide présente de très bonnes propriétés rhéologiques, parfaitement susceptibles de lui conférer des performances très satisfaisantes.

Effectivement cette boue est dotée d'une YP élevée surtout les échantillons dont le % AO ≥ 5% (YP = 95lbs/100ft² pour l'essai à 8 %). La PV est très réduite même à forte concentration (PV ne dépasse pas 13 cP). Cela indique de très bons (élevés) rapports YP/PV, qui signifient un caractère rhéofluidifiant prononcé. Sachant qu'une telle caractéristique est idéale pour l'accomplissement optimal des différentes fonctions des fluides de forage. En particulier, la capacité de mise en suspension des déblais et leur transport pour le nettoyage du trou, ainsi que la protection des parois et une circulation facile du fluide.

Le gel présente de très bonnes valeurs, ni trop basses ni trop élevées, ce qui est tout à fait compatible avec une bonne mise en suspension des déblais lors des différents arrêts et une remise facile en circulation.

Aussi, les résultats du gel₀ et le gel₁₀ (et même le gel₃₀, non rapportés dans les tableaux) sont pratiquement les mêmes, ce qui signifie un gel plat (qui n'évolue pas dans le temps). Cette propriété facilite la tâche pour la remise en circulation du fluide après les longs arrêts.

La PV n'évolue que faiblement en fonction du % AO et de la température, et ce que ce soit avant ou après vieillissement.

A priori, la température semble faiblement affecter la YP et modérément influencer les gels (essais 5, 10 et 6). Cela reflète la bonne stabilité thermique de cette boue.

Par contre, ces paramètres semblent beaucoup évoluer en fonction du % AO (essais 7, 9 et 8 ainsi que les tests à 150 °F).

La comparaison entre les résultats des séquences d'essais réalisés avant et après vieillissement (Tab.VI.B.5 avec Tab.VI.B.6, et Tab.VI.B.7 avec Tab.VI.B.8) fait ressortir une caractéristique très importante. C'est le fait qu'un vieillissement à une température aussi élevée (250 °F = 121 °C) et pendant 16h, ne semble pas vraiment affecter les propriétés rhéologiques (PV, YP, gel₀ et gel₁₀) de cette boue. Au contraire, il semble y

ajouter de la consistance. Cela prouve la robustesse de ce fluide envers des conditions aussi rudes, ce qui est une propriété très recherchée pour les fluides de forage.

D'un autre côté, la comparaison des résultats des répétitions au centre (essais 9, 10 et 11, avant et après vieillissement) montre de très faibles écarts. Cela laisse croire à la stabilité et la reproductibilité de la procédure de préparation du produit AO, de la formulation de la boue et des tests de rhéologie.

Comme prévu, ces essais ont permis d'estimer à sa juste valeur, la qualité de la boue AO + gasoil.

Pour concrétiser d'avantage les performances de ce fluide, des essais de mise en suspension d'objets métalliques divers (pièce de 50DA, rondelles, etc.), ont été réalisés avec des échantillons de boue à plus de 5 % en AO, et ce avant et après vieillissement. Ces objets ont été parfaitement maintenus en surface tel montré sur les photos rapportées dans la figure Fig.VI.B.8.

b. Mesures avec le Rhéolab MC1 :

Les tests de relaxation réalisés à vitesse de cisaillement $\dot{\gamma} = 2s^{-1}$ ont donné pour les différents échantillons, des courbes avec une viscosité pratiquement constante dans le temps. Cependant, ces courbes sont caractérisées par de faibles fluctuations de la viscosité, attribuées entre autres à l'instabilité de la vitesse de cisaillement qui varie légèrement autour de la valeur imposée.

Comme pour la Mont-Na, ce résultat montre le faible caractère thixotrope de la boue AO + gasoil, et confirme les résultats des mesures du gel_0 et gel_{10} (gel plat) réalisées avec le Fann 35SA.

Des courbes typiques du test de relaxation et celui de la contrainte seuil sont rapportées sur la figure Fig.VI.B.9.

Le modèle d'Ostwald semble le plus adéquat aux rhéogrammes expérimentaux de l'ensemble des essais réalisés. En réalité cette boue présente un comportement plastique rhéofluidifiant, mais aucuns des modèles rhéologiques de ce type (Casson ou Hurschel Bulkley) ne semble y adhérer.

Les paramètres du modèle d'Ostwald ainsi que les valeurs de la contrainte seuil τ_0 pour chacun des essais du plan adopté, et ceux réalisés à 150 °F, avant et après vieillissement, sont rapportés dans ce qui suit.

❖ Résultats du plan adopté

Les résultats du test de la contrainte seuil et de la courbe d'équilibre d'écoulement, du plan réalisé avant et après vieillissement des échantillons de boue à 250 °F pendant 16h, sont affichés dans le tableau Tab.VI.B.9.



Avant vieillissement



Après vieillissement

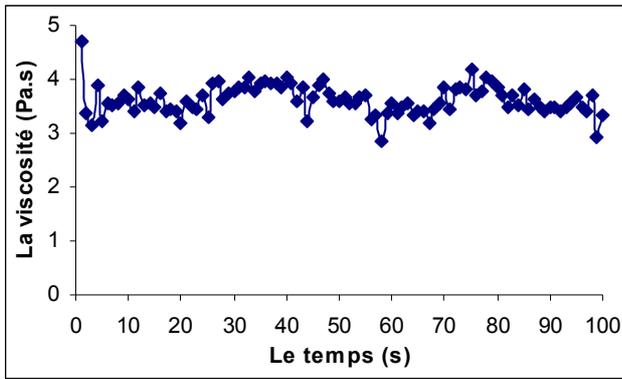


Fig.VI.B.8 : Exhibition de la capacité de mise en suspension de la boue AO + gasoil avant et après vieillissement à 250 °F

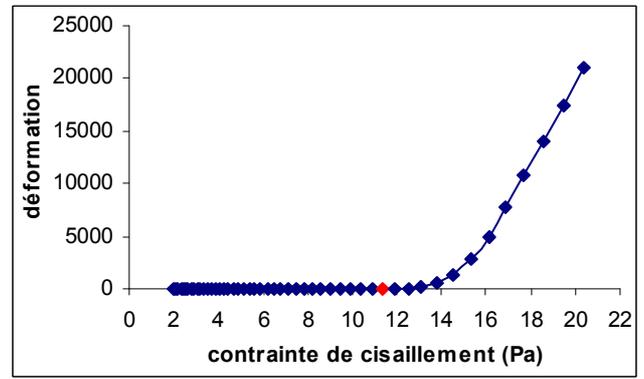
Tab.VI.B.9 : Valeurs de la contrainte seuil et des paramètres du modèle d'Ostwald pour le plan réalisé avant et après vieillissement à 250 °F

Essai	Paramètres du modèle d'Ostwald		Contrainte seuil τ_0 (Pa)	
	Avant vieil.	Après vieil.	Avant vieil.	Après vieil.
1	K = 0.812 n = 0.242 R ² = 92.59 %	K = 1.794 n = 0.202 R ² = 92.7 %	0.45	1.31
2	K = 0.982 n = 0.174 R ² = 97.34 %	K = 1.385 n = 0.188 R ² = 89 %	0.54	1.05
3	K = 8.178 n = 0.274 R ² = 92.75 %	K = 16.597 n = 0.239 R ² = 94.68 %	8.14	14.4
4	K = 8.473 n = 0.249 R ² = 94.70 %	K = 13.528 n = 0.248 R ² = 96.42 %	11.69	15.64
5	K = 3.778 n = 0.239 R ² = 93.75 %	K = 7.155 n = 0.206 R ² = 95.65 %	2.98	4.52
6	K = 3.62 n = 0.181 R ² = 89.95 %	K = 5.286 n = 0.202 R ² = 94.86 %	1.1	4.89
7	K = 0.35 n = 0.217 R ² = 95.27 %	K = 0.601 n = 0.217 R ² = 91 %	0.39	0.65
8	K = 7.766 n = 0.298 R ² = 92.57 %	K = 15.287 n = 0.284 R ² = 95.65 %	13	22
9	K = 4.754 n = 0.170 R ² = 95.60 %	K = 5.904 n = 0.193 R ² = 93.26 %	2.3	5.13
10	K = 4.487 n = 0.172 R ² = 94.97 %	K = 5.722 n = 0.215 R ² = 94.70 %	1.68	4.65
11	K = 4.289 n = 0.186 R ² = 96.02 %	K = 6.945 n = 0.194 R ² = 96.25 %	1.92	5.03

Les courbes d'équilibre d'écoulement relatives aux différents essais, avant et après vieillissement, sont représentées dans les figures Fig.VI.B.10-31

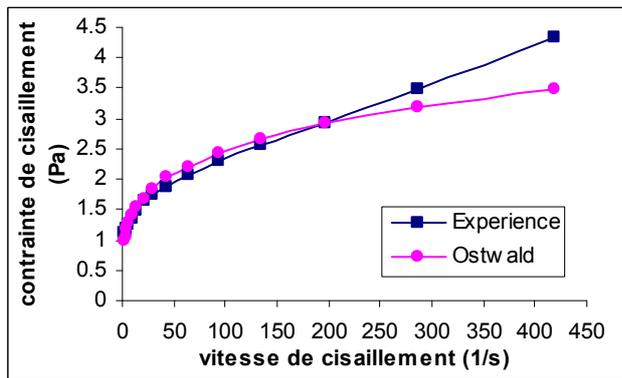


Test de relaxation

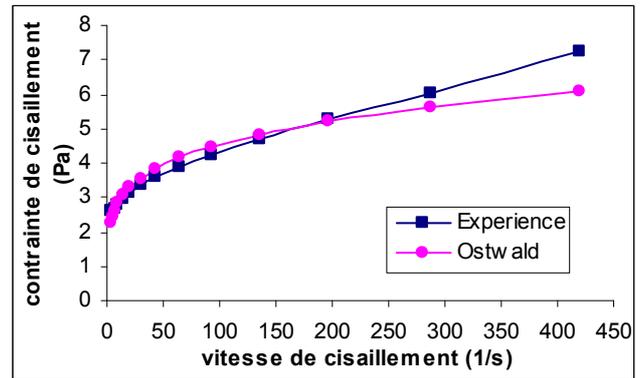


Test de la contrainte seuil

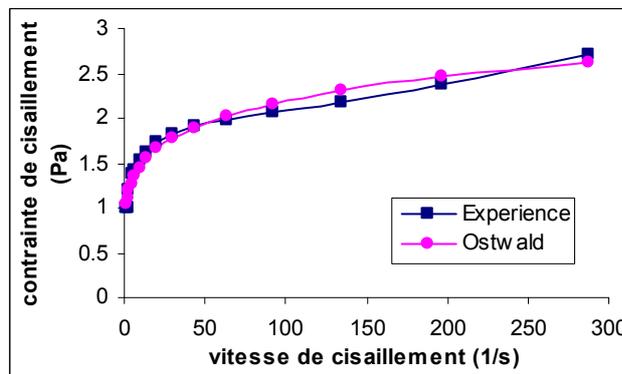
Fig.VI.B.9 : Courbes typiques des tests de relaxation et de la contrainte seuil



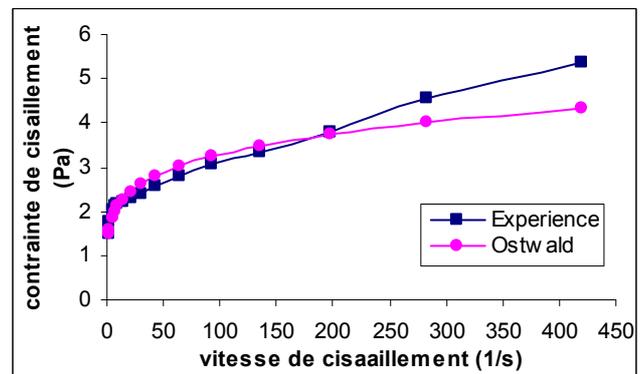
Essai 1 : Avant



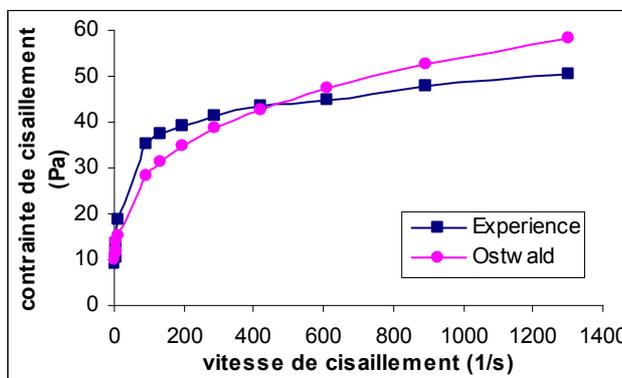
Essai 1 : Après



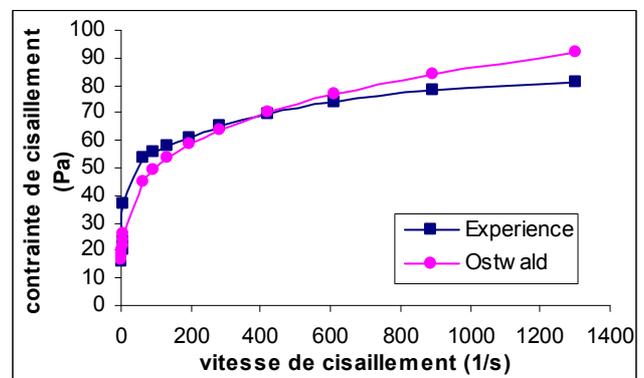
Essai 2 : Avant



Essai 2 : Après

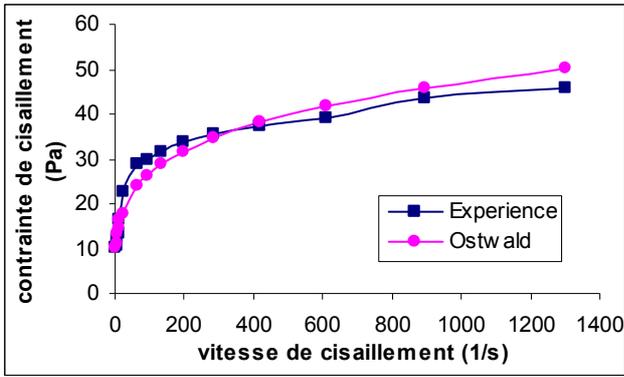


Essai 3 : Avant

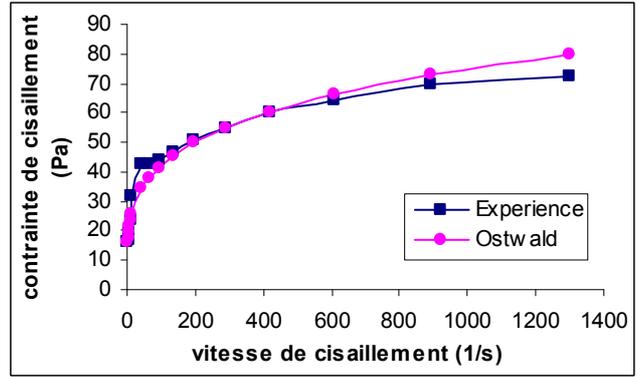


Essai 3 : Après

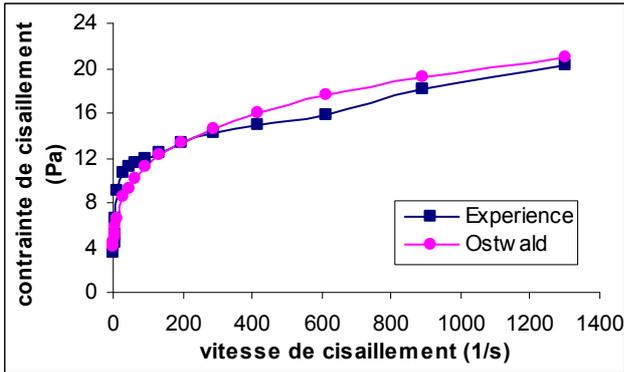
Fig.VI.B.10-15 : Courbes d'équilibre d'écoulement des essais : 1, 2 et 3 du plan réalisé de la boue AO + gasoil avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h



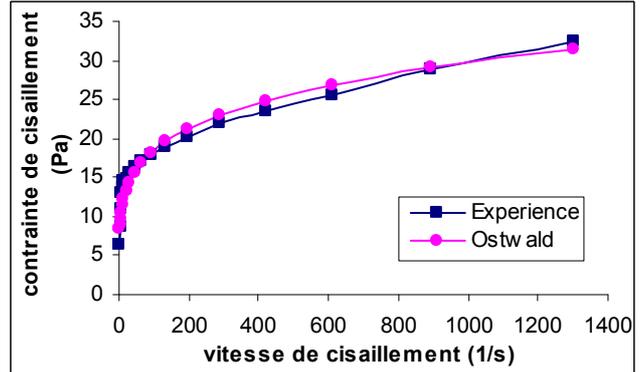
Essai 4 : Avant



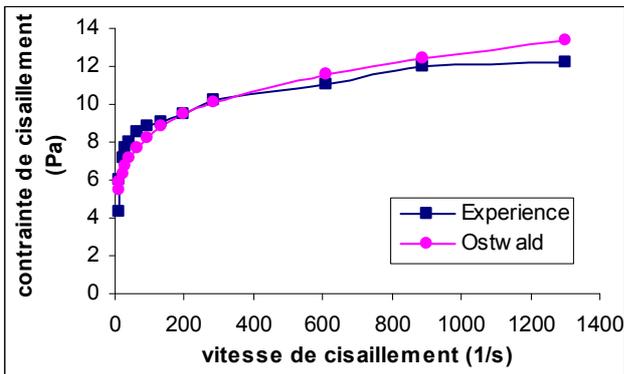
Essai 4 : Après



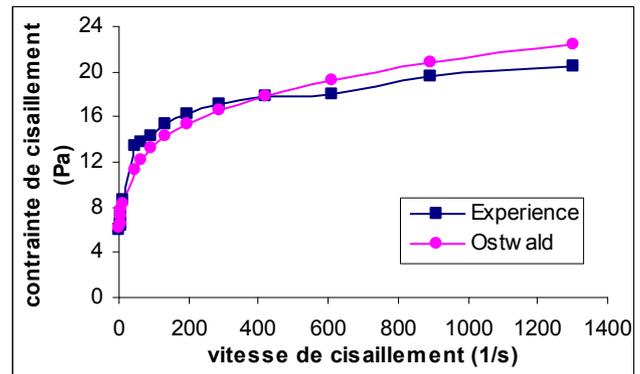
Essai 5 : Avant



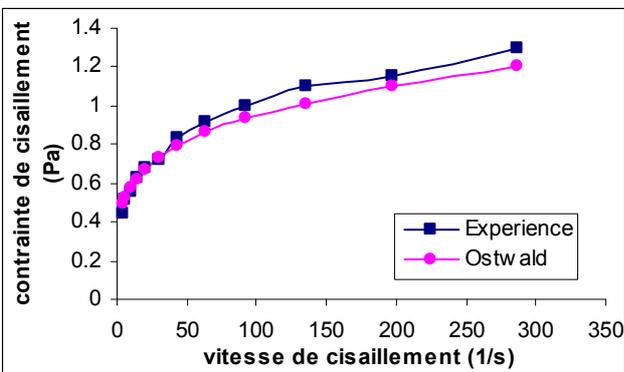
Essai 5 : Après



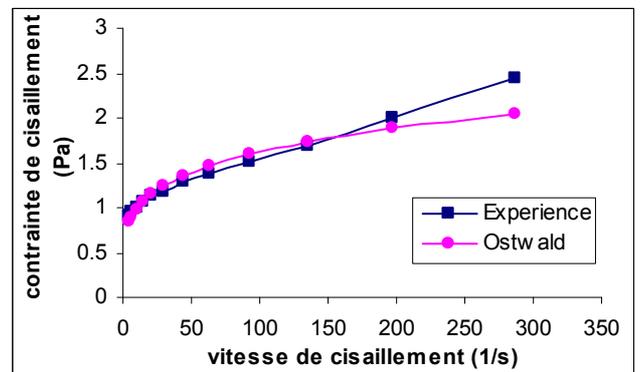
Essai 6 : Avant



Essai 6 : Après

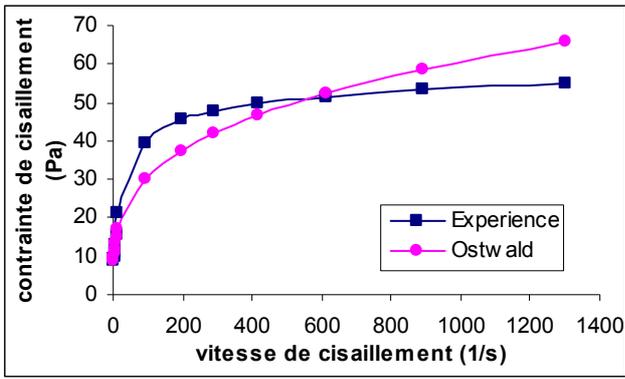


Essai 7 : Avant

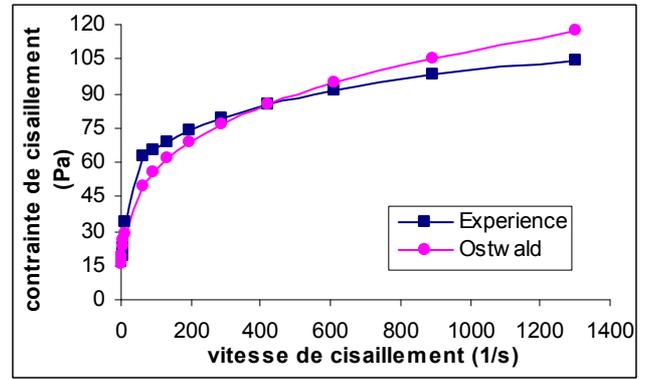


Essai 7 : Après

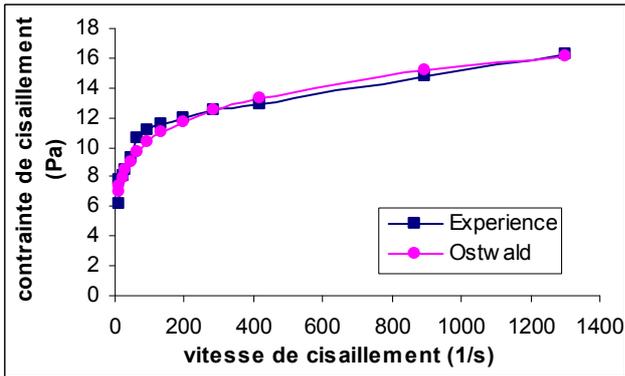
Fig.VI.B.16-23 : Courbes d'équilibre d'écoulement des essais : 4, 5, 6 et 7 du plan réalisé de la boue AO + gasoil avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h



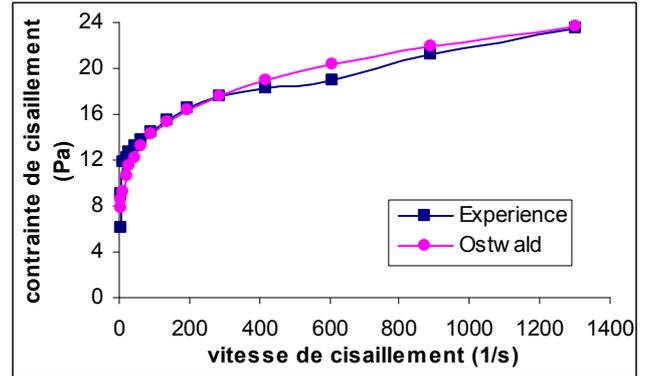
Essai 8 : Avant



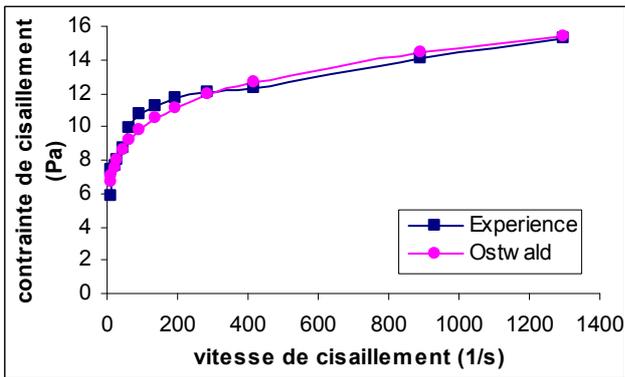
Essai 8 : Après



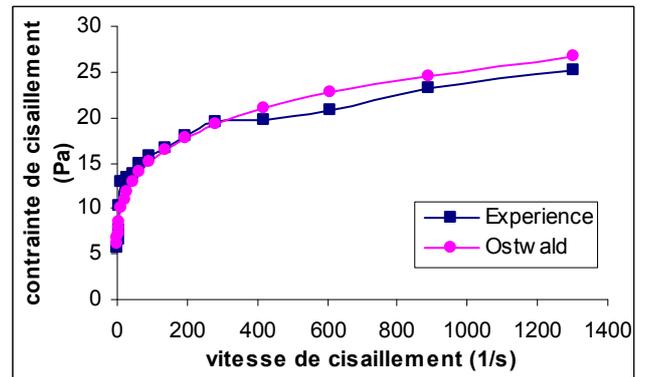
Essai 9 : Avant



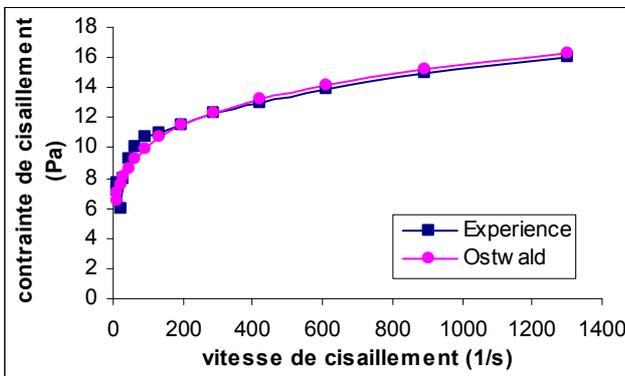
Essai 9 : Après



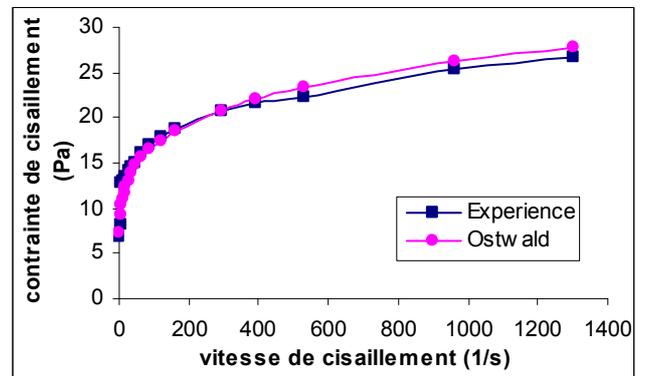
Essai 10 : Avant



Essai 10 : Après



Essai 11 : Avant



Essai 11 : Après

Fig.VI.B.23-31: Courbes d'équilibre d'écoulement des essais : 8, 9, 10 et 11 du plan réalisé de la boue AO + gasoil avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h

Ces résultats complètent et appuient ceux obtenus avec le rhéomètre Fann, et confirment la qualité des propriétés rhéologiques de cette boue (surtout pour $\%AO \geq 4\%$).

En effet, ce fluide présente de grandes valeurs de l'indice de consistance K et de faibles valeurs de l'indice de comportement n ($n < 0.3$). Cela confirme l'hypothèse du caractère rhéofluidifiant prononcé, déjà mise en évidence par les grandes valeurs du rapport YP/PV.

La contrainte seuil τ_0 est modérée, ce qui renforce les résultats du gel_0 , et met d'avantage en valeur la capacité du fluide à maintenir les déblais en suspension lors des différents arrêts, tout en conservant une grande facilité de remise en circulation.

L'indice de comportement n varie très peu en fonction des deux facteurs étudiés. Cela est un grand indice de la stabilité et de l'homogénéité de cette boue d'un côté, et d'un autre, de l'adéquation du modèle d'Ostwald aux rhéogrammes expérimentaux obtenus pour les différents échantillons.

La température semble faiblement affecter l'indice de consistance K et modérément abaisser la contrainte seuil τ_0 (de même que pour la YP et les gels). Par contre ces deux paramètres évoluent beaucoup avec le % AO (essais 7, 9, et 8) et la boue devient rapidement très consistante au delà de 5% (l'aspect d'une graisse épaisse).

Comme pressenti à partir des mesures avec le Fann, le vieillissement à haute température semble vraiment augmenter la consistance de cette boue ; l'indice K et la contrainte seuil τ_0 sont plus conséquents après, qu'avant vieillissement. Il en est de même pour les contraintes mesurées à égales vitesses de cisaillement (rhéogrammes).

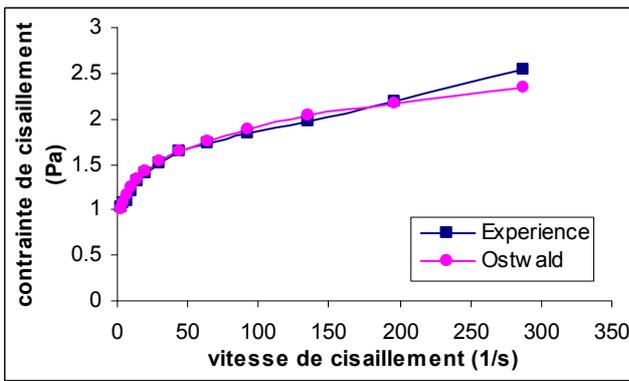
Les résultats des répétitions au centre sont très proches, ce qui indique une faible variabilité naturelle et une bonne reproductibilité des paramètres K, n et τ_0 .

❖ Résultats des tests à 150 °F

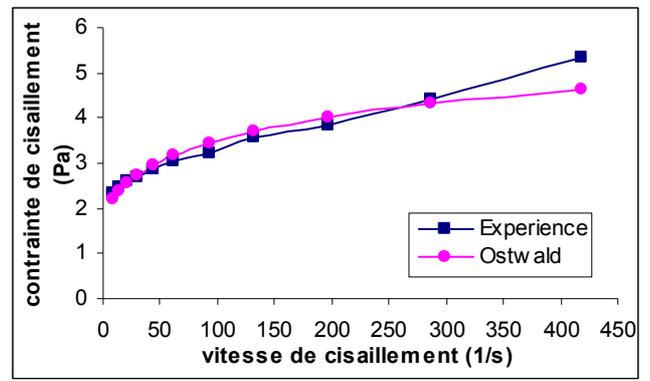
Les valeurs obtenues sont affichées dans le tableau Tab.VI.B.10 et les courbes d'équilibres d'écoulement regroupées dans les figures Fig.VI.B.32-39.

Tab.VI.B.10 : Valeurs de K, n et τ_0 pour les tests réalisés à 150°F avant et après vieillissement

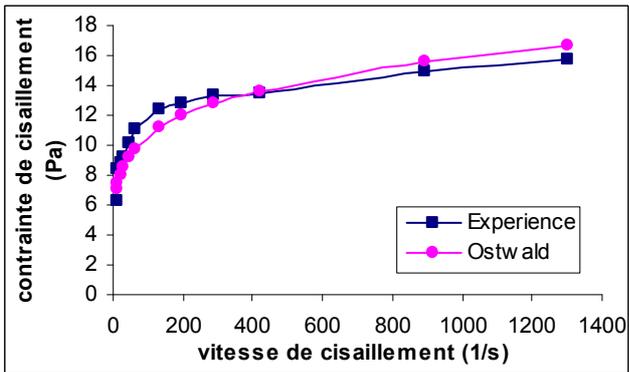
% AO	Paramètres du modèle d'Ostwald		Contrainte seuil τ_0 (Pa)	
	Avant vieil.	Après vieil.	Avant vieil.	Après vieil.
2 %	K = / n = / R ² = /	K = 0.526 n = 0.205 R ² = 89.65%	0.14	0.49
2.88 %	K = 0.812 n = 0.186 R ² = 97.41 %	K = 1.408 n = 0.197 R ² = 92.53%	0.33	0.86
5 %	K = 4.73 n = 0.175 R ² = 92 %	K = 6.237 n = 0.196 R ² = 94.02 %	1.6	4.75
7.12 %	K = 7.15 n = 0.248 R ² = 94.71 %	K = 14.40 n = 0.257 R ² = 96.47%	9.8	14.95
8 %	K = 8.02 n = 0.291 R ² = 92 %	K = 16.753 n = 0.285 R ² = 96.08 %	11.85	21.8



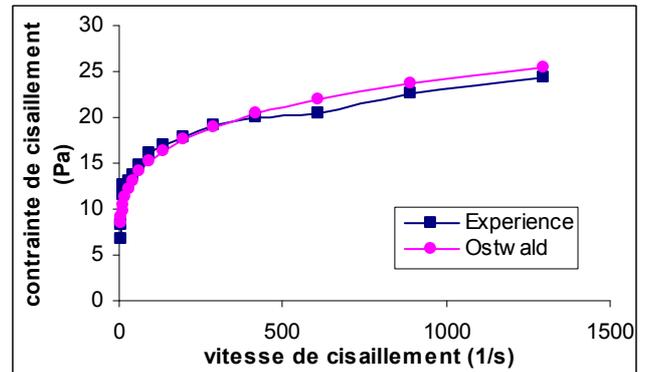
Essai à 2.88 % : Avant



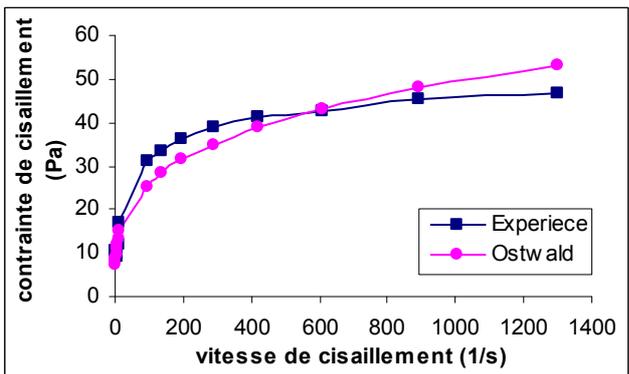
Essai à 2.88 % : Après



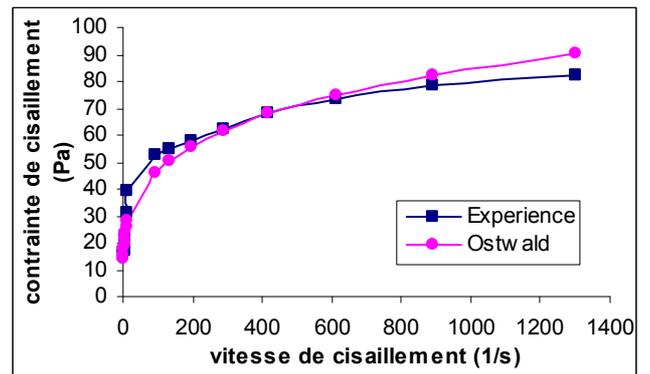
Essai à 5 % : Avant



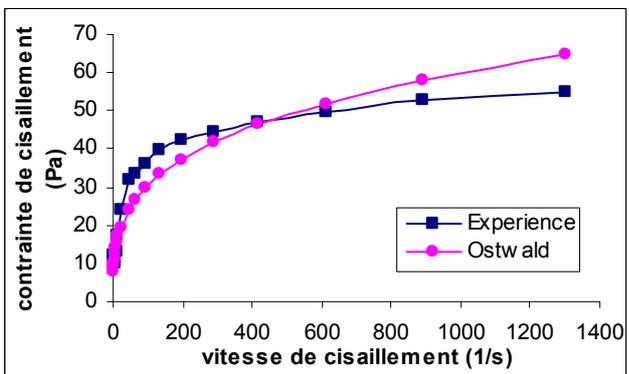
Essai à 5 % : Après



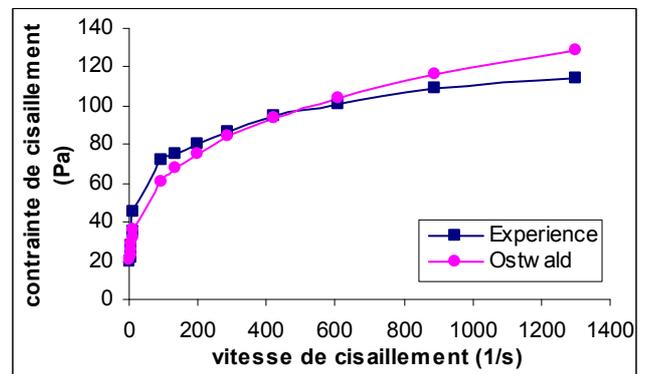
Essai à 7.12 % : Avant



Essai à 7.12 % : Après



Essai à 8 % : Avant



Essai à 8 % : Après

Fig.VI.B.32-39 : Courbes d'équilibre d'écoulement des essais réalisés à 150 °F de la boue AO + gasoil avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h

Ces résultats ne font que confirmer la grande variation des paramètres $Ket \tau_0$ en fonction du % AO, et la stabilité de l'indice de comportement n.

Ces valeurs serviront aussi à la validation des modèles qui seront estimés par la suite pour ces trois paramètres.

Les mesures de densité réalisées à température ambiante à l'aide du densimètre à boue, pour des échantillons à différents pourcentages en AO ont donné les résultats suivants :

Tab.VI.B.11 : Densité de la boue AO + gasoil pour les différents pourcentages en AO

% AO	2 %	2.88 %	5 %	7.12 %	8 %
Densité (g/cm ³)	0.81	0.82	0.84	0.84	0.85
Densité (lbs/gal)	6.75	6.83	7	7	7.08

Il apparaît clairement que la densité de cette boue ne varie presque pas avec le pourcentage en AO (0.81 – 0.85) g/cm³. Cela offre l'avantage de pouvoir modifier (augmenter ou diminuer) les propriétés rhéologiques de ce fluide en jouant sur le % AO, sans que cela ait un effet sur la densité.

De telles valeurs de densité sont typiques d'une boue non alourdie.

Des essais supplémentaires à des températures différentes n'ont pratiquement montré aucune variation de la densité en fonction de ce facteur. De même, le vieillissement à haute température (250 °F pendant 16h) ne semble présenter aucune influence.

c. Comparaison avec le produit KRATONG (KTG)

La comparaison porte sur un échantillon à 5 % de la boue AO + gasoil et un échantillon de la boue KTG + gasoil de même concentration. Ce pourcentage est choisi à cause de la difficulté d'aller au delà pour le KTG, en plus du fait qu'il constitue la teneur moyenne de la boue AO + gasoil déjà étudiée.

Pour ces deux boues, les résultats des mesures réalisées avec le Fann à 150°F et 180°F, avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h, sont affichés dans le Tableau Tab.VI.B.12.

TabVI.B.12 : Valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ des échantillons à 5 % des boues KTG + gasoil et AO+ gasoil avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h

Test	Avant vieillissement				Après vieillissement			
	KTG + gasoil		AO + gasoil		KTG + gasoil		AO + gasoil	
Type de boue	150	180	150	180	150	180	150	180
Temperature (°F)	150	180	150	180	150	180	150	180
600 tr/min	265	150	36	33	236	132	30	26
300 tr/min	191	92	30	27	167	96	25	21
200 tr/min	161	77	26	25	137	82	23	19
100 tr/min	116	57	23	22	100	55	21	17
6 tr/min	37	9	16	17	29	7	18	15
3 tr/min	35	5	14	12	26	5	14	10
PV (cP)	74	58	6	6	69	36	5	5
YP (lbs/100ft ²)	117	34	24	21	98	60	20	16
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	32	4	12	11	23	4	14	9
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	34	5	12	11	24	6	13	10

Ces résultats reflètent parfaitement l'apparence de la boue KTG + gasoil qui ressemble à une colle transparente et très épaisse. En effet, pour la concentration choisie (5 %), cette boue est d'une viscosité très supérieure à celle du mélange AO + gasoil. Les contraintes mesurées aux différentes vitesses de rotation, les gels et la YP sont nettement plus élevés. Cependant, cette boue présente aussi une très grande PV et donc de très faibles rapports YP/PV. Cela traduit un modeste caractère rhéofluidifiant qui affecte lourdement les performances de ce fluide. Toutefois, l'inconvénient principal de cette boue réside dans sa grande sensibilité à la chaleur. Entre 150 °F et 180 °F, ce mélange perd une grande partie de sa viscosité et de sa consistance. Cela est clairement mis en évidence par la grande chute des valeurs des contraintes mesurées, des gels et de la YP entre ces deux températures. Par contre la PV reste tout aussi importante, ce qui réduit d'avantage l'efficacité de cette boue (un rapport YP/PV encore plus bas).

Ajouter à cela que le KTG présente une certaine difficulté à se dissoudre dans le gasoil sans un apport conséquent de chaleur. Cette difficulté s'accroît d'avantage pour les fortes concentrations (% KTG ≥ 4 %).

Il est vrai que la boue AO + gasoil est moins visqueuse et moins consistante, mais son caractère rhéofluidifiant, sa stabilité à la chaleur et sa maniabilité sont nettement plus intéressants.

Les résultats des mesures réalisées à l'aide du rhéomètre MC1 à 86°F, 150°F et 180°F après vieillissement, confirment parfaitement ces observations.

Le test de relaxation a donné pour la boue de KTG une courbe avec une viscosité constante dans le temps, ce qui est tout à fait concordant avec les résultats du gel (gel plat).

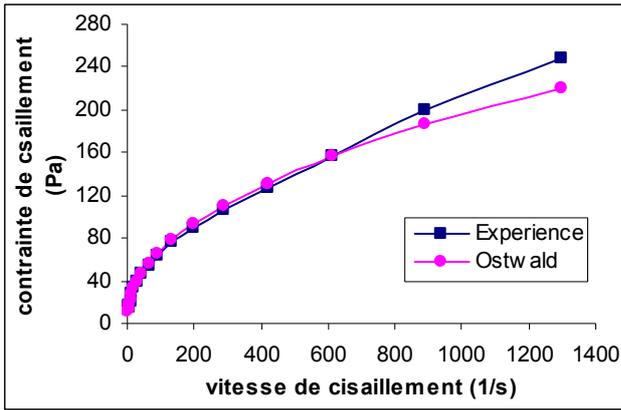
Pour cette boue aussi, le modèle d'Ostwald semble très bien représenter les rhéogrammes expérimentaux. Les valeurs des paramètres K et n de ce modèle ainsi que celles de la contrainte seuil sont rapportées dans le tableau Tab.VI.B.13. Les rhéogrammes correspondant sont regroupés dans les figures Fig.VI.B.40-45.

Tab.VI.B.13 : Valeurs des paramètres du modèle d'Ostwald et de la contrainte seuil pour les boues KTG + gasoil et AO + gasoil à 5 %, après vieillissement à 250°F

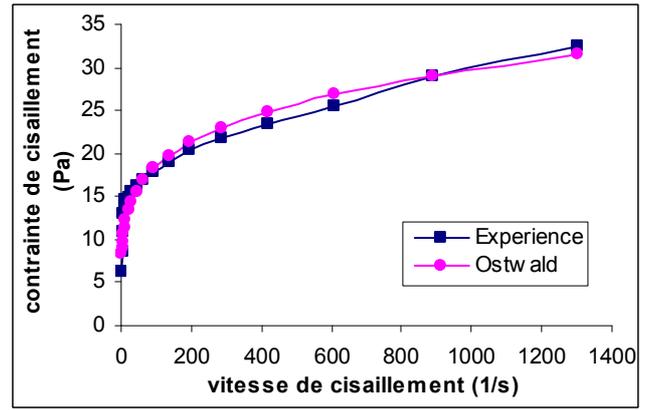
Température du test	Paramètres du modèle d'Ostwald		Contrainte seuil τ_0 (Pa)	
	KTG + gasoil	AO + gasoil	KTG + gasoil	AO + gasoil
86 °F	K = 8.208 n = 0.459 R ² = 98.76 %	K = 7.155 n = 0.206 R ² = 95.65 %	8.71	4.52
150 °F	K = 5.56 n = 0.436 R ² = 96.32 %	K = 6.237 n = 0.196 R ² = 94.02 %	7.41	4.75
180 °F	K = 0.176 n = 0.925 R ² = 96.72 %	K = 5.286 n = 0.202 R ² = 94.86 %	0.17	4.89

La comparaison des valeurs de K et n entre les deux types de boues, confirme la supériorité du caractère rhéofluidifiant de la boue AO + gasoil. Celle ci présente un plus faible indice de comportement n, donnant de plus grands rapports K/n. Cela est clairement reflété par la différence de courbure des rhéogrammes ; ceux du mélange KTG + gasoil sont nettement plus relevés. Ces derniers montrent aussi le grand écart de la viscosité au profit du fluide au KTG.

Ces résultats dévoilent aussi toute la sensibilité de la boue KTG + gasoil à la chaleur. Une chute totale de la contrainte seuil τ_0 (de 8.7Pa à 0.17Pa) et de l'indice K (de 8.1 à 0.176) est observée entre 86°F et 180°F, bien que le fluide garde toujours une difficulté à s'écouler.

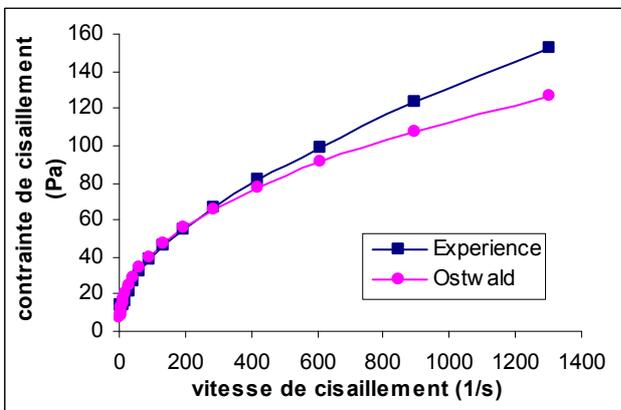


KTG

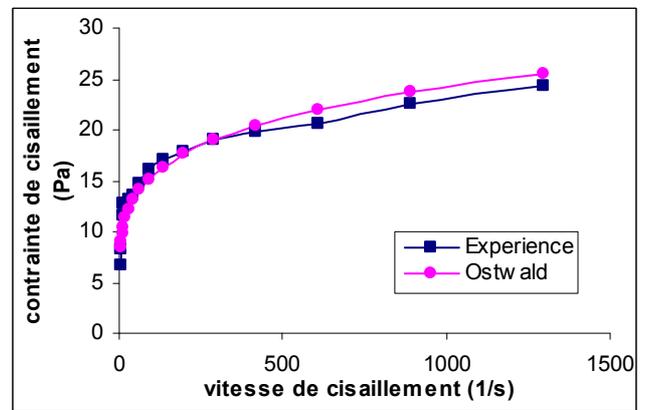


AO

Test à 86°F

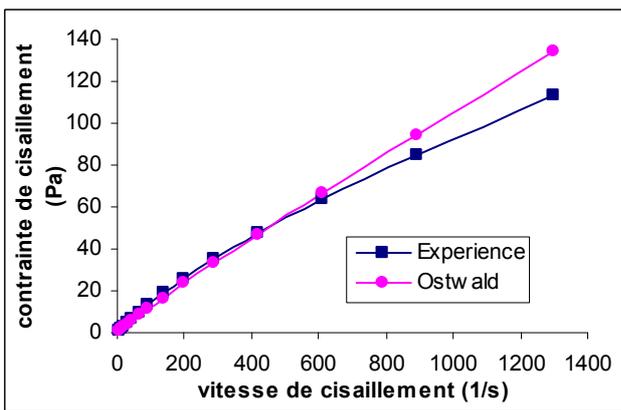


KTG

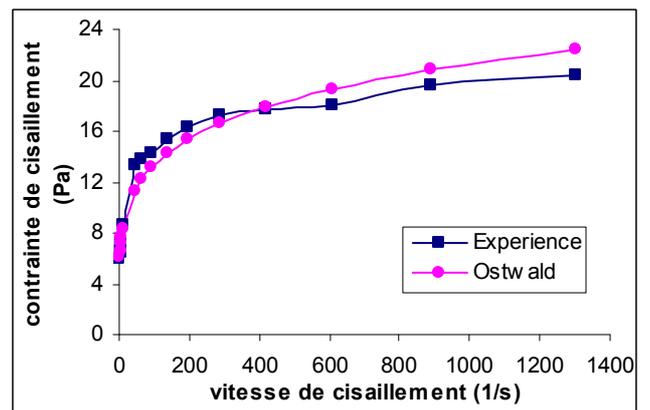


AO

Test à 150°F



KTG



AO

Test à 180°F

Fig.VI.B.40-45: Courbes d'équilibre d'écoulement des échantillons à 5% des boues KTG + gasoil et AO + Gasoil après vieillissement à 250°F pendant 16h

Ces résultats et commentaires sont à retenir sous la réserve que le KRATONG est un produit utilisé plutôt comme agent épaississant (pour augmenter la viscosité, la consistance et le gel) dans certaines boues à base de gasoil. IL n'est jamais utilisé comme viscosifiant pour le gasoil seul et encore moins avec d'aussi fortes concentrations. En plus, ces deux produits sont de nature et de structure complètement différentes. Le produit AO est une argile organophile à base de bentonite, alors que le KTG est purement synthétique. Aussi, dans la boue AO + gasoil la viscosité est obtenue grâce au gonflement du produit AO, alors que pour la boue au KTG, elle est due à la dissolution de ce dernier.

VI.B.2.2 Application dans les boues MI-VERSADRIL

Il s'agit de tester les performances du produit AO dans les boues à émulsion inverse MI-VERSADRIL 95/5 et 70/30 en comparaison avec le VG69, le viscosifiant MI utilisé. La boue 70/30 est de très courante utilisation, par contre la boue 95/5 est utilisée dans les zones où seulement de faibles pourcentages d'eau émulsionnée sont tolérés, en particulier au voisinage du réservoir. Cette boue présente aussi une composition extrême (95% gasoil et seulement 5% eau) qui constitue un examen sévère pour le caractère organophile du viscosifiant utilisé.

Ces deux boues appartiennent aussi à deux catégories différentes ; la 70/30 est une boue alourdie(avec la barite ou le CaCO₃) avec une densité de 10.5lbs/gal, alors que la 95/5 est une boue non alourdie de densité 7.5lbs/gal.

Pour ces deux boues, en utilisant les deux viscosifiant (le VG69 et le produit AO), les résultats des mesures de la stabilité électrique (ES) et des tests de rhéologie réalisés avec le rhéomètre Fann à 150°F (conformément aux normes API) avant et après vieillissement à 250 °F pendant 16h, sont affichés dans le Tableau Tab.VI.B.14.

Tab.VI.B.14 : Valeurs des paramètres PV, YP, Gel₀, Gel₁₀ et ES des boues 95/5 et 70/30 formulées avec le VG69 et le produit AO, avant et après vieillissement à 250°F

Type de boue	95/5				70/30			
	Avant vieil.		Après vieil.		Avant vieil.		Après vieil.	
Test	AO	VG69	AO	VG69	AO	VG69	AO	VG69
600 tr/min	25	16	37	26	46	77	42	67
300 tr/min	18	10	22	17	29	53	24	47
200 tr/min	14	8	17	13	22	47	17	40
100 tr/min	10	6	10	9	14	37	11	30
6 tr/min	7	3	3	5	4	21	3	16
3 tr/min	6	2	3	4	3	21	2	15
PV (cP)	7	6	15	9	17	24	18	20
YP (lbs/100ft ²)	11	4	7	8	12	29	6	27
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	15	4	5	5	4	20	4	15
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	18	7	11	7	8	25	5	19
ES (V)	2000	2000	2000	2000	1117	804	34	2000

Le VG69 présente une très bonne performance dans la boue 70/30, la YP est élevée (YP = 29lbs/100ft²), les gels sont satisfaisants et la stabilité électrique est bonne.

Après vieillissement, la boue a maintenu pratiquement la même YP (27lbs/100ft²) alors que les gels ont légèrement diminué et la stabilité électrique s'est nettement améliorée, avec l'obtention d'une valeur maximale (ES = 2000V) synonyme d'une grande stabilité de l'émulsion.

Pour cette boue, le produit AO présente une très mauvaise performance avec une YP et des gels nettement plus réduits que le VG69 que ce soit avant ou après vieillissement. Les valeurs de ES sont faibles, ce qui indique la fragilité de l'émulsion qui est carrément cassée après vieillissement (ES = 34).

Inversement, le produit AO présente une très bonne performance dans la boue 95/5 surtout avant vieillissement, avec une excellente YP (11lbs/100ft²), de très bons gels et de bonnes lectures aux faibles vitesses de rotation (3, 6 tr/min). Pour les argiles organophiles ordinaires (comme le VG69), de telles valeurs de la YP et des gels ne sont obtenues que par l'ajout d'adjuvants épaississants spécifiques tels que le VERSA-RHP. Après vieillissement, le produit AO perd sa supériorité pour donner la même YP que le VG69 mais avec de meilleurs gels. Pour sa part, la stabilité électrique est à sa valeur maximale (ES = 2000V), ce qui signifie une très bonne émulsion.

Ainsi le produit AO semble promettre un assez bon usage dans la boue 95/5, mais il est loin de donner satisfaction dans la boue 70/30.

En réalité, lors de la formulation de ces systèmes, le gasoil prend une bonne viscosité au départ par l'ajout du produit AO puis de la chaux. Cependant, le mélange se fluidifie presque totalement immédiatement après l'addition des premières gouttes des émulsifiants VERSA-MUL et VERSA-COAT. L'ajout de la saumure ne fait pas changer les choses.

Toutes les tentatives pour éviter ce phénomène que ce soit par le changement des proportions et de l'ordre de mixage des constituants ou même par la modification du produit AO, ont été vaines ; la viscosité chute juste après l'ajout des émulsifiants.

Cela s'explique par une interaction fatale entre les additifs VERSA-MUL et VERSA-COAT (émulsifiants anioniques) et l'argile organophile AO qui est un produit cationique (bentonite traitée avec un tensioactif cationique). Cela explique aussi la fragilité de l'émulsion reflétée par les faibles valeurs de la stabilité électrique ES. Ainsi, il y a incompatibilité du produit AO avec certains constituants de ces boues (les émulsifiants anioniques).

Le VG69 par contre, ne donne aucune viscosité dans le gasoil seul, ce n'est qu'après la formation de l'émulsion que la boue prend sa viscosité et sa consistance.

En fait, l'eau constitue un agent d'activation pour ce viscosifiant, ses performances sont meilleures dans les boues à haut pourcentage en phase aqueuse. La chaleur et l'agitation semblent aussi fournir un bon apport. [112]

Le VG69 qui est aussi une bentonite traitée aux amines, présente un comportement totalement différent de celui du produit AO qui gonfle parfaitement dans le gasoil.

VI.B.3 L'argile hydrophile modifiée AHM

VI.B.3.1 Application dans l'eau

Le produit AHM est l'issu d'une modification apportée à la Mont-Na. Son apparence et son comportement sont tout à fait différents de ceux du produit de départ. Il se présente sous l'aspect d'une pâte blanche, humide et facilement modelable. Un échantillon est présenté en photo sur la figure Fig.VI.B.46.

L'idée d'utiliser un tel produit comme viscosifiant dans les boues de forage est inspirée du fluide MMH-Bentonite, reconnu comme étant d'une grande performance.

L'objectif est de formuler une boue à base d'eau qui soit dotée d'un caractère rhéofluidifiant très prononcé, lui conférant des performances optimales, surtout pour ce qui est du nettoyage du trou (transport et mise en suspension des déblais), la protection des parois et la facilité de mise en circulation. Un tel caractère implique en particulier de grandes valeurs de YP et une PV très réduite.

Les formulations MMH-Bentonite se distinguent effectivement par de fortes valeurs de la YP (15-60 lbs/100ft²), un PV minimale et des gels élevés et fragiles (gel₀ et gel₁₀ : 10-60 lbs/100ft²) [112].

Comme le fluide MMH-Bentonite, l'argile hydrophile modifiée AHM est un produit cationique auquel il faut éviter tout additif anionique susceptible d'affecter ces propriétés ou ses performances.

Pour notre produit AHM, il s'agit de tester sa robustesse vis à vis de la qualité de l'eau utilisée, de voir l'évolution des propriétés rhéologiques de la boue en fonction du %AHM, puis d'étudier le comportement de ce fluide en fonction du %AHM et de la température, après vieillissement dynamique à 250°F pendant 16h.

a. Test de robustesse du produit AHM

Il est question de tester des échantillons de boue à 6% en AHM, formulés respectivement avec de l'eau brute du robinet (de la région de HMD), de l'eau adoucie et de l'eau distillée. Les résultats des mesures rhéologiques réalisées avec le rhéomètre Fann à 120°F (selon les normes API pour les boues à base d'eau) avant et après vieillissement, sont affichés dans le tableau Tab.VI.B.15.

TabVI.B.15 : Valeurs des paramètres YP, PV, gel₀ et gel₁₀ des échantillons de boue à 6% en AHM formulés avec différentes qualités d'eau

Test	Avant vieillissement			Après vieillissement		
	Brute	Adoucie	Distillée	Brute	Adoucie	Distillée
600 tr/min	79	91	80	76	82	79
300 tr/min	70	82	68	69	74	72
200 tr/min	62	74	64	64	69	68
100 tr/min	57	66	59	59	62	61
6 tr/min	33	33	32	31	32	28
3 tr/min	26	26	22	25	23	22
PV (cP)	9	9	12	7	6	7
YP (lbs/100ft ²)	61	73	56	62	68	65
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	24	27	24	23	21	20
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	26	30	27	25	22	21

En premier lieu, il faut noter que ces valeurs traduisent un excellent comportement rhéologique de la boue au produit AHM. La YP est très élevée, la PV très réduite, les gels sont bons et le vieillissement à haute température ne semble pas avoir d'influence.

D'un autre coté, les performances de ce fluide ne semblent pas dépendre de la qualité de l'eau utilisée. Avant vieillissement, la boue à l'eau adoucie semble légèrement prendre le dessus et laisser un peu en arrière l'échantillon à l'eau distillée. Après vieillissement par contre, les résultats sont sensiblement identiques.

Cet essai met en évidence la robustesse du produit AHM vis à vis de la qualité de l'eau utilisée. Cela permet de formuler la boue sans aucun additif ou traitement préalable de l'eau, ce qui constitue un atout très pratique pour ce produit.

b. Etude de l'effet du % en AHM

Afin d'étudier la variation des paramètres rhéologiques de la boue AHM+ eau (du robinet) en fonction du %AHM, des mesures avec le rhéomètre Fann sont effectuées sur des échantillons de boue à différentes concentrations. Ces tests sont réalisés à 120°F (48.9°C) pour des boues de teneur : 3%, 4%, 5%, 6% et 7% (10.5, 14, 17.5, 21, et 24ppb) respectivement. Deux répétitions au centre (à 5%) sont ajoutées pour évaluer la variabilité naturelle. Les résultats sont présentés dans le tableau Tab.VI.B.16.

TabVI.B.16 : Valeurs des paramètres YP, PV, gel_0 et gel_{10} de la boue AHM + eau à différents pourcentages

%AHM	3%	4%	5%	6%	7%	5%	5%
600 tr/min	15	42	62	79	89	61	64
300 tr/min	13	35	54	70	81	53	55
200 tr/min	11	32	49	62	73	48	51
100 tr/min	10	29	44	57	67	41	43
6 tr/min	7	18	29	33	36	31	33
3 tr/min	7	14	20	26	29	23	25
PV (cP)	2	7	8	9	8	8	9
YP (lbs/100ft ²)	11	28	46	61	73	45	46
Gel_0 (lbs/100ft ²)	7	13	19	24	27	19	20
Gel_{10} (lbs/100ft ²)	8	14	22	26	28	22	21

Ces résultats démontrent bien que la boue AHM + eau présente d'excellentes propriétés rhéologiques, de nature à satisfaire amplement les objectifs tracés au départ.

En effet cette boue présente un caractère rhéofluidifiant très prononcé et ces performances sont très intéressantes au-delà du %AHM \geq 4%.

La YP est très élevée et évolue rapidement avec le %AHM, elle passe de 28lbs/100ft² à 4% pour atteindre 73lbs/100ft² à 7% seulement.

La PV est très réduite et n'évolue presque pas avec le %AHM (de 7 à 9cP). Cela implique des valeurs très conséquentes du rapport YP/PV qui augmente aussi avec la concentration.

Le gel présente de bonnes valeurs et n'évolue que moyennement avec le %AHM. Le gel_0 et le gel_{10} sont très proches ce qui indique que cette boue présente un gel plat.

Une telle évolution de ces paramètres rhéologiques en fonction du %AHM est très bénéfique. Elle permet d'augmenter rapidement la valeur de la YP, tout en assurant une augmentation adéquatement modérée (non excessive) du gel, sans risquer une quelconque élévation de la PV.

Du point de vue performance, cela veut dire qu'avec seulement de faibles apports supplémentaires en viscosifiant AHM (2 à 3%), on peut augmenter d'une manière très conséquente la capacité de mise en suspension et de transport des déblais (pour le nettoyage du trou) et assurer une bonne protection des parois, sans fournir pour autant, de plus grands efforts pour la mise en circulation et l'écoulement de la boue.

Noter que ces résultats sont du même ordre de grandeur, et qui plus est certains sont meilleurs que les gammes de valeurs rapportées pour le système MMH-Bentonite [67] [112]. Cela bien sûr, sous la réserve que les compositions et les proportions sont différentes.

La reproductibilité de ces résultats est mise en évidence par les tests des échantillons à 5%.

Pour les concentrations les plus intéressantes (%AHM \geq 5%), ces tests sont complétés par les mesures avec le rhéomètre MC1.

La courbe de relaxation confirme le résultat du gel plat, la viscosité est pratiquement constante dans le temps. Une courbe typique est rapportée sur la figure Fig.VI.B.47.

Les rhéogrammes expérimentaux semblent traduire un comportement rhéologique très particulier. Ces courbes d'équilibre d'écoulement commencent pour des valeurs très modérées de la contrainte de cisaillement. Elles présentent une concavité très aiguë au départ (à partir des faibles, jusqu'aux moyennes valeurs de $\dot{\gamma}$) pour finir sur une droite de très faible pente (courbe plate) à partir des moyennes valeurs de $\dot{\gamma}$. Cette allure concorde parfaitement avec les résultats de la YP et PV et confirme le caractère rhéofluidifiant très poussé de cette boue, elle est typique du fluide MMH-Bentonite.

Le modèle de Williamson semble le seul qui soit vraiment adéquat aux rhéogrammes expérimentaux de ces échantillons. En réalité, ni les résultats obtenus, ni les performances du rhéomètre utilisé (gamme des faibles vitesses de cisaillement $\dot{\gamma} < 10^{-1} \text{s}^{-1}$ inaccessible) ne permettent de recourir à ce genre de modèle.

La loi de Williamson permet de tenir compte de l'existence des deux régions Newtoniennes (non mises en évidences dans les rhéogrammes). Elle s'écrit :

$$\tau = \frac{A\dot{\gamma}}{B + \dot{\gamma}} + C\dot{\gamma} \quad \text{avec :}$$

$$C = \mu_{\infty}$$

$$\mu_0 = \frac{A}{B} + C$$

Les valeurs des paramètres A, B, et C du modèle de Williamson, pour les échantillons à 5%, 6% et 7%, sont rapportées dans le tableau Tab.VI.B.17

Tab.VI.B.17: Valeurs des paramètres du modèle de Williamson pour la boue AHM + eau à différents pourcentages

% AHM	A	B	C (Pa.s)	R ² (%)
5%	22.93	13.5	0.00235	97.3 %
6%	39.777	10.198	0.00537	96.3 %
7%	70.161	13.866	0.00218	97.42 %

Les rhéogrammes expérimentaux sont regroupés dans les figures Fig.VI.B.48-50

Les résultats des tests de rhéologie reflètent vraiment le comportement de cette boue. Elle est consistante, fragile et légère en même temps. Au repos, elle présente l'aspect d'un gel épais, avec une grande capacité de mise en suspension, mais qui est facilement mis en écoulement.

Cette capacité est concrétisée par des essais très réussis de mise en suspension d'objets métalliques divers, réalisés avec des échantillons à 5% et 6%. Des pièces de 5DA, 10Da, et de 50DA ont été parfaitement gardées en surface, tel montré sur les photos présentées sur la figure Fig.VI.B.51.

La densité de cette boue, mesurée pour un échantillon à 5% est de 1.03 g/cm³.



Fig.VI.B.46 : Echantillon du produit AHM (pâte blanche)

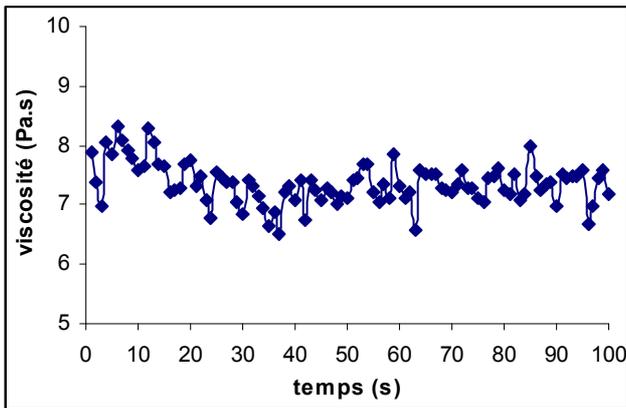
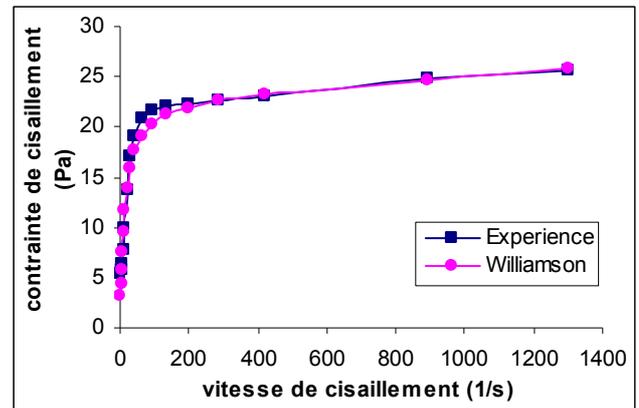
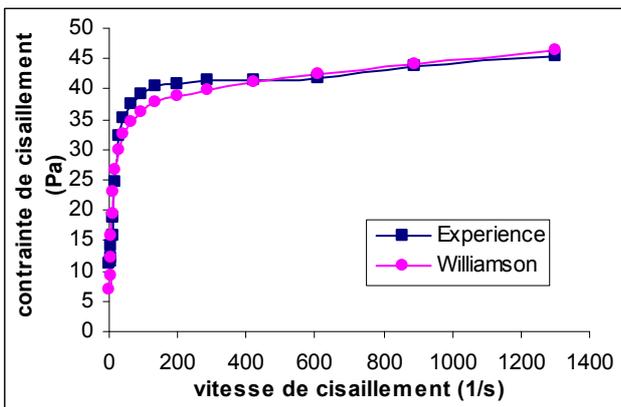


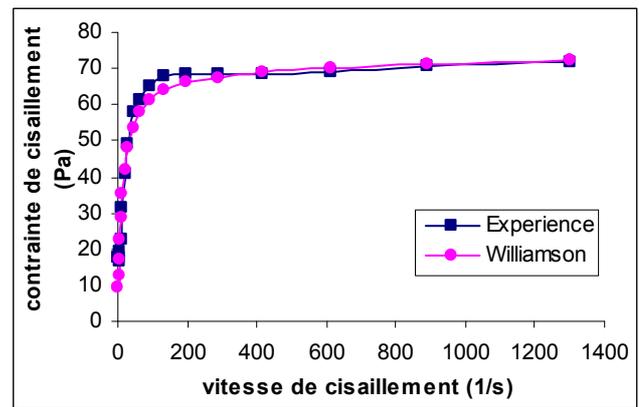
Fig.VI.B.47 : Courbe typique du test de relaxation de la boue AHM + eau



Echantillon à 5%



Echantillon à 6%



Echantillon à 7%

Fig.VI.B.48-50 : Courbes d'équilibre d'écoulement des échantillons de la boue fraîche AHM + eau à différents %

c. Comportement de la boue après vieillissement à haute température

Le but du plan adopté est d'étudier la variation des paramètres rhéologiques de la boue AHM + eau en fonction du %AHM et de la température, après vieillissement des échantillons à 250°F pendant 16h. Cela permet de voir le comportement de la boue et d'évaluer ses performances dans des conditions proches de celles du bas du trou.

➤ Mesures avec le Fann 35SA

Les résultats du plan réalisé concernant les tests réalisés avec le rhéomètre Fann sont affichés dans le tableau Tab.VI.B.18

Tab.VI.B.18 : Valeurs des paramètres YP, PV, gel₀ et gel₁₀ pour le plan réalisé de la boue AHM + eau après vieillissement à 250°F

Essai	1	2	3	4	5	6
600 tr/min	56	55	56	76	72	77
300 tr/min	50	49	51	69	67	72
200 tr/min	46	45	46	64	63	68
100 tr/min	42	41	42	59	57	61
6 tr/min	25	22	20	31	30	28
3 tr/min	19	19	17	25	25	22
PV (cP)	6	6	5	7	5	5
YP (lbs/100ft ²)	44	43	46	62	65	67
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	18	18	18	23	24	23
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	19	18	19	25	24	25

Essai	7	8	9	10	11
600 tr/min	89	82	83	76	72
300 tr/min	82	77	77	70	67
200 tr/min	75	74	72	66	61
100 tr/min	69	68	65	60	55
6 tr/min	36	32	33	31	28
3 tr/min	28	26	28	23	22
PV (cP)	7	5	6	6	5
YP (lbs/100ft ²)	75	72	71	64	62
Gel ₀ (lbs/100ft ²)	28	27	29	22	23
Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	30	27	29	23	22

Il apparaît clairement que les résultats des essais réalisés à 120 °F (essais 1, 4 et 7) sont très proches de leurs semblables (de même %) du tableau Tab.VI.B.16. Cela signifie que le vieillissement à 250°F pendant 16h n'a pratiquement eu aucun effet sur ces paramètres rhéologiques. Cela est une propriété très importante, car généralement le vieillissement à haute température peut avoir des effets très critiques sur les boues de ce type (suspension argileuse à base d'eau).

La PV est pratiquement constante, elle n'évolue ni en fonction de la température, ni du %AHM, elle est toujours très réduite ($PV \leq 7$ cP).

De même qu'avant vieillissement, la YP est toujours très élevée, et évolue assez rapidement en fonction du %AHM. La température par contre, ne semble avoir qu'un effet minime. Ainsi, cette boue conserve de grand rapport YP/PV et donc un très bon caractère rhéofluidifiant quelque soit les conditions (dans le domaine expérimental).



Fig.VI.B.51: Exhibition de la capacité de mise en suspension de la boue AHM + eau

Malgré une très légère diminution par rapport aux résultats avant vieillissement, le gel est toujours plat et maintien de très bonnes valeurs. Il préserve la même évolution en fonction du %AHM, et ne semble pas varier en fonction de la température.

Ces résultats prouvent ainsi, la robustesse de la boue AHM + eau au vieillissement à haute température et la stabilité de ses paramètres rhéologiques à la chaleur.

➤ Mesure avec le Rhéolab MC1

Le même plan d'essais est réalisé pour les tests rhéologiques avec le MC1.

Les courbes de relaxation n'ont décelé aucun changement dans le caractère thixotrope de cette boue.

Les rhéogrammes expérimentaux semblent traduire le même type d'écoulement qu'avant vieillissement, et obéir seulement au modèle de Williamson, qui d'ailleurs présente une très bonne adéquation.

Des mesures de contrainte seuil ont été réalisées pour chacun des essais du plan.

Les valeurs des paramètres A, B, C du modèle retenu, ainsi que celles de la contrainte seuil, sont rapportées dans le tableau Tab.VI.B.19.

Les rhéogrammes expérimentaux sont regroupés sur les figures Fig.52-61.

Tab.VI.B.19 : Valeurs de la contrainte seuil et des paramètres du modèle de Williamson pour le plan réalisé de la boue AHM + eau après vieillissement à 250°F

Essai	A	B	C (Pa.s)	R ² (%)	τ_0 (Pa)
1	29.047	3.864	0.00964	99.02 %	3
2	30.95	3.90	0.0115	94.79 %	6.28
3	29.887	5.183	0.00735	96.73 %	7.55
4	32.424	7.386	0.00758	99.07 %	5.72
5	31.687	7.23	0.01198	98.52 %	7.06
6	31.987	6.72	0.00942	95.86 %	9.38
7	43.475	4.914	0.0143	96.58 %	9.16
8	45.658	3.571	0.0196	94.53 %	10.96
9	47.512	1.644	0.0188	94.74 %	14.39
10	32.53	7.642	0.0130	98.81 %	6.46
11	30.706	7.663	0.00991	98.40 %	6.42

La contrainte seuil est très modérée et n'évolue que modestement, que ce soit en fonction du %AHM, ou de la température. Cela explique la fragilité de la boue qui est facilement mise en écoulement. Cet avantage va directement au profit du traitement (élimination des solides en surface), du pompage et de la circulation de cette boue.

Les résultats des répétitions au centre (essai 5, 10 et 11) sont très proches, ce qui est synonyme d'une bonne reproductibilité.

Une petite comparaison entre la boue de la Mont-Na et celle du produit AHM en tenant compte des résultats de l'échantillon à 6 % (bien que les essais aient été faits à des températures différentes : 25°C et 49°C respectivement), permet de mettre à découvert bien des différences. En effet, la boue au produit AHM présente une contrainte seuil nettement plus réduite (5.72 Pa au lieu de 11.23 Pa pour la Mont-Na, voir les pages 76 et 100), mais avec des gels plus élevés (24lbs/100ft² au lieu de 13lbs/100ft²). Elle présente aussi une YP nettement plus conséquente (62 lbs/100ft² au lieu de 14 lbs/100ft²) pour la même valeur de la PV (7cP), voir les pages 76 et 98. Cela implique un même ordre de différence pour le rapport YP/PV, et donc du caractère rhéofluidifiant. D'ailleurs l'allure des rhéogrammes le montre très bien. Ajouter à cela, la grande stabilité thermique de la boue AHM + eau.

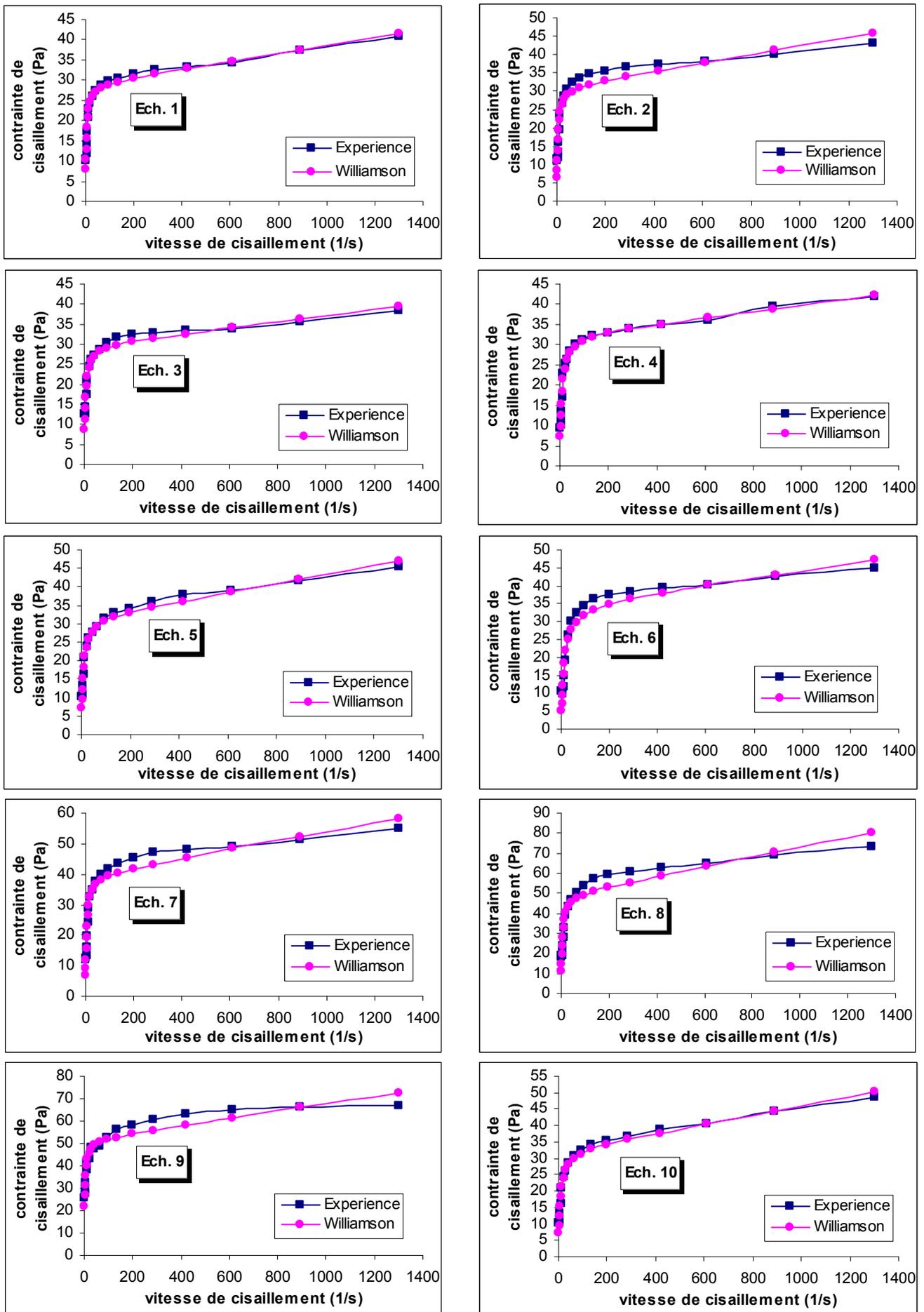


Fig.VI.B.52-61 : Courbes d'équilibre d'écoulement des échantillons de la boue AHM + eau après vieillissement à 250°F

Ainsi, grâce aux modifications opérées sur la Mont-Na, on a obtenu l'argile hydrophile modifiée AHM, dont les propriétés de la boue à base d'eau sont nettement meilleures que celles du produit de départ. Les résultats des tests de rhéologie permettent d'apprécier la supériorité des nouvelles performances acquises à cette boue.

VI.B.3.2 Etude de l'influence des paramètres de synthèse du produit AHM

L'argile hydrophile modifiée AHM est une Mont-Al-OH obtenue par le traitement, sous des conditions opératoires bien définies, d'une suspension de Mont-Na par une solution d'aluminium partiellement hydrolysé.

Les caractéristiques du produit Mont-Al-OH sont entièrement dépendantes de ces conditions de synthèse. A priori, ces mêmes paramètres peuvent dicter en grande partie, le comportement rhéologique de la boue à base d'eau d'un tel produit.

Les résultats du plan adopté dans cette partie, permettent de décrire et d'évaluer les effets de chacun de ces facteurs, ainsi que celui de la concentration de la boue.

Les tests de rhéologie sont réalisés uniquement avec le rhéomètre MC1. La YP et la PV sont déduites à partir des rhéogrammes expérimentaux.

Les résultats des 29 essais du plan, concernant les réponses PV, YP, gel_0 et gel_{10} sont affichés dans le tableau Tab.VI.B.20.

Les rhéogrammes expérimentaux traduisent un type d'écoulement hybride, entre celui de la boue de Mont-Na et celle du produit AHM. En effet, ces courbes présentent des contraintes de cisaillement du même ordre de grandeur que celles de la première boue, mais avec des allures semblables à celles de la deuxième. Cependant, selon la position du point expérimental dans le domaine d'étude, la tendance peut être plus ou moins accrue, vers l'un ou l'autre de ces deux comportements.

Néanmoins, le seul modèle rhéologique ayant présenté une corrélation satisfaisante pour l'ensemble des essais, est bien le modèle de Williamson.

Tab.VI.B.20 : Valeurs des paramètres YP, PV, gel_0 et gel_{10} pour le plan réalisé de la boue aux produits Mont-Al-OH

Essai	PV (cP)	YP (lbs/100ft ²)	gel_0 (lbs/100ft ²)	gel_{10} (lbs/100ft ²)
1	13.84	167.8	45.8	47.4
2	10.6	37.4	20.2	20.4
3	6.34	12.11	8.6	8.5
4	15.53	83.14	26.4	26.4
5	6.88	14.08	10.2	10.2
6	15.92	100	31	32
7	6.96	77.61	23.8	24
8	7.47	16.46	11.64	11
9	6.39	14.08	8.5	8.88
10	35.47	239.77	74.6	80.6
11	9.88	67.15	21.4	21
12	7.22	14.33	8	8
13	22.74	171.9	51	50.4
14	7.68	46	8.2	8.8
15	7.5	14.64	14	16
16	31.72	154.32	41	41.2
17	7.75	63.19	35.8	35
18	14.96	74.27	23.6	23.2

19	13.12	85.3	26.8	29.6
20	5.57	49.62	13.5	14
21	9.55	74.31	29.2	29.4
22	4.39	84.5	18.96	19.66
23	26.18	182.5	134	138
24	9.23	82.2	31.2	32
25	7.56	10.83	8.72	8.6
26	24.22	122.32	40.6	41.2
27	4.84	64.7	17	18.6
28	7.33	62.86	16.5	16.8
29	6.62	55.72	15	17.4

Les paramètres du modèle retenu, accompagnées de la proportion R^2 (%) de la variance qu'il permet d'expliquer pour chaque échantillon, sont présentés dans le tableau Tab.VI.B.21. Les valeurs de la contrainte seuil sont rapportées dans le même tableau. Les rhéogrammes expérimentaux, sont regroupés dans les figures Fig.VI.B.62-90.

Tab.VI.B.21: Valeurs de la contrainte seuil et des paramètres du modèle de Williamson pour le plan réalisé de la boue aux produits Mont-Al-OH

Essai	τ_0	A	B	C (Pa.s)	R^2 (%)
1	14.57	83.827	14.614	0.01159	98.96 %
2	3.42	18.208	5.826	0.01041	95.78 %
3	1.82	5.908	6.119	0.00627	91.23 %
4	9.89	41.077	10.612	0.01468	97.06 %
5	1.83	6.863	4.537	0.00677	93.35 %
6	8.75	49.756	13.031	0.01467	97.53 %
7	7.81	38.2444	9.706	0.00625	98.16 %
8	1.88	8.135	5.6	0.00727	93.95 %
9	1.37	6.884	8.362	0.00631	90.91 %
10	31.77	118.002	9.44	0.0334	97.33 %
11	7.84	33.146	10.339	0.00923	97.93 %
12	1.05	7.034	7.785	0.0071	93.75 %
13	21.5	85.01	11.11	0.021	95.71 %
14	1.86	23.285	19.416	0.00688	91.6 %
15	1.15	7.093	3.971	0.00746	94.92 %
16	12.34	77.331	15.681	0.0295	96.85 %
17	7.13	30.692	4.83	0.00745	99.09 %
18	6.55	37.474	13.89	0.0136	97.58 %
19	11.84	42.087	10.171	0.0123	96.09 %
20	4.36	24.432	10.071	0.00515	98.54 %
21	8.71	36.308	6.839	0.00907	99.09 %
22	7.62	42.617	18.016	0.00301	98.45 %
23	49.43	87.65	1.118	0.026	91.6 %
24	8.89	40.264	7.83	0.00865	99.03 %
25	1.68	5.218	2.814	0.00756	94.3 %
26	12.41	60.451	10.848	0.023	96.63 %
27	4.7	29.909	12.633	0.00626	99.8 %
28	4.04	31.483	15.254	0.00643	97.87 %
29	5.14	27.427	13	0.005	98.64 %

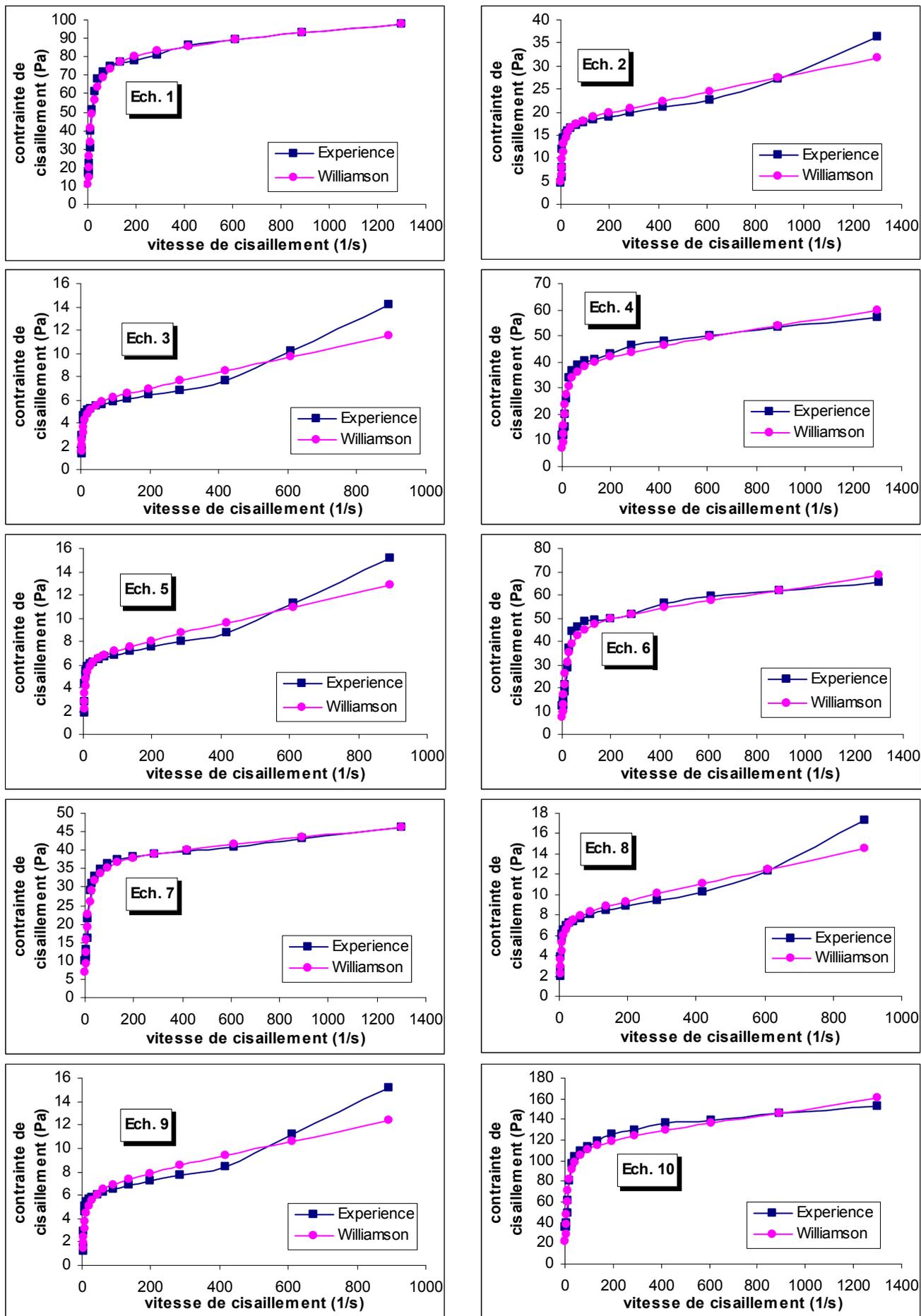


Fig.VI.B.62-71 : Courbes d'équilibre d'écoulement des échantillons 1-10 de la boue aux produits Mont-Al-OH

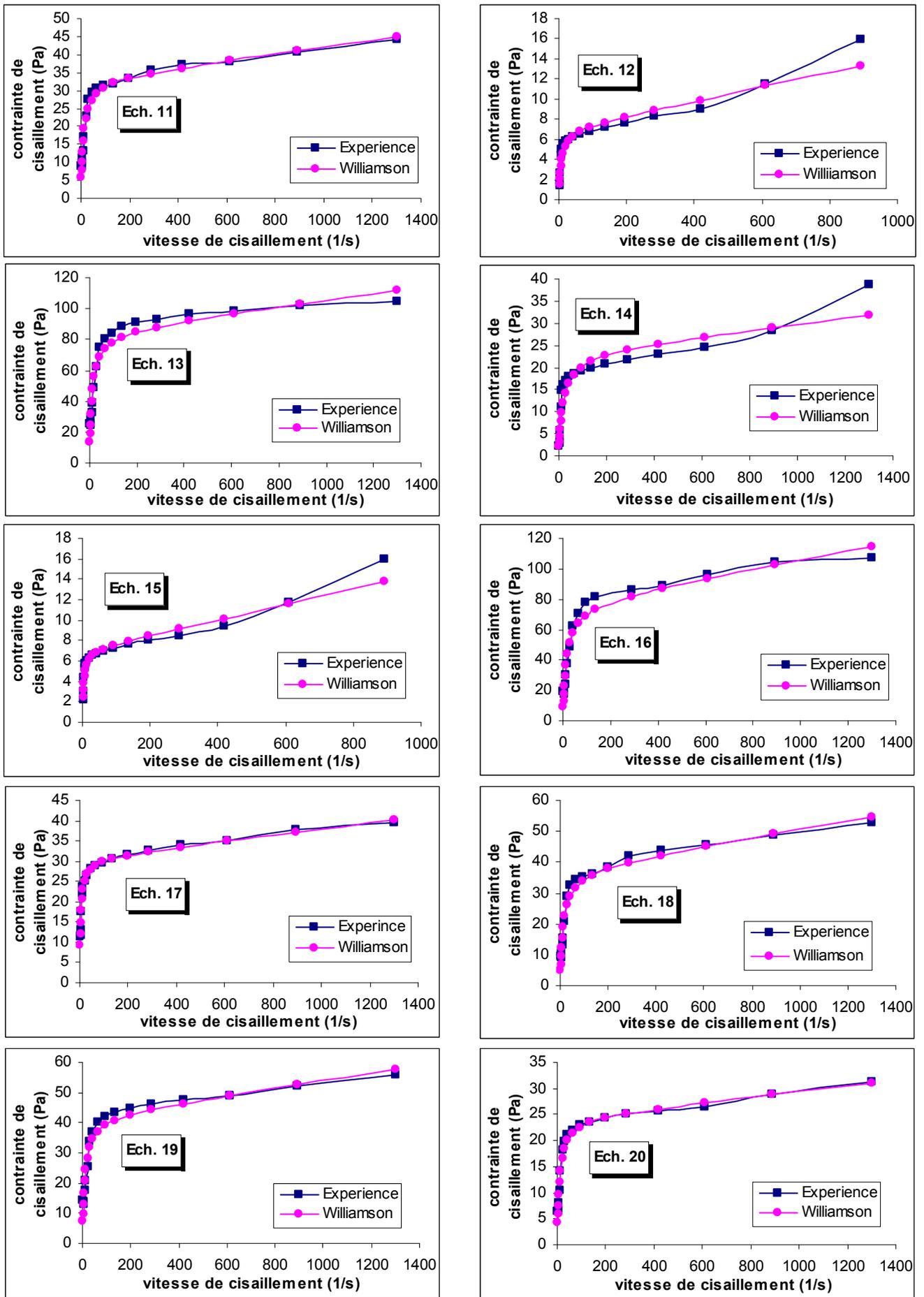


Fig.VI.B.72-81 : Courbes d'équilibre d'écoulement des échantillons 11-20 de la boue aux produits Mont-Al-OH

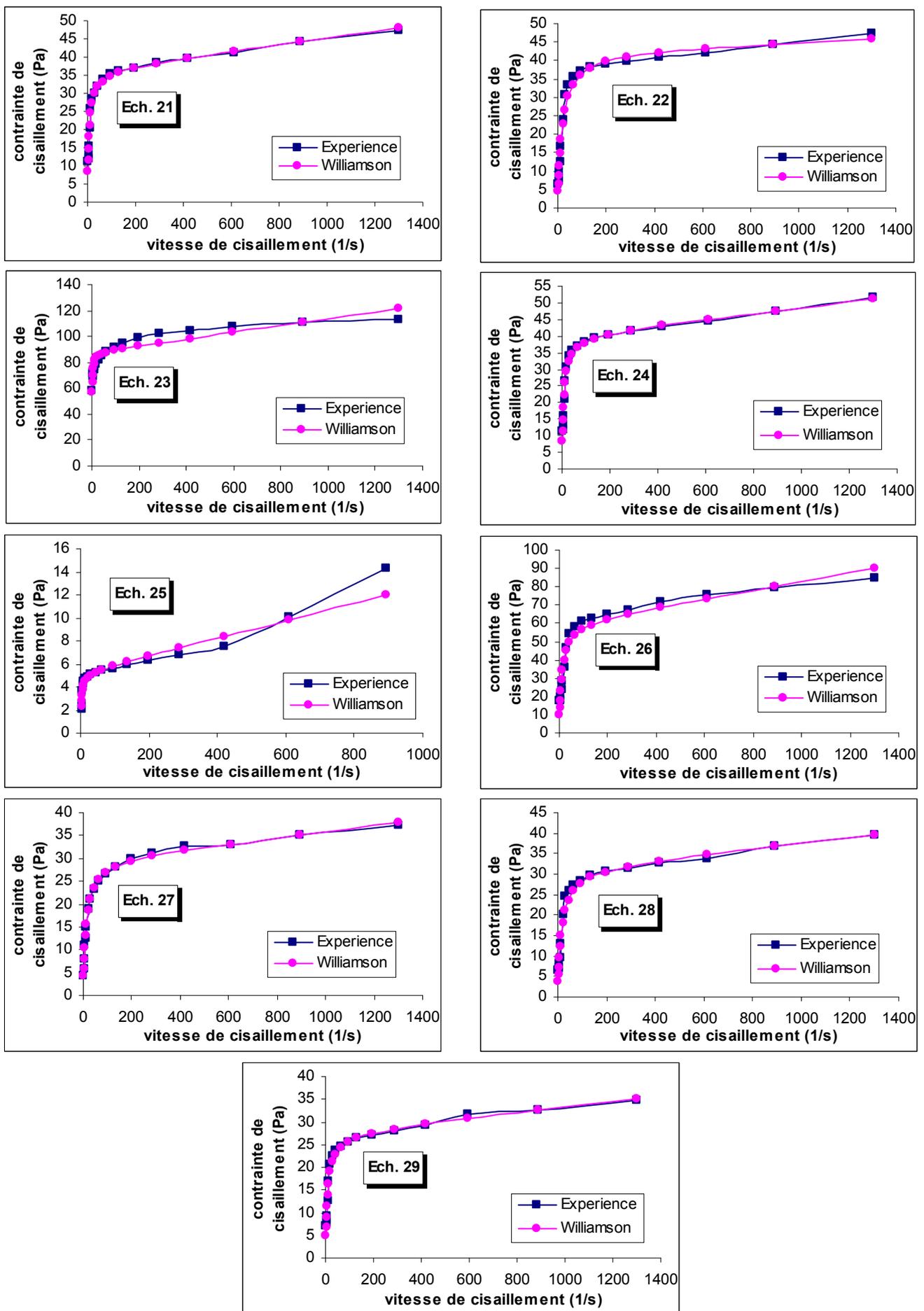


Fig.VI.B.82-90 : Courbes d'équilibre d'écoulement des échantillons 21-29 de la boue aux produits Mont-Al-OH

VII. Modélisation

Introduction

Cette partie est consacrée à la modélisation fine des paramètres rhéologiques étudiés. Les modèles empiriques obtenus permettront de décrire et de prédire l'évolution de chacune de ces réponses, en fonction des facteurs retenus, et de déterminer l'influence de ces derniers. Cela permettra de cerner avec précision, le comportement rhéologiques des boues formulées

Le modèle retenu a priori pour chaque réponse est un modèle quadratique (du second degré) avec interactions. Il permet de mettre en évidence les courbures des surfaces de réponses dues aux effets non linéaires des facteurs, et de tenir comptes des interactions entre ces derniers.

La méthode de calcul utilisée est la régression multilinéaire (MLR). Le principe est de trouver pour chaque réponse l'ensemble des coefficients qui résout le mieux, le système d'équations généré par le couple modèle adopté et plan réalisé, en minimisant les écarts des résidus. Les points expérimentaux sont représentés en coordonnées centrées réduites.

Le modèle mathématique ainsi calculé doit être le plus proche possible de la loi réelle de l'évolution de la réponse. Pour cela, il doit expliquer au mieux les résultats obtenus au cours des essais. Cela signifie que l'erreur d'adéquation (d'ajustement) doit être la plus faible possible, soit de l'ordre de grandeur de l'erreur expérimentale.

D'un autre côté, la qualité d'un travail de modélisation, se juge par la qualité des prédictions qu'il permet de faire. Un bon plan d'expériences, est un plan qui permettra d'obtenir une erreur sur la réponse prédite qui soit du même ordre de grandeur que l'erreur sur la réponse mesurée.

Le modèle jugé adéquat doit franchir le test de validation. Ainsi, les réponses prédites en n'importe quel point du domaine d'étude, doivent être statistiquement proches des réponses mesurées en ces points, compte tenu du niveau de confiance adopté ($1 - \alpha = 0.95$).

Le modèle validé servira par la suite à faire des prévisions dans tout le domaine d'étude, à suivre l'évolution de la réponse prédite et à évaluer et interpréter les effets des facteurs et de leurs interactions.

Selon ce raisonnement, le traitement des résultats expérimentaux pour la modélisation, se fera dans l'ordre des étapes suivantes :

- Calcul des coefficients du modèle et simplification des termes négligeables.
- Evaluation du degré d'adéquation du modèle et de sa qualité prédictive.
- Validation du modèle
- Exploitation du modèle retenu
- Evaluation des corrélations entre les réponses étudiées.

Cette démarche permettra ainsi, de mettre en valeur et d'exploiter à fond, les avantages qu'offre l'application de la méthode des plans d'expériences.

La procédure développée pour le traitement des résultats expérimentaux est le fruit de la combinaison des deux logiciels de plans d'expériences ; le Modde 0.5 DEMO et le JMP DEMO [110], [111].

VII.1. La montmorillonite sodique Mont-Na

Les paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na dans l'eau distillée, retenus pour la modélisation en fonction du pourcentage de Mont-Na sont : gel_0 , gel_{10} , la contrainte seuil τ_0 et les paramètres des modèles de Casson (τ_{0C} et μ_{pC}) et de Sisko (μ_∞ , K et n).

Les notations suivantes sont utilisées sur les différentes figures :

τ_0 : CSS (contrainte seuil statique)

Modèle de Casson : τ_{0C} : AC, μ_{pC} : BC.

Modèle de Sisko : μ_∞ : AS.

❖ Calcul des modèles :

Pour chacune des réponses étudiées, les coefficients du modèle calculés par la méthode des moindres carrés, sont affichés dans le tableau Tab.VII.1. La valeur de chaque coefficient est accompagné par l'erreur d'estimation $\sigma(\hat{a})$.

Tab.VII.1 : Coefficients des modèles représentatifs des paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na, en fonction de la concentration

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	τ_0 (Pa)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)		τ_{0C} (Pa)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	29.14	0.58	44.97	1.79	44.61	1.98	23.65	1.89
x	20.22	0.37	34.28	1.14	34.47	1.26	17.27	1.21
x^2	3.55	0.26	6.06	0.81	6.36	0.90	2.78	0.86

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	μ_{pC} (Pa.s)		μ_∞ (Pa.s)		K		n	
	$\hat{a}.10^4$	$\sigma(\hat{a}).10^4$	$\hat{a}.10^4$	$\sigma(\hat{a}).10^4$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	$\hat{a}.10^2$	$\sigma(\hat{a}).10^2$
Constante	5.52	0.52	35.89	2.25	23.37	1.93	2.74	0.24
x	-2.01	0.33	14.76	1.43	17.22	1.23	-1.93	0.16
x^2	1.42	0.23	7.41	1.02	2.79	0.88	0.56	0.11

\hat{a} : coefficients du modèle calculés par la régression multilinéaire

$\sigma(\hat{a})$: erreur dans l'estimation des coefficients du modèle

Il apparaît clairement du tableau, que pour l'ensemble des réponses, l'erreur relative d'estimation est négligeable pour chaque coefficient. De plus, le test de significativité a donné des probabilités très réduites, que l'effet des termes de ces derniers soit négligeable devant la variabilité naturelle. Cela conduit à retenir pour chaque réponse un modèle quadratique, traduisant l'effet non linéaire du pourcentage de Mont-Na.

❖ Qualité des modèles

L'étude de la qualité des modèles vise à évaluer le degré de leur ajustement (adéquation) et la précision de leur prédiction.

➤ Adéquation des modèles

L'ajustement du modèle est jugé par la combinaison de trois méthodes : l'analyse de la variance et le test de Fisher, estimation du coefficient de corrélation R^2 et l'analyse des résidus.

Le tableau Tab.VII.2 renferme l'essentiel des résultats des deux premières méthodes appliquées à l'ensemble des modèles retenus.

Tab.VII.2 : Résultats de l'analyse de la variance des modèles retenus pour les paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na

Réponses	τ_0	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_{0C}	μ_{pC}	μ_∞	K	n
Modèle M								
<i>SCE</i>	4336.36	12476.79	12675.92	3133.69	$8 \cdot 10^{-7}$	$3.2 \cdot 10^{-5}$	3117.68	$4.3 \cdot 10^{-3}$
<i>ddl</i>	2	2	2	2	2	2	2	2
<i>V</i>	2168.18	6238.39	6337.96	1566.84	$4 \cdot 10^{-7}$	$1.6 \cdot 10^{-5}$	1558.84	$2.2 \cdot 10^{-3}$
σ	46.56	78.98	79.61	39.58	$6.3 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$	39.48	$4.7 \cdot 10^{-2}$
Résidu e								
<i>SCE</i>	5.47	51.78	63.50	58.17	$4.4 \cdot 10^{-8}$	$8.2 \cdot 10^{-7}$	60.35	$9.6 \cdot 10^{-5}$
<i>ddl</i>	4	4	4	4	4	4	4	4
<i>V</i>	1.37	12.95	15.88	14.54	$1.1 \cdot 10^{-8}$	$2.1 \cdot 10^{-7}$	15.09	$2.4 \cdot 10^{-5}$
σ	1.17	3.60	3.98	3.81	$1 \cdot 10^{-4}$	$4.5 \cdot 10^{-4}$	3.88	$4.9 \cdot 10^{-3}$
Erreur pure ε								
<i>SCE</i>	3.4	7.15	6.52	2.87	$5.4 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-7}$	6.94	$1.2 \cdot 10^{-5}$
<i>ddl</i>	2	2	2	2	2	2	2	2
<i>V</i>	1.70	3.57	3.26	1.43	$2.7 \cdot 10^{-9}$	$1.5 \cdot 10^{-7}$	3.47	$0.6 \cdot 10^{-5}$
σ	1.30	1.89	1.8	1.20	$5.2 \cdot 10^{-5}$	$3.9 \cdot 10^{-4}$	1.86	$2.4 \cdot 10^{-3}$
Ajustement Δ								
<i>SCE</i>	2.07	44.64	56.99	55.30	$3.8 \cdot 10^{-8}$	$5.2 \cdot 10^{-7}$	53.41	$8.3 \cdot 10^{-5}$
<i>ddl</i>	2	2	2	2	2	2	2	2
<i>V</i>	1.04	22.32	28.49	27.65	$1.9 \cdot 10^{-8}$	$2.6 \cdot 10^{-7}$	26.70	$4.2 \cdot 10^{-5}$
σ	1.02	4.72	5.34	5.26	$1.4 \cdot 10^{-4}$	$5.1 \cdot 10^{-4}$	5.17	0.020
F_{exp}	0.61	6.25	8.75	19.28	7.14	1.71	7.69	6.79
F_{crit}	19	19	19	19	19	19	19	19
<i>pr</i>	0.62	0.14	0.10	0.05	0.12	0.37	0.12	0.13
R^2	0.999	0.996	0.995	0.982	0.948	0.975	0.981	0.978

SCE : la somme des carrés des écarts.

ddl : le degré de liberté.

$V = SCE/ddl$: la variance.

$\sigma = \sqrt{V}$: l'écart type.

$F_{\text{exp}} = \frac{V(\Delta)}{V(\varepsilon)}$: la valeur expérimentale du F de Fisher.

F_{crit} : la valeur critique du F de Fisher, elle est tirée à partir des tables statistiques.

pr : est la probabilité que la variance d'ajustement soit négligeable devant la variance de l'erreur pure (expérimentale). Elle est estimée par le logiciel à partir du test de Fisher.

R^2 : un coefficient de corrélation indiquant la portion de variance expérimentale expliquée par le modèle. Plus R^2 est proche de 1, plus le modèle est bien ajusté(adéquat) ;

$$R^2 = \frac{\sum (y_i - \bar{y})^2 - \sum e_i^2}{\sum (y_i - \bar{y})^2} \quad 0 \leq R^2 \leq 1 \quad \text{avec :}$$

y_i : réponse mesurée au point i .

\bar{y} : moyenne de l'ensemble des réponses y_i mesurées.

e_i : résidus au point i .

La comparaison des valeurs de SCE , V et σ de la ligne du modèle M , avec celles de ligne des résidus e , montre que le premier représente la quasi-totalité de la variance expérimentale et que la variance résiduelle est complètement négligeable. Cela est appuyé par les valeurs du coefficient R^2 qui montrent que le modèle rend compte de plus de 97% de la variance globale de chaque réponse. Ainsi, on peut dire que pour l'ensemble de ces réponses, les modèles retenus expliquent parfaitement les résultats obtenus lors des essais. La ligne de l'erreur expérimentale ε , montre de très faibles valeurs de SCE , V et σ , ce qui reflète une très bonne reproductibilité des résultats expérimentaux.

L'importance du manque d'ajustement des modèles calculés, peut être jugé en comparant les valeurs de F_{exp} avec celles de F_{crit} . Là aussi, pour l'ensemble des réponses, on a toujours $F_{exp} < F_{crit}$ (sauf pour la réponse τ_{0C}). Cela veut dire que l'erreur d'adéquation est négligeable devant l'erreur expérimentale. Cela est réconforté par des valeurs très satisfaisantes de la probabilité pr d'acceptation de cette hypothèse. Ainsi, on peut dire que ces modèles sont bien ajustés.

Le modèle de la réponse τ_{0C} , est par contre moins bien ajusté. F_{exp} est légèrement supérieure à F_{crit} , et la probabilité que l'erreur d'adéquation soit négligeable est très réduite ($pr = 0.05$). Cela est dû à un écart d'ajustement assez conséquent du modèle ($\sigma(\Delta) = 5.26$), mais surtout au fait que l'erreur expérimentale soit très faible ($\sigma(\varepsilon) = 1.20$). Cela n'aura pour conséquence qu'une légère diminution de la qualité des prédictions de ce modèle, qui seront faites avec des intervalles de confiance plus étendus, malgré la faible variabilité naturelle de cette réponse.

Les graphes de la réponse observée en fonction de la réponse prédite, sont rapportés dans les figures Fig.VII.1-8. Ils montrent pour l'ensemble des réponses, une distribution très étroites des points le long de la première bissectrice (particulièrement pour τ_0 , Gel_0 et Gel_{10}), ce qui reflète les faibles valeurs des résidus. Aussi, ces répartitions ne font apparaître aucun points douteux traduisant d'éventuel points aberrants.

L'ensemble des observations faites à l'issue de cette analyse, permet de certifier l'adéquation des modèles retenus.

➤ Prédiction des modèles

La puissance prédictive d'un modèle peut être jugée par le degré de précision dans l'estimation des réponses prédites. Elle est évaluée par le biais de deux paramètres : la fonction erreur sur la réponse prédite $\sigma(\hat{y})$, et le coefficient de prédiction Q^2 .

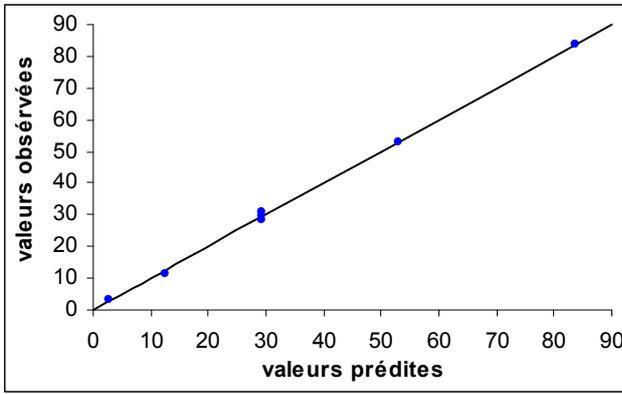
La fonction erreur sur la réponse prédite permet de déterminer l'incertitude sur la réponse calculée en n'importe quel point du domaine d'étude. La comparaison avec l'erreur sur la réponse mesurée ($\sigma(\varepsilon)$ ou $\sigma(e)$ si le modèle est bien ajusté), permet d'évaluer l'importance de cette incertitude.

La fonction $\sigma(\hat{y})$ est donnée par la relation :

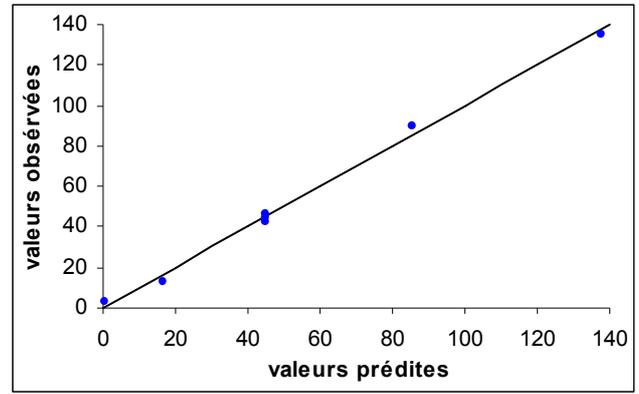
$$\sigma(\hat{y}) = \sigma(e).d(\hat{y})$$

$d(\hat{y})$: la fonction erreur de prédiction, elle est indépendante des résultats expérimentaux.

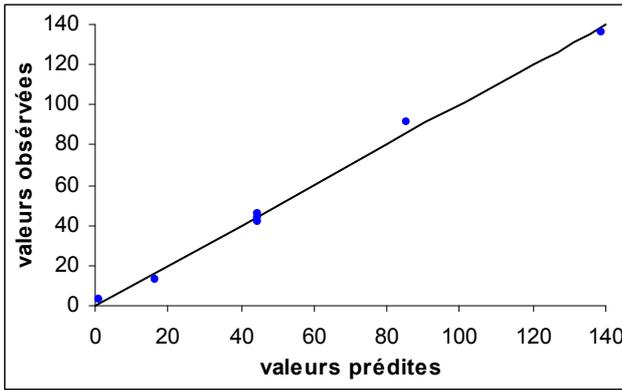
$\sigma(\hat{y})$: la fonction erreur sur la réponse prédite.



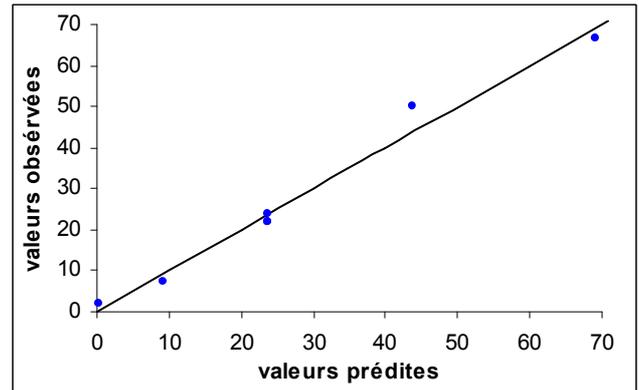
CSS



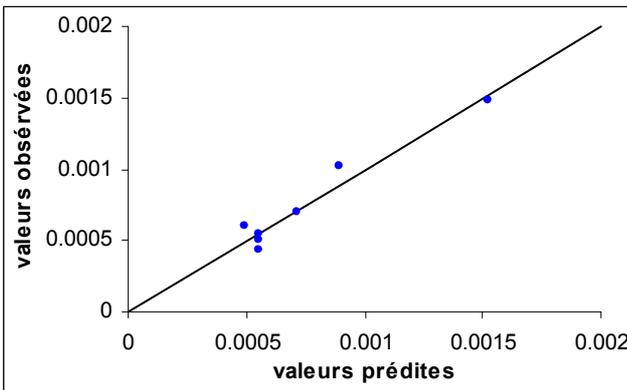
Gel₀



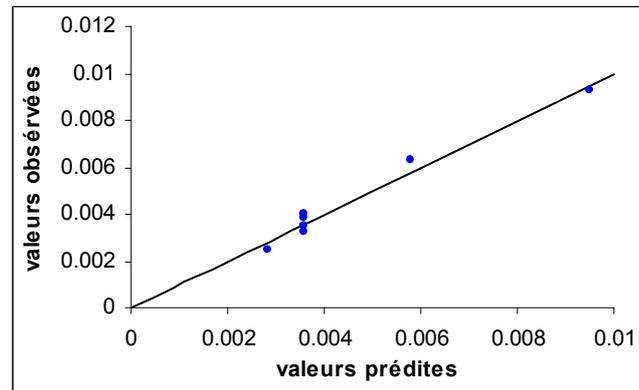
Gel₁₀



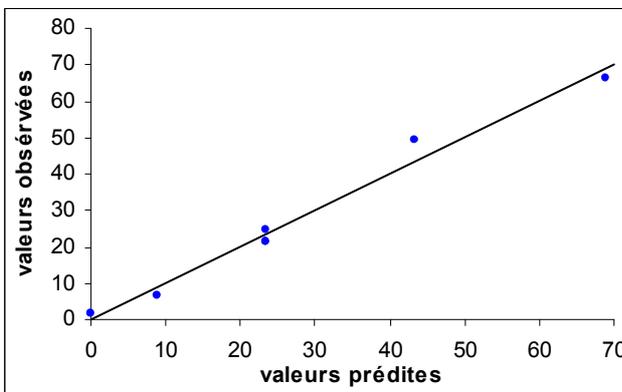
AC



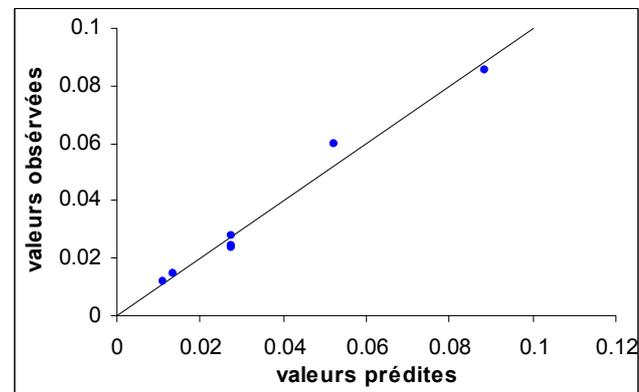
BC



AS



K



n

Fig.VII.1-8: Graphes des réponses observées en fonction des réponses prédites

Le coefficient Q^2 est une évaluation globale du pouvoir prédictif du modèle dans tout le domaine d'étude. Il est donné par la relation :

$$Q^2 = \frac{\sum (y_i - \bar{y})^2 - \sum \left(\frac{y_i - \hat{y}_i}{1 - h_i} \right)^2}{\sum (y_i - \bar{y})^2} \quad 0 \leq Q^2 \leq 1$$

\hat{y}_i : la réponse prédite par le modèle au point i

h_i : le $i^{\text{ème}}$ élément diagonal de la matrice $X(X'X)^{-1}X'$. C 'est la variance de prédiction au point i .

Plus Q^2 est proche de 1, plus la qualité prédictive du modèle est bonne. En fait, au-delà de $Q^2 = 0.7$, le modèle présente un bon pouvoir prédictif.

La fonction erreur de prédiction $d(\hat{y})$ issue du couple modèle-plan adopté, est tracée sur la figure Fig.VII.9, elle s'écrit :

$$d(\hat{y}) = (0.25 - 0.05x^2 + 0.05x^4)^{1/2}$$

Il apparaît clairement du graphe que $d(\hat{y})$ est inférieure à 1 sur la totalité du domaine d'étude. Cela implique que pour chacune des réponses étudiées, l'incertitude sur la réponse prédite est inférieure ou égale à $\sigma(e)$, elle est donc du même ordre de grandeur que l'erreur expérimentale. Cela est synonyme d'un bon pouvoir prédictif.

Les fonctions $\sigma(\hat{y})$ et les valeurs des coefficients Q^2 obtenus, sont donnés comme suit :

$$\sigma(\tau_0) = (0.34 - 0.06x^2 + 0.07x^4)^{1/2} \quad (Pa) \quad Q^2 = 0.994$$

$$\sigma(Gel_0) = (3.19 - 0.58x^2 + 0.66x^4)^{1/2} \quad (lbs / 100 ft^2) \quad Q^2 = 0.947$$

$$\sigma(Gel_{10}) = (3.91 - 0.72x^2 + 0.81x^4)^{1/2} \quad (lbs / 100 ft^2) \quad Q^2 = 0.936$$

$$\sigma(\tau_{0C}) = (3.58 - 0.65x^2 + 0.74x^4)^{1/2} \quad (Pa) \quad Q^2 = 0.780$$

$$\sigma(\mu_{pC}) = (0.27 - 0.05x^2 + 0.06x^4)^{1/2} \cdot 10^{-4} \quad (Pa.s) \quad Q^2 = 0.775$$

$$\sigma(\mu_{\infty}) = (1.63 - 0.30x^2 + 0.34x^4)^{1/2} \cdot 10^{-4} \quad (Pa.s) \quad Q^2 = 0.758$$

$$\sigma(K) = (3.71 - 0.68x^2 + 0.77x^4)^{1/2} \quad Q^2 = 0.775$$

$$\sigma(n) = (1.87 - 0.34x^2 + 0.39x^4)^{1/2} \cdot 10^{-3} \quad Q^2 = 0.847$$

Pour l'ensemble des réponses, le coefficient Q^2 est supérieur à 0.7, et qui plus est très proche de 1 pour les réponses CSS, Gel_0 et Gel_{10} . Cela confirme la bonne qualité prédictive des modèles retenus.

Compte tenu du niveau de confiance adopté ($1 - \alpha = 0.95$), les réponses prédites en n'importe quel point du domaine d'étude, sont assorties d'un intervalle de confiance dont la demi-largeur IC est donnée par la relation :

$$IC = t_{4,0.975} \cdot \sigma(\hat{y})$$

$t_{4,0.975} = 2.776$: est le fractile de la loi de Student, tiré à partir des tables statistiques pour $ddl(e) = 4$ et $\alpha = 0.05$.

Au terme de cette analyse, on peut dire que pour l'ensemble des réponses, les modèles retenus présentent une très bonne corrélation avec les résultats expérimentaux, et sont dotés d'un pouvoir prédictif très satisfaisant. Cela est bien mis en évidence par l'histogramme récapitulatif des coefficients R^2 et Q^2 rapporté sur la figure Fig.VII.10.

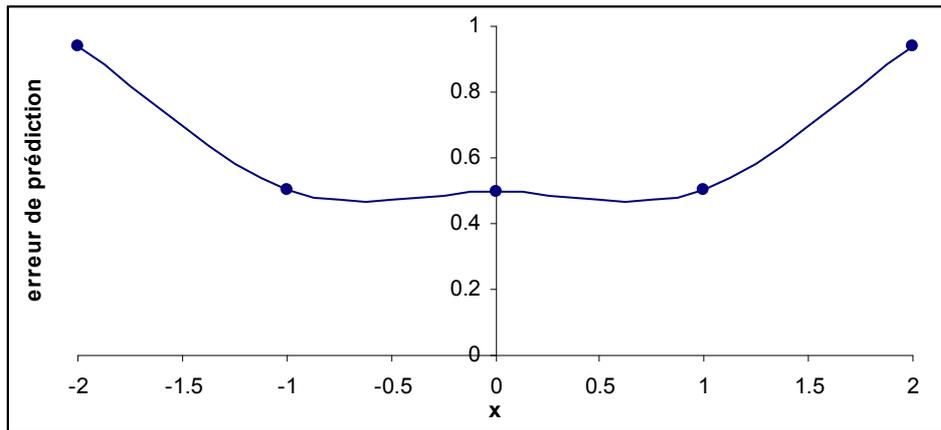


Fig.VII.9 : Erreur de prédiction des modèles retenus pour la boue de Mont-Na

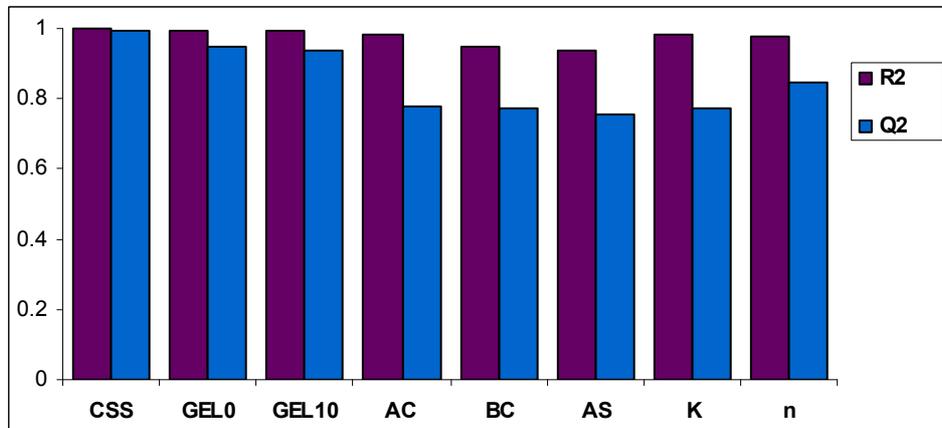


Fig.VII.10 : Histogramme des coefficients R^2 , Q^2 des modèles retenus pour la boue de Mont-Na

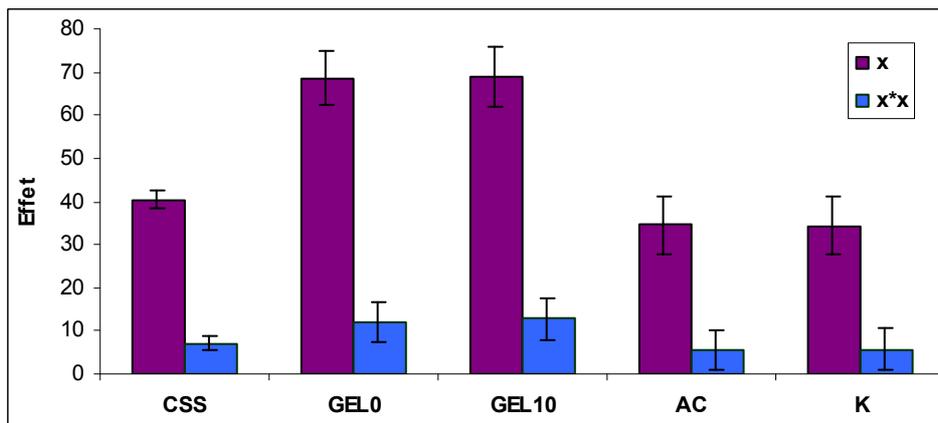


Fig.VII.11: Histogrammes des effets de la concentration sur les paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na

❖ Exploitation des modèles

Les formules développées des modèles quadratiques retenus, s'écrivent comme suit :

$$\tau_0 = 29.14 + 20.22x + 3.55x^2 \quad (Pa)$$

$$Gel_0 = 44.97 + 34.28x + 6.06x^2 \quad (lbs/100ft^2)$$

$$Gel_{10} = 44.61 + 34.47x + 6.36x^2 \quad (lbs/100ft^2)$$

$$\tau_{0C} = 23.65 + 17.27x + 2.78x^2 \quad (Pa)$$

$$\mu_{pC} = (55.17 - 20.10x + 14.15x^2) \cdot 10^{-5} \quad (Pa.s)$$

$$\mu_{\infty} = (35.88 + 14.76x + 7.41x^2) \cdot 10^{-4} \quad (Pa.s)$$

$$K = 23.37 + 17.22x + 2.78x^2$$

$$n = (27.39 - 19.28x + 5.62x^2) \cdot 10^{-3}$$

L'histogramme des effets, présenté sur la figure Fig.VII.11, déduit de ces modèles permet d'évaluer l'importance de l'effet linéaire et de l'effet quadratique du pourcentage de Mont-Na, sur chacun des paramètres rhéologiques étudiés. Il apparaît clairement que l'effet linéaire prend le dessus, sans pour autant que l'effet quadratique soit négligeable.

Selon les modèles retenus, les graphes de l'évolution prédite de chacune de ces réponses, en fonction du pourcentage de Mont-Na, sont rapportés sur les figures Fig.12-19. Ils montrent la grande variation des paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na en fonction de sa concentration. On peut ainsi prédire la valeur de chacun de ces paramètres à n'importe quel point du domaine d'étude.

❖ Evaluation des corrélations

Pour l'interprétation physico-chimique des phénomènes mis en jeu dans l'évolution des différentes réponses étudiées, il serait très opportun de tenir compte des corrélations qui existent entre ces dernières. Les réponses jugées significativement dépendantes, obéiront au même raisonnement. De plus, la connaissance des différents rapports de corrélation, permet de cibler d'une meilleure façon, les critères à optimiser, fonction de plusieurs réponses. D'un autre coté, la détermination exacte des relations entre les réponses hautement corrélées, permet de déduire les valeurs des unes, connaissant les valeurs mesurées ou calculées des autres.

Le coefficient R permettant d'évaluer le niveau de corrélation linéaire entre deux réponses y_1 et y_2 , est donnée par la relation :

$$R = \frac{\sum (y_{1i} - \bar{y}_1)(y_{2i} - \bar{y}_2)}{\sqrt{\sum (y_{1i} - \bar{y}_1)^2 \sum (y_{2i} - \bar{y}_2)^2}}$$

R : coefficient de corrélation linéaire.

y_{1i} (y_{2i}) : réponse y_1 (y_2) mesurée au point i .

\bar{y}_1 (\bar{y}_2) : moyenne de l'ensemble des réponses y_1 (y_2) mesurées.

La corrélation est jugée significative si :

$$|R| > r_{n-2;\alpha}$$

$r_{n-2;\alpha}$: est la valeur limite du coefficient de corrélation linéaire, au-dessous de laquelle, la corrélation est jugée non significative. Il est tiré à partir des tables statistiques.

n : nombre d'essais du plan.

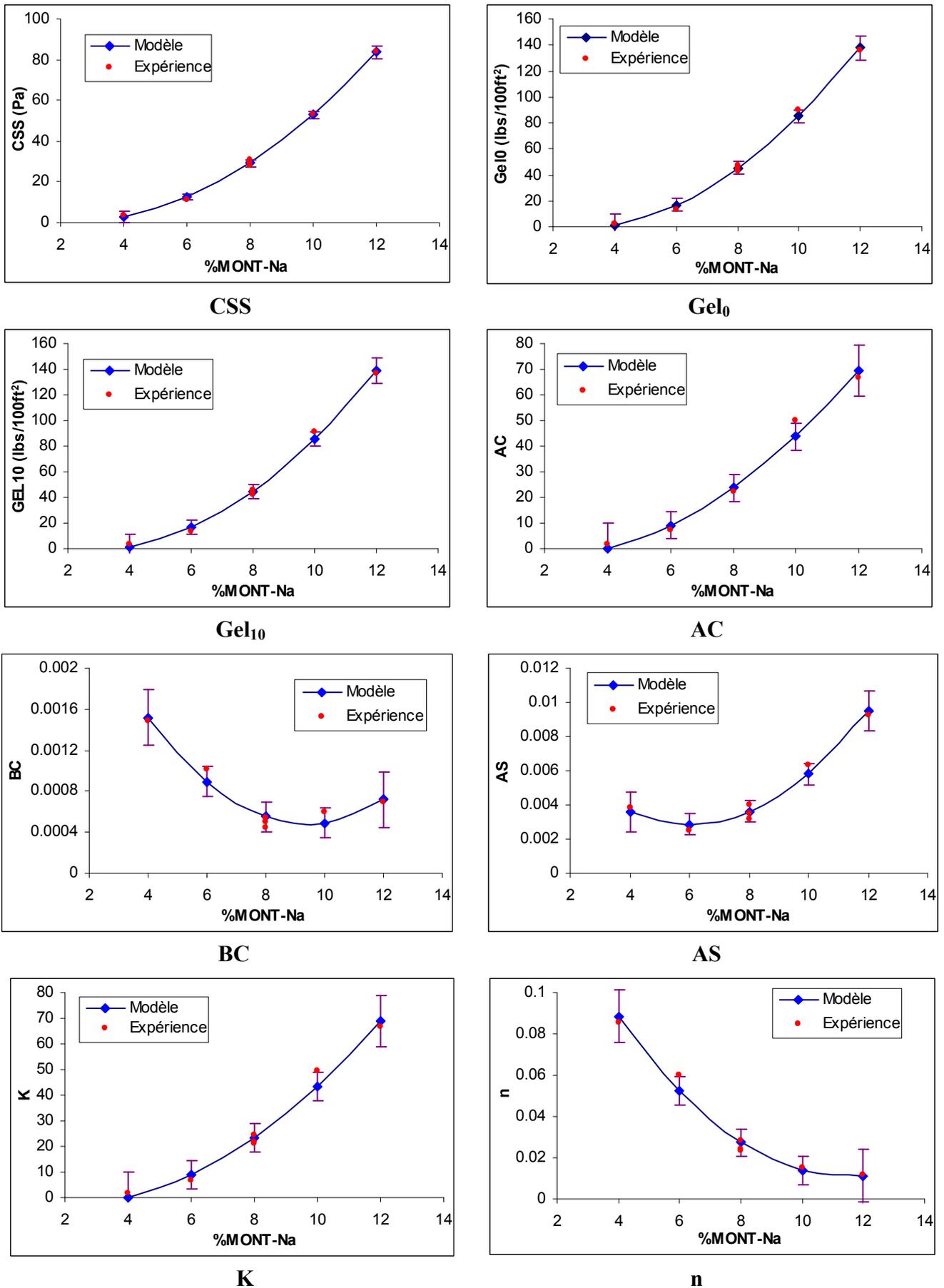


Fig.VII.12-19: Evolution des paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na en fonction de la concentration

Les valeurs des coefficients de corrélation entre les différentes réponses étudiées, sont rapportées dans le tableau Tab.VII.3.

Tab.VII.3 : Coefficients de corrélation linéaire entre les paramètres rhéologiques de la boue de Mont-Na

Réponse	τ_0	Gel_0	Gel_{10}	τ_{0C}	μ_{pC}	μ_∞	K	n
τ_0	1	0.99	0.99	0.99	- 0.51	0.92	0.99	- 0.80
Gel_0	0.99	1	0.99	0.99	- 0.50	0.93	0.99	- 0.80
Gel_{10}	0.99	0.99	1	0.99	- 0.49	0.93	0.99	- 0.79
τ_{0C}	0.99	0.99	0.99	1	- 0.51	0.92	0.99	- 0.80
μ_{pC}	- 0.51	- 0.50	- 0.49	- 0.51	1	- 0.16	- 0.51	0.92
μ_∞	0.92	0.93	0.93	0.92	- 0.16	1	0.92	- 0.54
K	0.99	0.99	0.99	0.99	- 0.51	0.92	1	- 0.80
n	- 0.80	- 0.80	- 0.79	- 0.80	0.92	- 0.54	- 0.80	1

La valeur limite tirée de la table statistique est $r_{5,0.05} = 0.76$.

Les corrélations jugées non significatives sont celles dont le coefficient est écrit en gras sur le tableau Tab.VII.3.

Les réponses τ_0 , Gel_0 , Gel_{10} , τ_{0C} , et K sont hautement corrélées. Le Gel_0 (lbs/100ft²) étant une réponse facile à mesurer et dont le modèle est très adéquat ($R^2 = 0.996$, $Q^2 = 0.947$), on se contente de rapporter les équations linéaires qui relient les autres réponses à celle-ci. Elles s'écrivent :

$$\tau_0(Pa) = 0.59Gel_0 + 2.69$$

$$Gel_{10}(lbs/100ft^2) = 1.01Gel_0 - 0.37$$

$$\tau_{0C}(Pa) = 0.50Gel_0 + 0.66$$

$$K = 0.50Gel_0 + 0.49$$

VII.2 L'argile organophile AO

Les paramètres retenus pour l'étude et la description du comportement rhéologique de la boue AO + gasoil sont : PV, YP, Gel₀, Gel₁₀, la contrainte seuil τ_0 (notée CSS sur les figures) et les paramètres K et n du modèle d'Ostwald.

Les propriétés rhéologiques de cette boue sont étudiées avant et après vieillissement des échantillons à 250 °F pendant 16h à l'étuve rotative.

Le traitement des résultats expérimentaux pour la modélisation, se fait dans l'ordre des éléments suivants :

a. Plan avant vieillissement

Ce plan concerne les résultats obtenus à l'issue des tests rhéologiques, réalisés sur les échantillons de boue fraîchement préparés.

❖ Calcul des modèles

▪ Modèles complets :

Pour chaque réponse, les coefficients du modèle quadratique postulé, calculés par la méthode MLR, sont affichés dans le tableau Tab.VII.4. Selon le niveau de probabilité que l'effet du terme considéré soit négligeable devant la variabilité naturelle de la réponse, chacune des actions du modèle, est accompagnée par une appréciation indiquant son degré de significativité. La sélection est basée sur le critère suivant :

$pr > 0.05$: action non significative (NS).

$0.01 < pr < 0.05$: action significative (S).

$pr < 0.01$: action hautement significative (HS).

Tab.VII.4 : Coefficients des modèles quadratiques postulés pour la boue AO + gasoil avant vieillissement

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	PV (cP)		YP (lbs/100ft ²)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	
	\hat{a}	Effet	\hat{a}	Effet	\hat{a}	Effet	\hat{a}	Effet
Constante	7.333	HS	26.333	HS	15.000	HS	15.000	HS
x_1	-2.009	HS	-1.530	S	-4.497	HS	-4.018	HS
x_2	3.393	HS	27.541	HS	13.917	HS	13.969	HS
x_1^2	0.458	NS	-1.980	HS	1.000	NS	0.500	NS
x_2^2	0.708	S	8.273	HS	3.251	HS	3.501	HS
x_1x_2	-0.250	NS	-1.000	NS	-4.250	HS	-4	HS

Termes du modèle	Coefficients des modèles					
	τ_0 (Pa)		K		n	
	\hat{a}	Effet	\hat{a}	Effet	\hat{a}	Effet
Constante	1.966	S	4.510	HS	0.176	HS
x_1	0.123	NS	0.030	NS	-0.022	HS
x_2	4.584	HS	3.168	HS	0.028	HS
x_1^2	0.246	NS	-0.222	NS	0.017	HS
x_2^2	2.574	HS	-0.043	NS	0.041	HS
x_1x_2	0.865	NS	0.031	NS	0.011	HS

▪ Modèles retenus :

Le tableau Tab.VII.5 regroupe les coefficients des modèles retenus, après élimination des termes jugés non significatifs. Cette simplification est faite tout en se souciant de préserver ou même d'améliorer la qualité de ces modèles. Les termes négligeables sont remplacés par 0 dans le tableau.

Tab.VII.5 : Coefficients des modèles retenus pour la boue AO + gasoil avant vieillissement

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	PV (cP)		YP (lbs/100ft ²)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	7.333	0.337	26.333	0.662	15.000	0.733	15.470	0.582
x_1	-2.009	0.206	-1.530	0.405	-4.497	0.449	-4.018	0.490
x_2	3.393	0.206	27.541	0.405	13.917	0.449	13.969	0.490
x_1^2	0.458	0.246	-1.980	0.482	1.000	0.535	0	-
x_2^2	0.708	0.246	8.273	0.482	3.251	0.535	3.354	0.558
x_1x_2	0	-	-1.000	0.573	-4.250	0.635	-4.000	0.693

Termes du modèle	Coefficients des modèles					
	τ_0 (Pa)		K		n	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	2.198	0.473	4.317	0.199	0.176	0.003
x_1	0	-	0	-	-0.022	0.002
x_2	4.585	0.398	3.168	0.233	0.028	0.002
x_1^2	0	-	0	-	0.017	0.002
x_2^2	2.502	0.453	0	-	0.041	0.002
x_1x_2	0	-	0	-	0.011	0.003

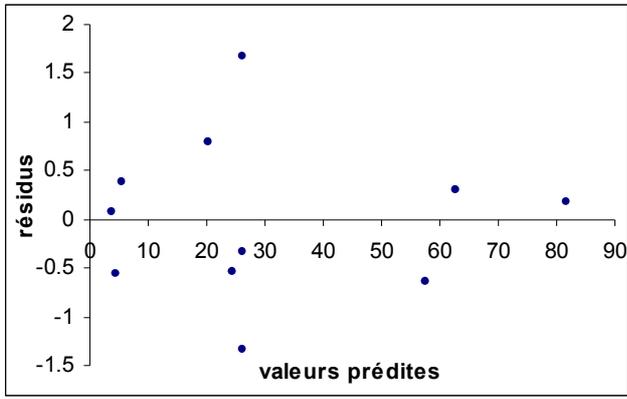
❖ **Qualité des modèles :**

➤ **Adéquation des modèles**

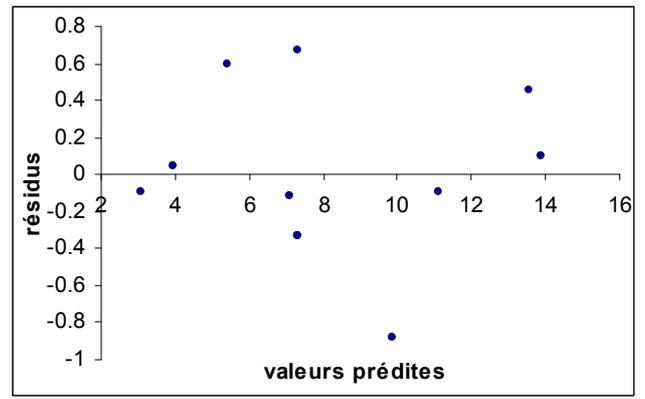
L'analyse des résidus montre que ces derniers présentent des valeurs très réduites qui ne font apparaître aucun résultat aberrant. Pour chacun des paramètres étudiés, leur répartition en fonction de la réponse prédite, est homogène et aléatoire. Cela traduit d'un côté, l'adéquation des modèles retenus, et d'un autre, la normalité de la variabilité naturelle de chacune de ces réponses.

Pour l'ensemble des réponses, la distribution des résidus en fonction de la réponse estimée est rapportée sur les figures Fig.VII.20-26.

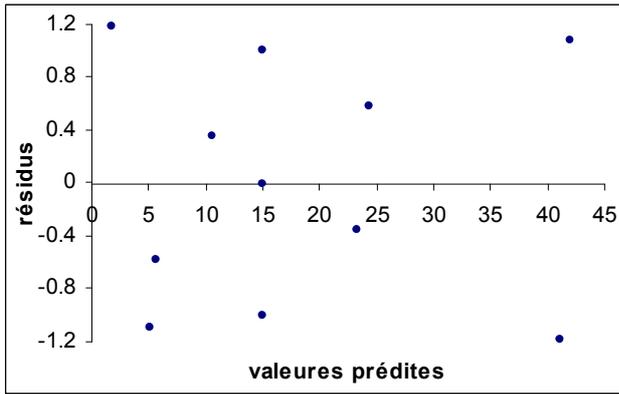
Les résultats de l'analyse de la variance (ANAVAR) sont affichés dans le tableau Tab.VII.6.



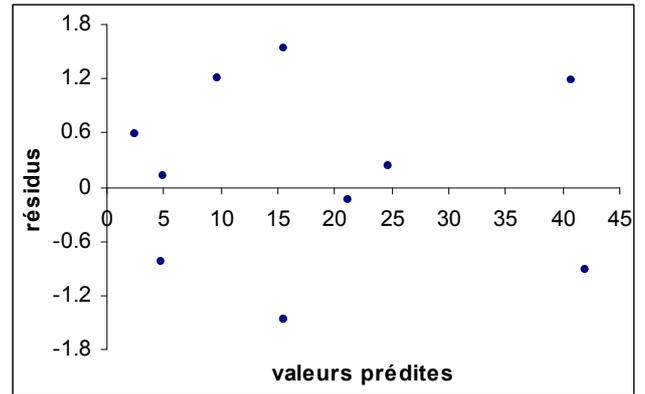
YP



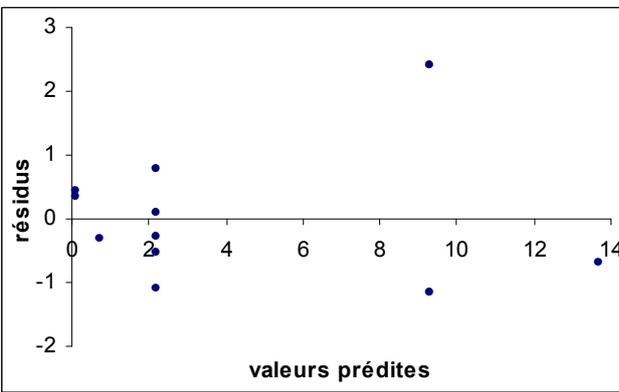
PV



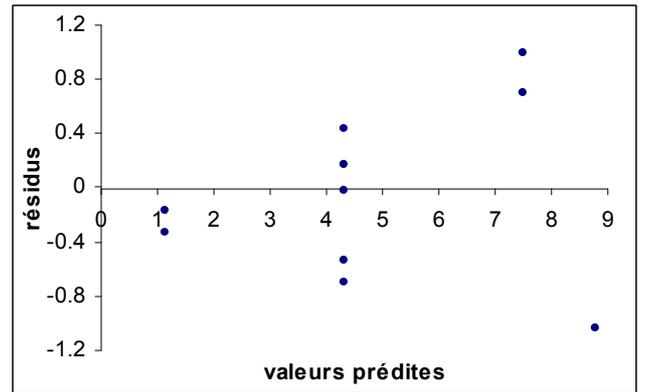
Gel₀



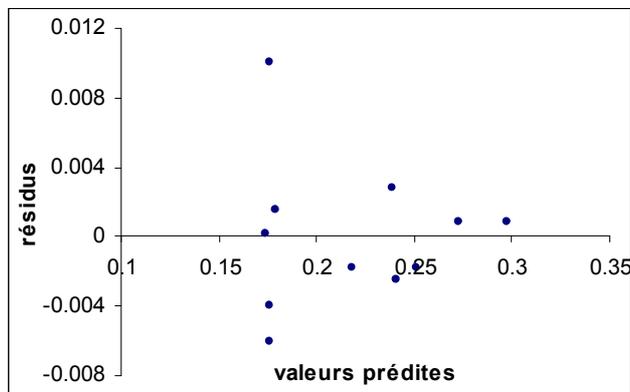
Gel₁₀



CSS



K



n

FigVII.20-26: Distribution des résidus en fonction des réponses prédites

Tab.VII.6 : Analyse de la variance pour les modèles retenus de la boue AO + gazoil avant vieillissement

Réponses	PV	YP	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_0	K	n
Modèle <i>M</i>							
ddl	4	5	5	4	2	1	5
<i>V</i>	31.90	1319.25	368.57	455.85	103.40	80.30	4 10 ⁻³
σ	5.65	36.32	19.20	21.35	10.17	8.96	63.4 10 ⁻³
Résidu <i>e</i>							
ddl	6	5	5	6	8	9	5
<i>V</i>	0.34	1.31	1.61	1.92	1.27	0.44	3.5 10 ⁻⁵
σ	0.58	1.15	1.25	1.39	1.13	0.66	5.9 10 ⁻³
Erreur pure ε							
ddl	2	2	2	2	2	2	2
<i>V</i>	0.33	2.33	1	3	0.1	0.05	7.6 10 ⁻⁵
σ	0.58	1.53	1	1.73	0.31	0.23	8.7 10 ⁻³
Ajustement Δ							
ddl	4	3	3	4	6	7	3
<i>V</i>	0.34	0.63	2.02	1.38	1.66	0.54	8 10 ⁻⁶
σ	0.59	0.80	1.42	1.18	1.29	0.74	2.8 10 ⁻³
F_{exp}	1.03	0.27	2.02	0.46	16.95	10.00	0.11
F_{crit}	19.20	19.20	19.20	19.20	19.30	19.40	19.20
<i>pr</i>	0.55	0.84	0.35	0.77	0.06	0.10	0.95
R^2	0.984	0.999	0.996	0.994	0.953	0.953	0.991

Cette analyse met parfaitement en valeur le degré de l'ajustement des modèles retenus. Les valeurs du coefficient R^2 (très proches de l'unité) montrent que les modèles expliquent la majeure partie des variances expérimentales. Cela est d'ailleurs confirmé en comparant la ligne du modèle à celle des résidus.

Pour chacune des réponses, la valeur de F_{exp} est inférieure à celle de F_{crit} , ce qui s'est traduit par des probabilités *pr* très satisfaisantes (en particulier pour YP, Gel₁₀ et n) que le manque d'adéquation soit négligeable.

La ligne de l'erreur pure montre la faible variance de la variabilité naturelle de ces réponses et la bonne reproductibilité des résultats.

➤ **Prédiction des modèles**

Les formules des fonctions erreur sur la réponse prédite $\sigma(\hat{y})$ et les valeurs du coefficient de prédiction Q^2 , sont rapportées comme suit :

$$\sigma(PV) = 0.58(0.33 - 0.21(x_1^2 + x_2^2) + 0.18(x_1^4 + x_2^4) + 0.1x_1^2x_2^2)^{1/2} \quad (\text{cP}) \quad Q^2 = 0.941$$

$$\sigma(YP) = 1.15(0.33 - 0.21(x_1^2 + x_2^2) + 0.18(x_1^4 + x_2^4) + 0.35x_1^2x_2^2)^{1/2} \quad (\text{lbs/100ft}^2) \quad Q^2 = 0.996$$

$$\sigma(Gel_0) = 1.27(0.33 - 0.21(x_1^2 + x_2^2) + 0.18(x_1^4 + x_2^4) + 0.35x_1^2x_2^2)^{1/2} \quad (\text{lbs/100ft}^2) \quad Q^2 = 0.974$$

$$\sigma(Gel_{10}) = 1.39(0.18 + 0.13x_1^2 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4 + 0.25x_1^2x_2^2)^{1/2} \quad (\text{lbs/100ft}^2) \quad Q^2 = 0.981$$

$$\sigma(\tau_0) = 1.13(0.18 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4)^{1/2} \quad (\text{Pa}) \quad Q^2 = 0.911$$

$$\sigma(K) = 0.66(0.09 + 0.13x_2^2)^{1/2} \quad Q^2 = 0.919$$

$$\sigma(n) = 5.9(0.33 - 0.21(x_1^2 + x_2^2) + 0.18(x_1^4 + x_2^4) + 0.35x_1^2x_2^2)^{1/2} \cdot 10^{-3} \quad Q^2 = 0.975$$

Les valeurs très proches de 1 du coefficient Q^2 , traduisent le très bon caractère prédictif des modèles retenus.

Les formules des fonctions $\sigma(\hat{y})$, permettent de prédire pour chaque paramètre l'incertitude sur la réponse calculée en n'importe quel point du domaine expérimental. Cela permet de munir les estimations des modèles, avec les intervalles de confiance (les marges de sécurité) appropriés.

Les courbes d'isoreur sur les réponses prédites, sont représentées sur les figures Fig.VII.27-33. Elles montrent clairement que sur la totalité de la plage d'étude, l'erreur sur la réponse estimée est du même ordre que l'erreur expérimentale, ce qui confirme le bon pouvoir prédictif. Cela signifie aussi, qu'on jouit de la même précision en prédiction qu'en mesure.

L'histogramme récapitulatif des coefficients R^2 et Q^2 , présenté sur la figure Fig.VII.34 permet de rendre compte de la qualité de représentation et de prédiction des modèles retenus.

❖ Validation des modèles

La validation des modèles est réalisée en comparant les valeurs prédites avec les valeurs mesurées, pour des points expérimentaux hors plan adopté. Pour ce faire, on utilise les résultats des tests effectués à 150°F sur les échantillons de boue à différents pourcentages. Les valeurs à comparer sont affichées sur le tableau Tab.VII.7 :

Tab.VII.7 : Test de validation des modèles retenus de la boue AO + gasoil avant vieillissement

%AO	PV (cP)			YP (lbs/100ft ²)			Gel ₀ (lbs/100ft ²)			Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)		
	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>
2	3	3.04	1.14	4	3.35	2.58	3	2.85	2.86	3	3.26	2.97
2.88	4	3.74	0.76	5	6.27	1.75	4	4.46	1.94	4	4.84	1.94
5	6	6.43	0.76	24	25.03	1.59	12	12.96	1.76	12	13.41	1.55
7.12	11	10.53	0.76	59	60.33	1.75	29	27.95	1.94	26	28.69	1.94
8	12	12.64	1.14	78	79.84	2.58	38	36.09	2.86	36	37.00	2.97

%AO	τ_0 (Pa)			K			n		
	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>	<i>y</i>	\hat{y}	<i>IC</i>
2	0.14	0.72	2.02	-	-	-	-	-	-
2.88	0.33	0.11	1.24	0.81	1.15	0.69	0.186	0.177	0.009
5	1.6	2.19	1.09	4.73	4.32	0.45	0.175	0.169	0.008
7.12	9.8	9.28	1.24	7.15	7.49	0.69	0.248	0.243	0.009
8	11.85	13.69	2.02	8.02	8.80	0.87	0.291	0.298	0.014

A la lumière de ce tableau, il apparaît bien que les réponses mesurées en ces points appartiennent aux intervalles de confiance $\hat{y} \pm IC$ des réponses calculées ; les modèles sont donc bien valides.

❖ Exploitation des modèles

Les modèles retenus étant validés, et leur qualité évaluée, on peut désormais les utiliser pour l'étude des effets et la prédiction. Les formules développées de ces modèles s'écrivent comme suit :

$$PV = 7.33 - 2.01x_1 + 3.39x_2 - 0.46x_1^2 + 0.71x_2^2 \quad (\text{cP})$$

$$YP = 26.33 - 1.53x_1 + 27.54x_2 - 1.98x_1^2 + 8.27x_2^2 - x_1x_2 \quad (\text{lbs/100ft}^2)$$

$$Gel_0 = 15 - 4.50x_1 + 13.92x_2 + x_1^2 + 3.25x_2^2 - 4.25x_1x_2 \quad (\text{lbs/100ft}^2)$$

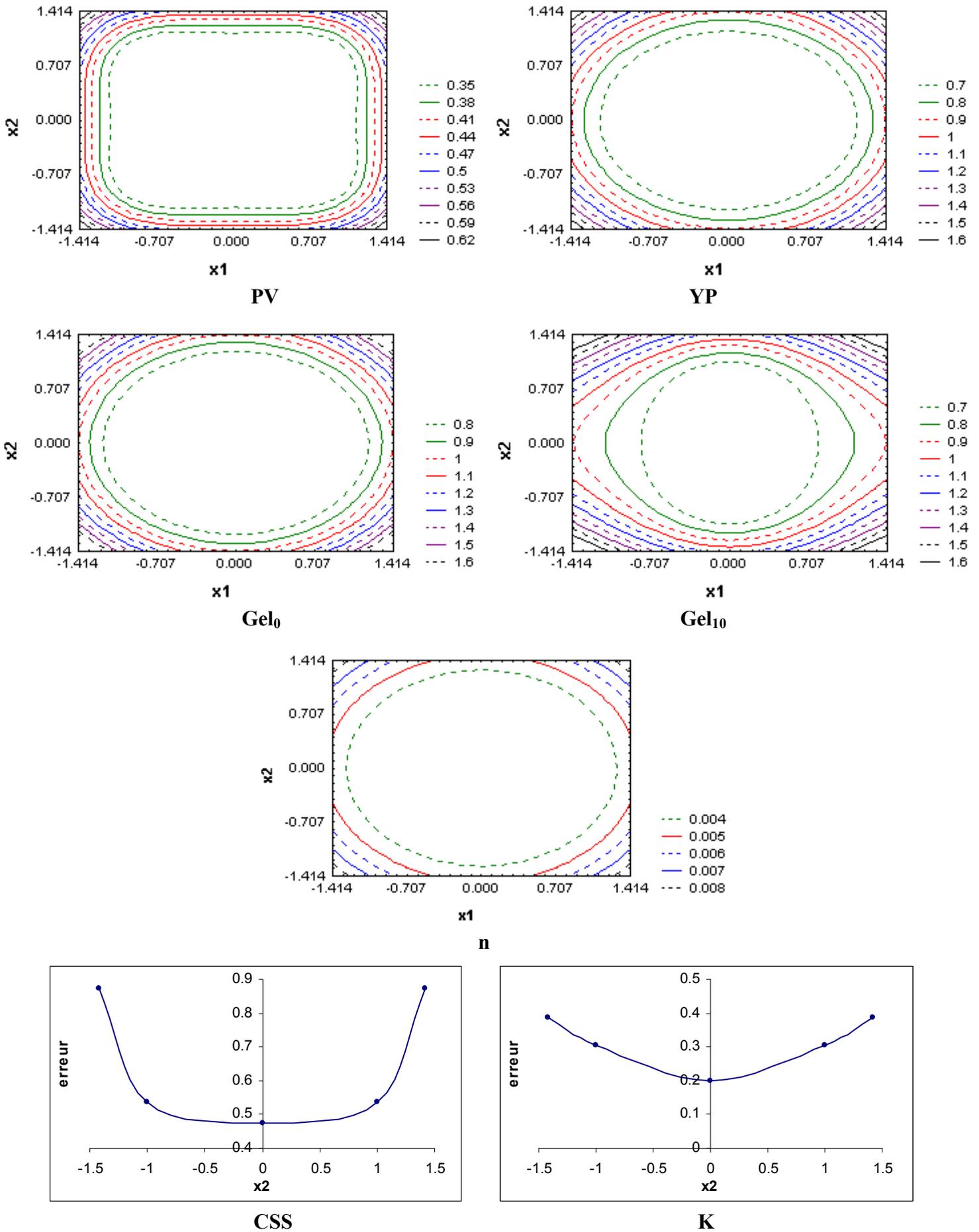


Fig.VII.27-33: Courbes d'isoerreurs sur les réponses prédites

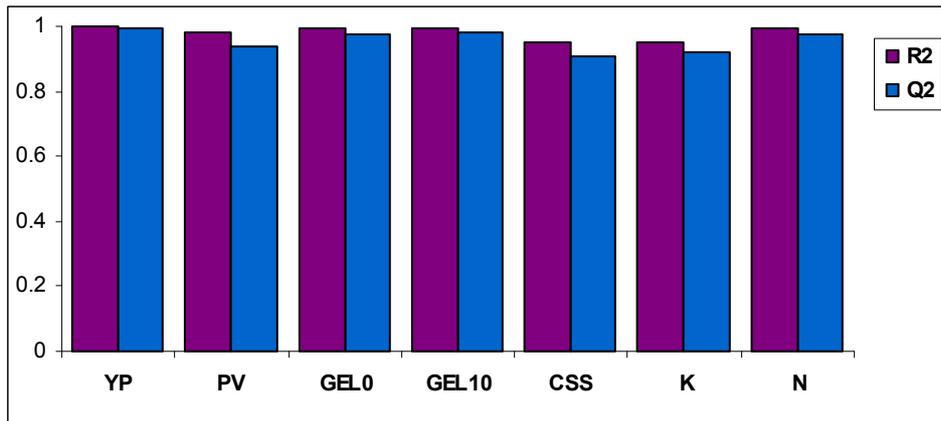


Fig.VII.34 : Histogramme des coefficients R^2 et Q^2 des modèles de la boue AO + gasoil avant vieillissement

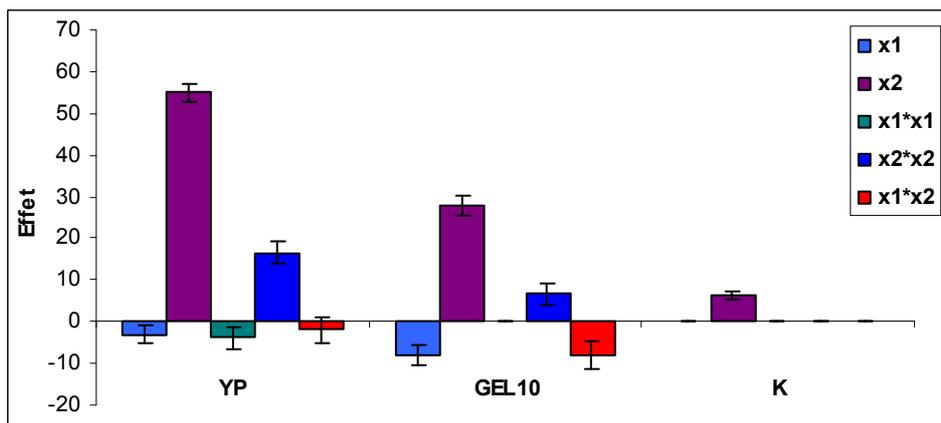
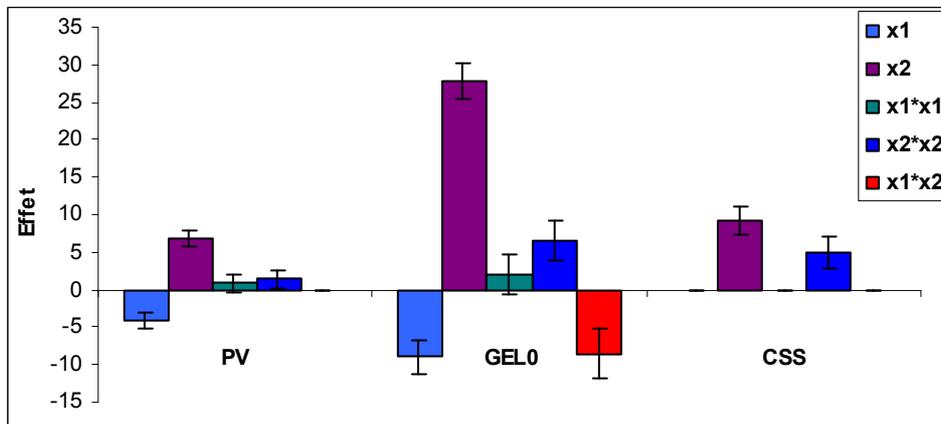


Fig.VII.35 : Histogrammes des effets des actions des modèles retenus de la boue AO + gasoil avant vieillissement

$$Gel_{10} = 15.47 - 4.02x_1 + 13.97x_2 + 3.35x_2^2 - 4.x_1x_2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

$$\tau_0 = 2.20 + 4.59x_2 + 2.50x_2^2 \quad (\text{Pa})$$

$$K = 4.32 + 3.17x_2$$

$$n = (17.6 - 2.18x_1 + 2.77x_2 + 1.73x_1^2 + 4.1x_2^2 + 1.08x_1x_2) \cdot 10^{-2}$$

L'histogramme des effets est présenté sur la figure Fig.VII.35. Pour chaque réponse, il fait apparaître selon un ordre hiérarchique, l'étendue de l'effet de chacune des actions du modèle retenu.

L'évolution moyenne des paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil, en fonction de chaque facteur à part (la température et le % AO), est schématisée sur les figures Fig.VII.36-47. Ces courbes permettent d'apprécier l'importance de l'effet moyen de chaque facteur indépendamment du second. Leurs allures traduisent l'évolution moyenne des propriétés rhéologiques de la boue, en fonction du facteur en abscisse.

Ces courbes montrent bien que les paramètres rhéologiques (YP, Gel₀, Gel₁₀, K et τ₀) de cette boue, évoluent beaucoup en fonction du % AO, alors que PV et n ne varient que faiblement. La température par contre, ne semble avoir qu'un effet modéré(et parfois même minimale ou négligeable), ce qui reflète la stabilité thermique de cette boue.

L'effet de l'interaction entre ces deux facteurs est mis en évidence sur les figures Fig.48-51. Le non-parallélisme des courbes de comportement tracées en fonction du facteur en abscisse pour les deux niveaux du deuxième, permet de rendre compte de l'effet de l'interaction entre ces deux facteurs sur l'évolution de la réponse en question.

Les effets de ces derniers sur les paramètres Gel₀, Gel₁₀, n et YP, sont assez dépendants. En effet, les courbes d'interaction montrent bien que le comportement de ces réponses en fonction de chaque facteur, dépend du niveau du second, ce qui n'est pas le cas pour PV.

Les modèles retenus permettent de prédire la valeur de chaque paramètre à n'importe quel point du domaine d'étude et/ou de trouver la concentration nécessaire pour obtenir une boue avec la tenue rhéologique et les performances désirées, sous une température donnée.

❖ Evaluation des corrélations

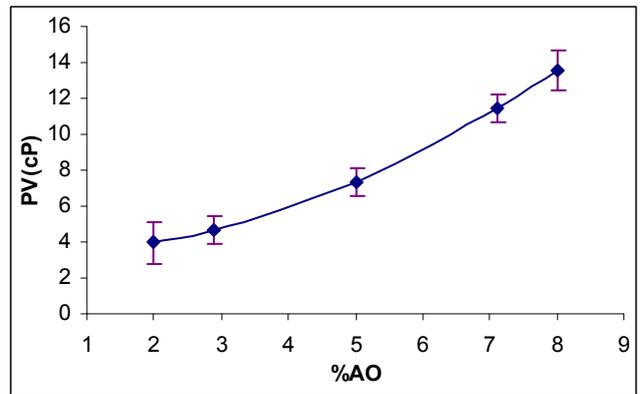
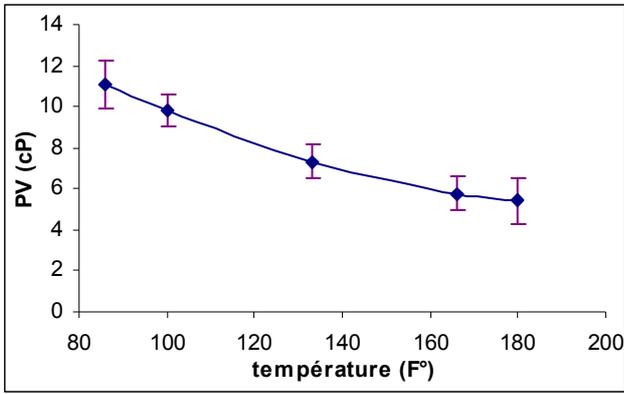
La matrice de corrélation linéaire issue des résultats expérimentaux obtenus, est affichée sur le tableau Tab.VII.8.

Tab.VII.8 : matrice de corrélation des paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil avant vieillissement

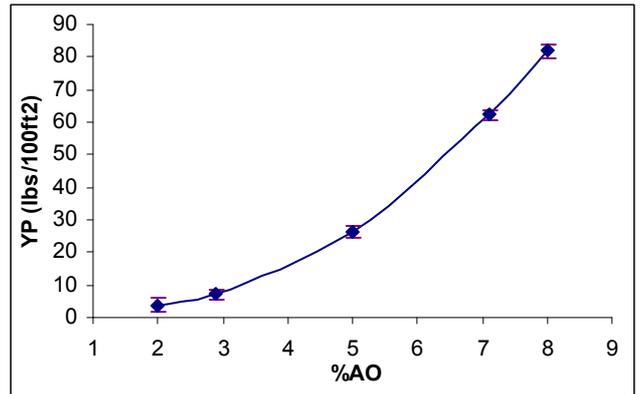
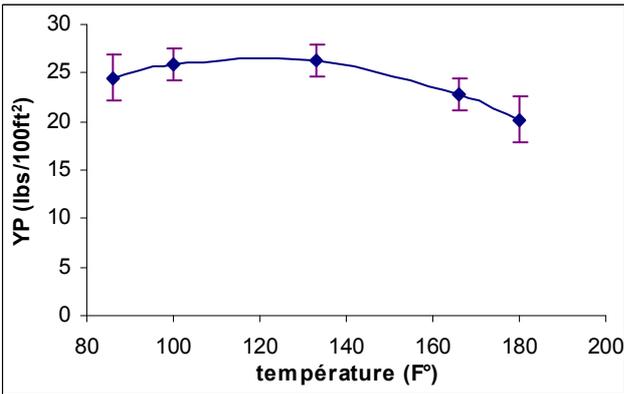
Réponse	YP	PV	Gel ₀	Gel ₁₀	τ ₀	K	n
YP	1	0.86	0.94	0.95	0.95	0.94	0.70
PV	0.86	1	0.96	0.95	0.77	0.80	0.78
Gel ₀	0.94	0.96	1	0.99	0.85	0.90	0.72
Gel ₁₀	0.95	0.95	0.99	1	0.86	0.90	0.72
τ ₀	0.95	0.77	0.85	0.86	1	0.88	0.76
K	0.94	0.80	0.90	0.90	0.88	1	0.52
n	0.70	0.78	0.72	0.72	0.76	0.52	1

Compte tenu du niveau de corrélation minimal $r_{0.05} = 0.60$, requis pour que la relation linéaire soit significative, les corrélations dont les coefficients sont écrits en gras, sont jugées négligeables.

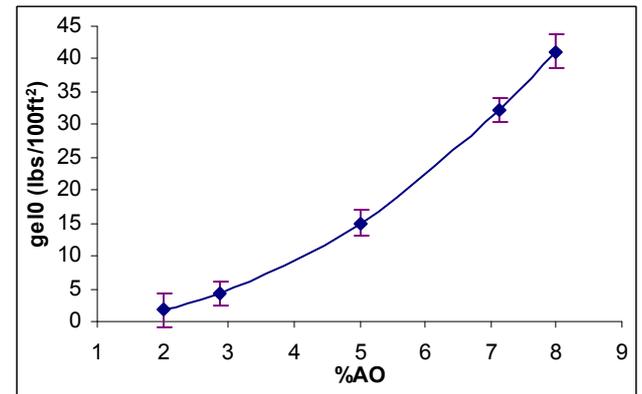
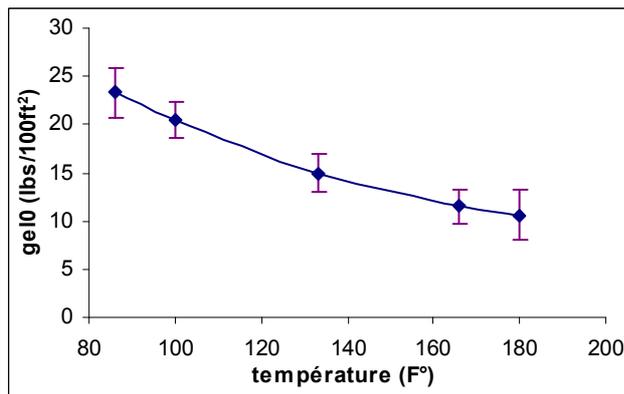
Pour l'ensemble de ces corrélations, aucune n'est suffisamment conséquente pour se traduire en une relation linéaire adéquate, sauf celle entre les réponses Gel₀ et Gel₁₀ dont les valeurs expérimentales sont pratiquement identiques.



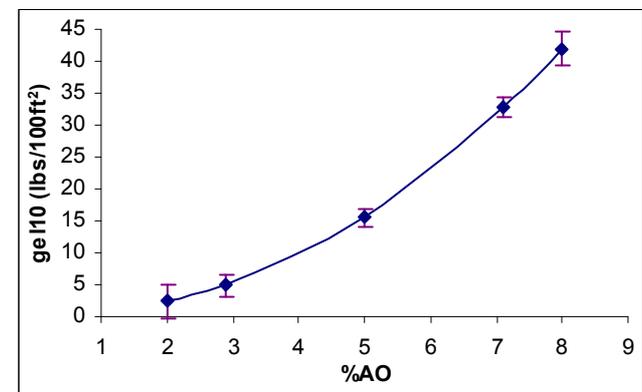
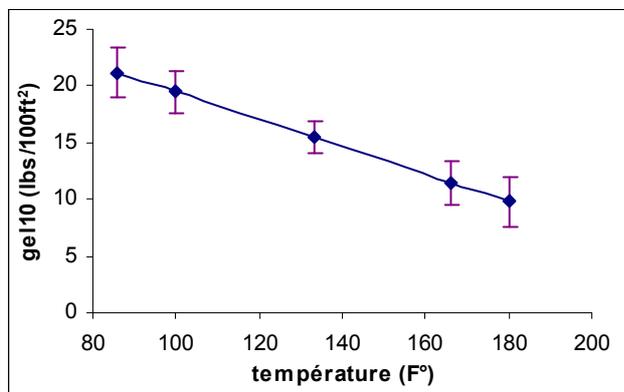
PV



YP

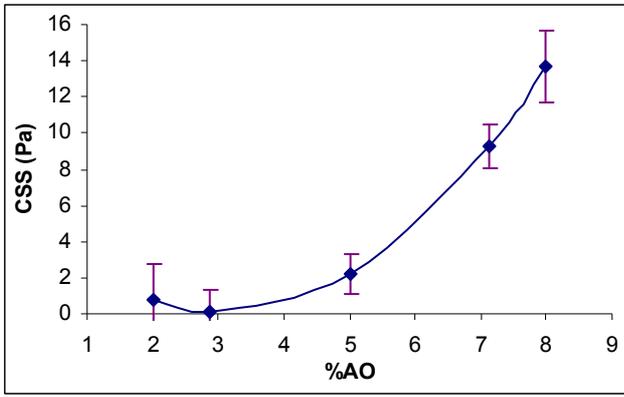


Gel₀

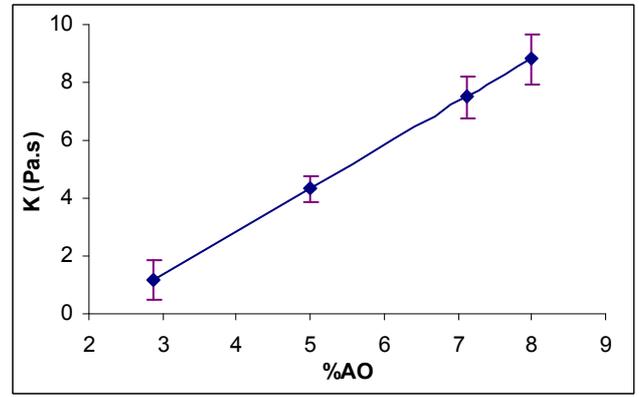


Gel₁₀

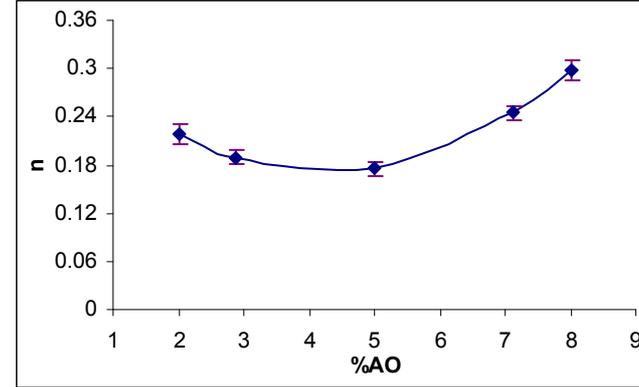
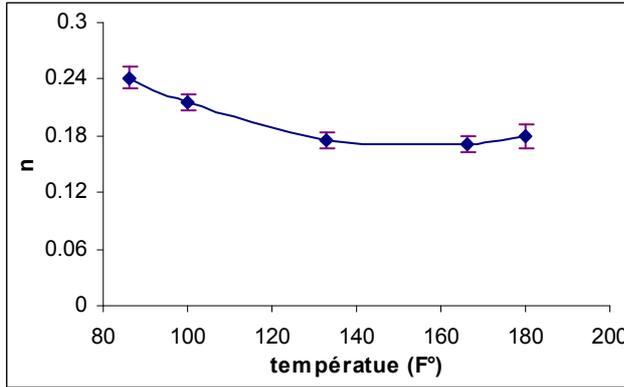
Fig.VII.36-43 : Courbes d'effets moyens de la température et du %AO sur les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil avant vieillissement



CSS

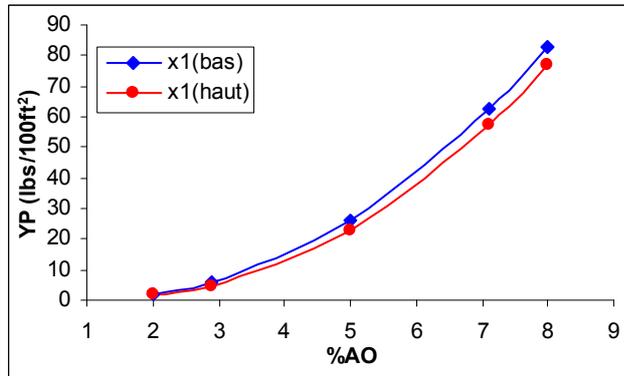


K

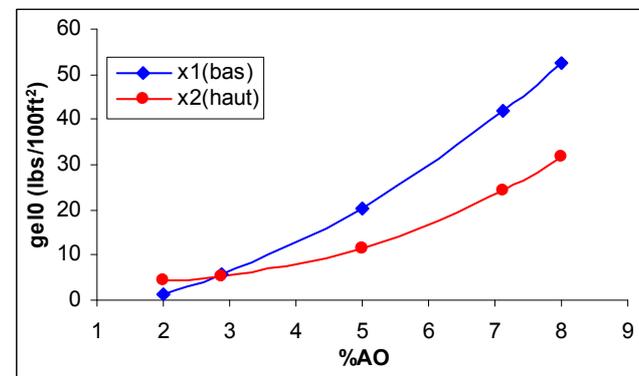


n

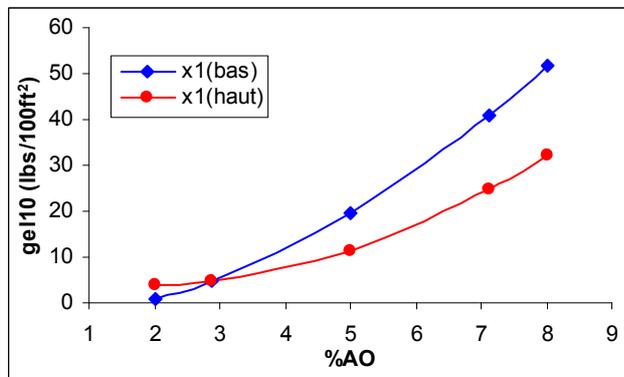
Fig.VII.44-47 : Courbes d'effets moyens de la température et du %AO sur les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil avant vieillissement



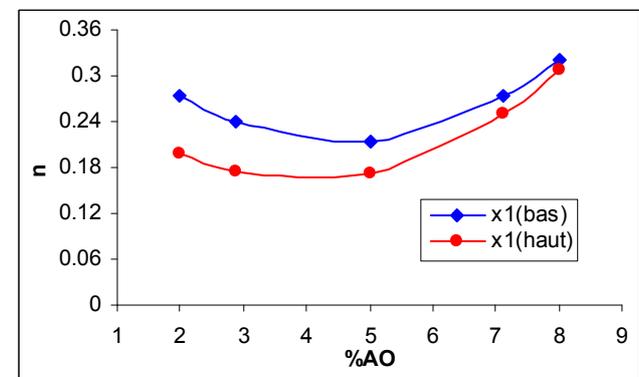
YP



Gel₁₀



Gel₁₀



n

Fig.VII.48-51 : Courbes des effets de l'interaction entre la température et le %AO sur les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil avant vieillissement

b. Plan après vieillissement

Il s'agit dans ce volet de modéliser les résultats expérimentaux obtenus à partir des tests rhéologiques, réalisés sur les échantillons de boue vieillis à 250F° pendant 16h à l'étuve rotative.

❖ Calcul des modèles

Les coefficients des modèles retenus après élimination des termes non significatifs, sont affichés pour l'ensemble des réponses, sur le tableau Tab.VII.9.

Tab.VII.9 : Coefficients des modèles retenus pour la boue AO + gasoil après vieillissement

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	PV (cP)		YP (lbs/100ft ²)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	6	0.44	24	1.11	15.06	0.90	14.88	0.94
x_1	-1.33	0.27	-2.61	0.68	-3.66	0.76	-3.86	0.79
x_2	3.47	0.27	31.90	0.68	19.65	0.76	18.92	0.79
x_1^2	0.63	0.32	-1.63	0.81	0	-	0	-
x_2^2	0.88	0.32	13.13	0.81	7.80	0.86	7.66	0.90
x_1x_2	0	-	0	-	3.5	1.07	-4.25	1.12

Termes du modèle	Coefficients des modèles					
	τ_0 (Pa)		K		n	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	4.85	0.20	6.50	0.53	0.200	0.004
x_1	0	-	-0.77	0.45	0	-
x_2	7.23	0.17	5.96	0.45	0.024	0.003
x_1^2	0	-	0	-	0	-
x_2^2	3.24	0.19	1.09	0.51	0.023	0.003
x_1x_2	0	-	0	-	0	-

Les faibles valeurs de l'erreur d'estimation $\sigma(\hat{a})$, est un premier indice de la qualité de ces modèles.

❖ Qualité des modèles

➤ Adéquation des modèles

Comme pour le plan précédent, l'analyse des résidus affirme l'adéquation des modèles retenus. Elle ne fait apparaître ni des résultats aberrants, ni des variances hétérogènes, ni des distributions dépendantes des niveaux des réponses calculées.

Les éléments de l'analyse de la variance sont affichés dans le tableau Tab.VII.10. Ces valeurs traduisent un très bon ajustement des modèles pour l'ensemble des réponses. Les valeurs de R^2 sont toutes très proches de 1 ($R^2 > 0.93$) et les variances résiduelles sont négligeables devant les variances de régression. Les valeurs du F_{exp} sont toutes inférieures aux valeurs de F_{crit} , et les probabilités que les variances d'ajustement soient négligeables devant les variances naturelles, sont toutes satisfaisantes. Il faut noter aussi, la bonne reproductibilité des résultats expérimentaux, reflétée par les faibles variances de répétition.

Tab.VII.10 : Analyse de la variance pour les modèles retenus de la boue AO + gasoil après vieillissement

Réponses	PV	YP	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_0	K	n
Modèle <i>M</i>							
<i>ddl</i>	4	4	4	4	2	3	2
<i>V</i>	28.87	2337.10	905.20	854.63	241.84	98.88	$3.9 \cdot 10^{-3}$
σ	5.37	48.34	30.09	29.23	15.55	9.94	0.063
Résidu <i>e</i>							
<i>ddl</i>	6	6	6	6	8	7	8
<i>V</i>	0.57	3.69	4.57	5.04	0.23	1.60	$7.3 \cdot 10^{-5}$
σ	0.76	1.92	2.14	2.24	0.48	1.26	0.009
Erreur pure ε							
<i>ddl</i>	2	2	2	2	2	2	2
<i>V</i>	1	3	4	4.33	0.06	0.44	$1.5 \cdot 10^{-4}$
σ	1	1.73	2	2.08	0.25	0.66	0.012
Ajustement Δ							
<i>ddl</i>	4	4	4	4	6	5	6
<i>V</i>	0.36	4.04	4.85	5.39	0.29	2.06	$4.6 \cdot 10^{-5}$
σ	0.6	2.01	2.20	2.32	0.54	1.44	0.007
F_{exp}	0.36	1.35	1.21	1.24	4.49	4.74	0.30
F_{crit}	19.2	19.2	19.2	19.2	19.3	19.3	19.3
<i>pr</i>	0.82	0.47	0.50	0.49	0.19	0.18	0.90
R^2	0.971	0.998	0.992	0.991	0.996	0.964	0.931

➤ **Prédiction des modèles**

Les valeurs du coefficient de prédiction Q^2 et les formules des fonctions erreur sur les réponses estimées $\sigma(\hat{y})$, s'écrivent comme suit :

$$\sigma(PV) = 0.76(0.33 - 0.21(x_1^2 + x_2^2) + 0.18(x_1^4 + x_2^4) + 0.1x_1^2x_2^2)^{1/2} \text{ (cP)} \quad Q^2 = 0.908$$

$$\sigma(YP) = 1.92(0.33 - 0.21(x_1^2 + x_2^2) + 0.18(x_1^4 + x_2^4) + 0.1x_1^2x_2^2)^{1/2} \text{ (lbs/100ft}^2\text{)} \quad Q^2 = 0.990$$

$$\sigma(Gel_0) = 2.14(0.18 + 0.13x_1^2 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4 + 0.25x_1^2x_2^2)^{1/2} \text{ (lbs/100ft}^2\text{)} \quad Q^2 = 0.977$$

$$\sigma(Gel_{10}) = 2.24(0.18 + 0.13x_1^2 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4 + 0.25x_1^2x_2^2)^{1/2} \text{ (lbs/100ft}^2\text{)} \quad Q^2 = 0.970$$

$$\sigma(\tau_0) = 0.48(0.18 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4)^{1/2} \text{ (Pa)} \quad Q^2 = 0.990$$

$$\sigma(K) = 1.26(0.18 + 0.13x_1^2 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4)^{1/2} \quad Q^2 = 0.872$$

$$\sigma(n) = 8.5(0.18 - 0.11x_2^2 + 0.16x_2^4)^{1/2} \cdot 10^{-3} \quad Q^2 = 0.873$$

Les isoerreurs sur les réponses prédites sont tracées sur les figures Fig.VII.52-58. Elles permettent aisément de dire que les incertitudes sur les réponses calculées sont très satisfaisantes, ce qui reflète le pouvoir prédictif des modèles. Cette erreur est la plus faible au voisinage du centre d'étude, pour augmenter en direction de ces abords. Les prédictions sont donc d'autant plus précises qu'on s'approche du centre.

Les valeurs du coefficient Q^2 sont toutes supérieures à 0.7, et qui plus est certaines sont très proches de 1.

L'histogramme récapitulatif des coefficients R^2 et Q^2 présenté sur la figure Fig.VII.59, témoigne amplement de la bonne qualité des modèles proposés.

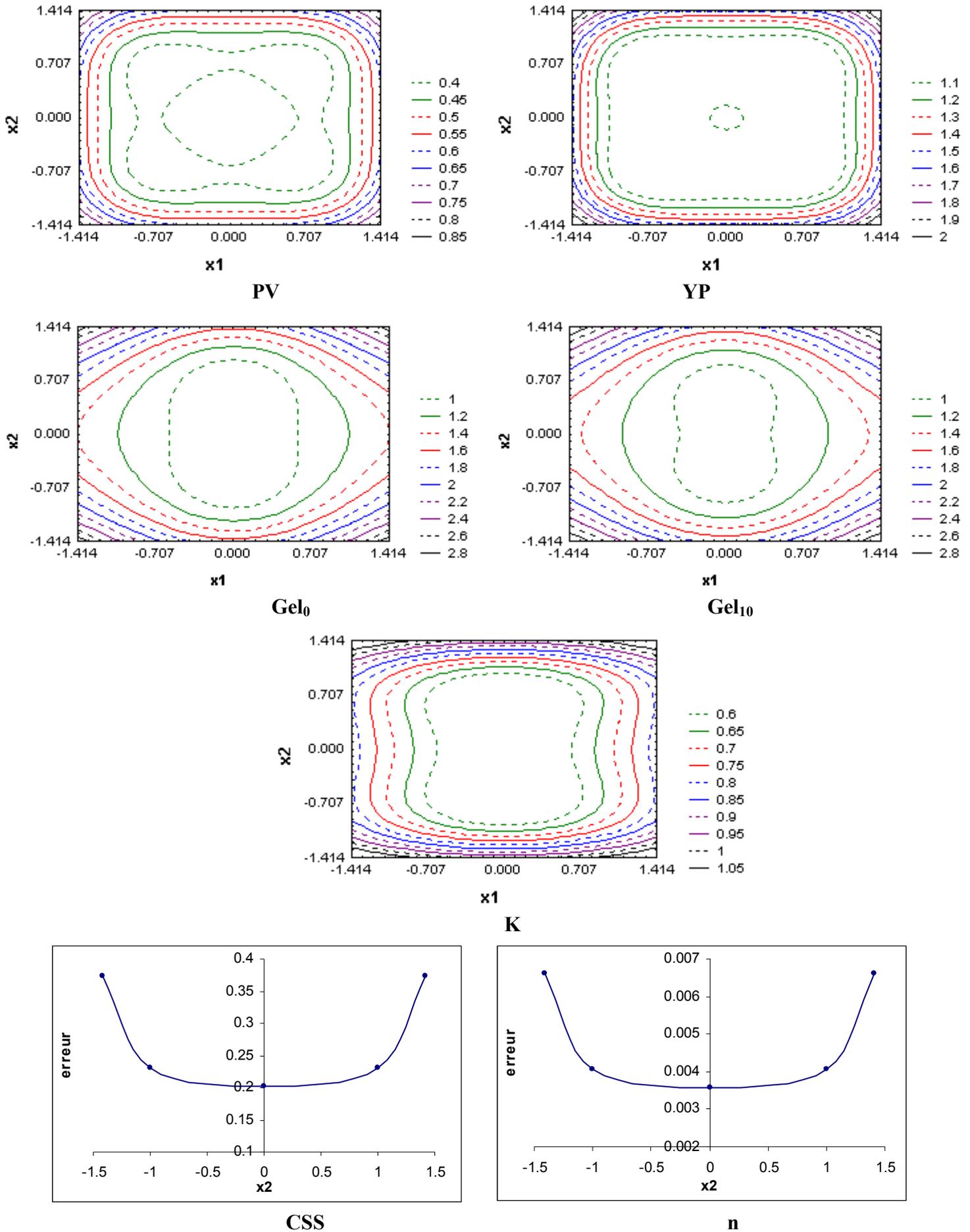


Fig.VII.52-58: Courbes d'isoeurres sur les réponses prédites

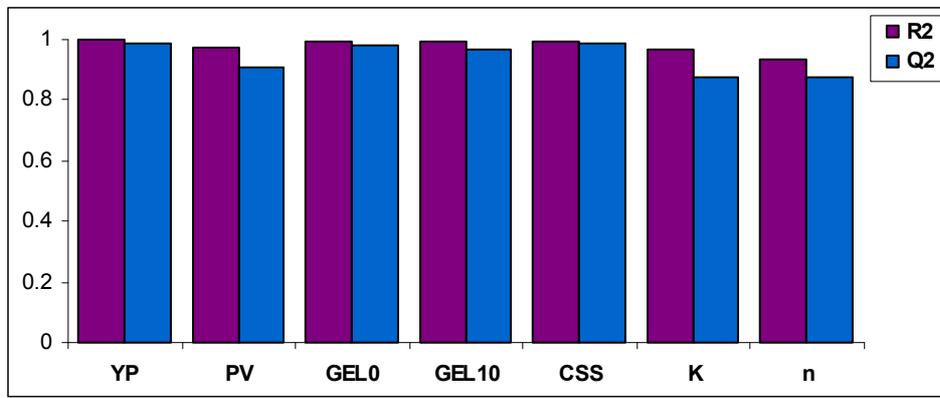


Fig.VII.59 : Histogramme des coefficients R^2 et Q^2 des modèles de la boue AO + gazoil après vieillissement

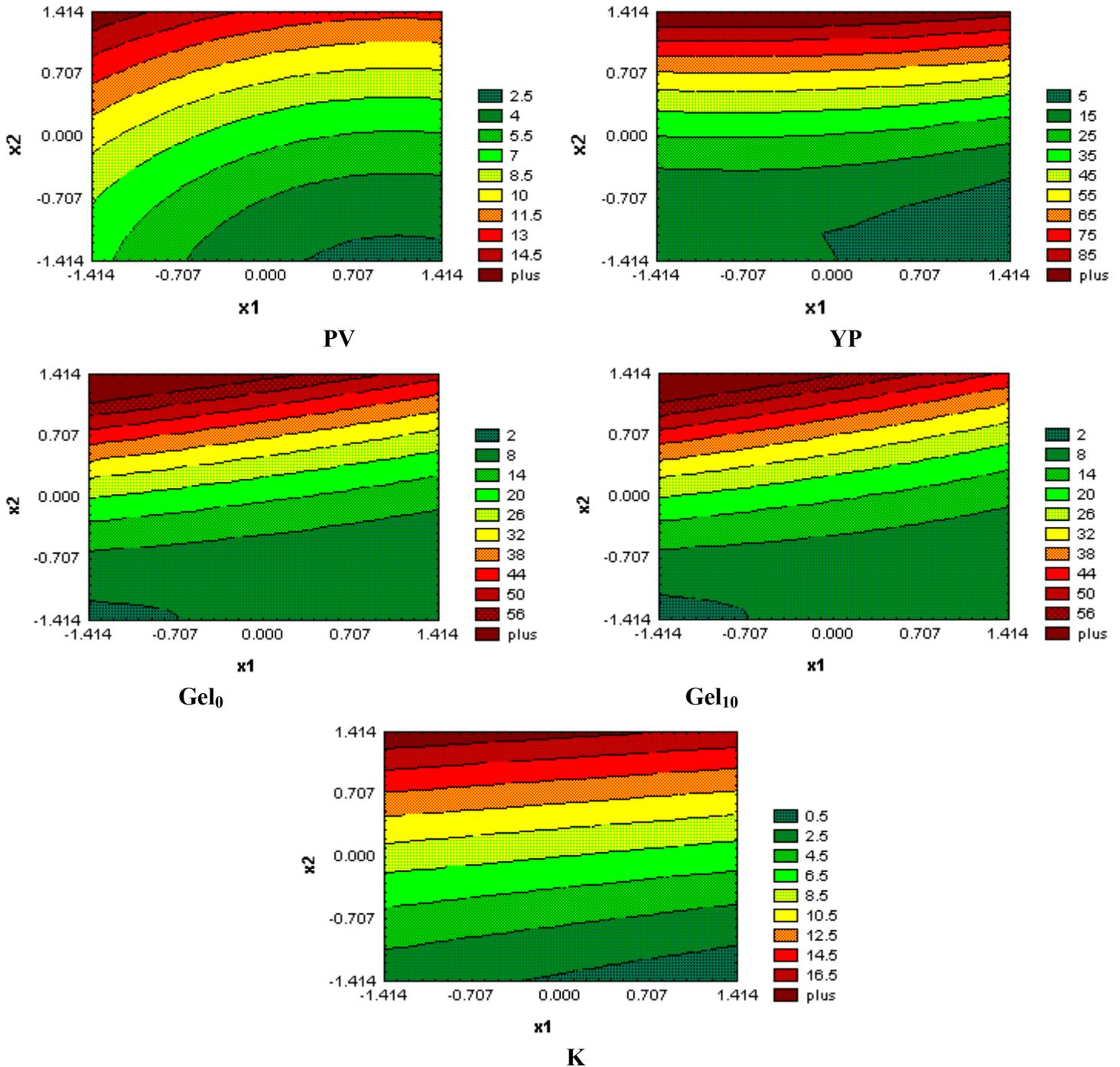


Fig.VII.60-64: Courbes d'isovaleurs des paramètres rhéologiques de la boue AO + gazoil après vieillissement

❖ Validation des modèles

Les résultats des tests réalisés à 150F° après vieillissement, sont utilisés pour la validation. Les éléments de comparaison sont rapportés sur le tableau Tab.VII.11.

Tab.VII.11 : Test de validation des modèles retenus de la boue AO + gasoil après vieillissement

%AO	PV (cP)			YP (lbs/100ft ²)			Gel ₀ (lbs/100ft ²)			Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)		
	<i>y</i>	\hat{y}	IC	<i>y</i>	\hat{y}	IC	<i>y</i>	\hat{y}	IC	<i>y</i>	\hat{y}	IC
2	3	2.33	1.48	3	3.4	3.76	2	3.52	4.58	3	4.55	4.81
2.88	3	2.89	1	4	3.47	2.52	4	3.12	2.98	4	3.82	3.13
5	5	5.48	1	20	22.23	2.54	14	13.18	2.39	13	12.9	2.51
7.12	10	9.82	1	68	67.26	2.52	37	38.84	2.98	35	37.32	3.13
8	11	12.14	1.48	91	93.65	3.76	51	54.07	4.58	49	51.95	4.81

%AO	τ_0 (Pa)			K			n		
	<i>y</i>	\hat{y}	IC	<i>y</i>	\hat{y}	IC	<i>y</i>	\hat{y}	IC
2	0.49	1.10	0.86	-	-	-	-	-	-
2.88	0.86	0.85	0.53	1.41	1.23	1.53	0.197	0.199	0.009
5	4.75	4.84	0.47	6.24	6.11	1.37	0.196	0.200	0.008
7.12	14.95	15.32	0.53	14.40	13.16	1.57	0.257	0.247	0.010
8	21.8	21.58	0.86	16.75	16.73	2.33	0.285	0.280	0.015

Les résultats des essais appartiennent bel et bien aux intervalles de confiance des prédictions, on peut dire que les modèles sont validés.

❖ Exploitation des modèles

Les formules développées des modèles retenus pour les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil après vieillissement, s'écrivent comme suit :

$$PV = 6 - 1.33x_1 + 3.47x_2 + 0.63x_1^2 + 0.88x_2^2 \quad (\text{cP})$$

$$YP = 24 - 2.61x_1 + 31.89x_2 - 1.63x_1^2 + 13.13x_2^2 \quad (\text{lbs/100ft}^2)$$

$$Gel_0 = 15.06 - 3.67x_1 + 19.65x_2 + 7.8x_2^2 - 3.5x_1x_2 \quad (\text{lbs/100ft}^2)$$

$$Gel_{10} = 14.88 - 3.86x_1 + 18.92x_2 + 7.66x_2^2 - 4.25x_1x_2 \quad (\text{lbs/100ft}^2)$$

$$\tau_0 = 4.85 + 7.24x_2 + 3.24x_2^2 \quad (\text{Pa})$$

$$K = 6.5 - 0.77x_1 + 5.97x_2 + 1.09x_2^2$$

$$n = (20.03 + 2.39x_2 + 2.30x_2^2) \cdot 10^{-2}$$

Ces expressions permettent de tracer les courbes d'isovaleurs présentées sur les figures Fig.VII.60-64. Ces isoréponses permettent de visualiser l'évolution des paramètres rhéologiques de cette boue, en fonction des deux facteurs à la fois et sur toute la plage expérimentale. On peut ainsi tirer directement à partir de ces graphiques, la valeur estimée du paramètre désiré, à n'importe quel point du domaine d'étude.

Le tableau Tab.VII.12 rassemble les effets des actions de ces modèles sur les réponses étudiées. Il montre l'évolution moyenne de chaque réponse, lorsque le terme considéré varie de sa valeur minimum à sa valeur maximum. Chaque effet est accompagné par l'intervalle de confiance dans son estimation.

Tab.VII.12 : Effets des actions des modèles retenus pour la boue AO + gasoil après vieillissement

Actions du modèle	Effets sur les réponses							
	PV (cP)		YP (lbs/100ft ²)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	
	Effet	IC	Effet	IC	Effet	IC	Effet	IC
x_1	-2.66	1.31	-5.23	3.32	-7.33	3.70	-7.73	3.88
x_2	6.93	1.31	63.78	3.32	39.30	3.70	37.84	3.88
x_1^2	1.25	1.56	-3.25	3.95	0	-	0	-
x_2^2	1.75	1.56	26.26	3.95	15.59	4.21	15.33	4.41
x_1x_2	0	-	0	-	-7	5.23	-8.50	5.49

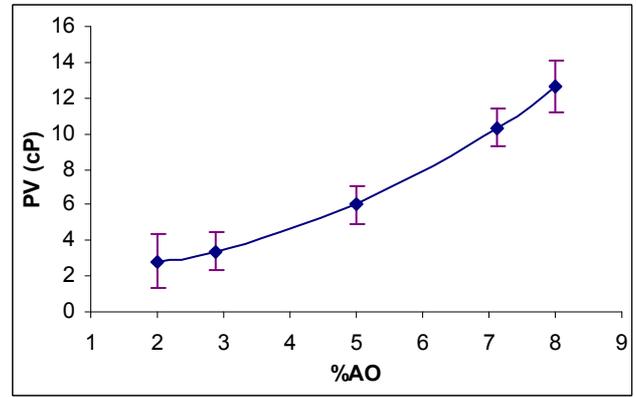
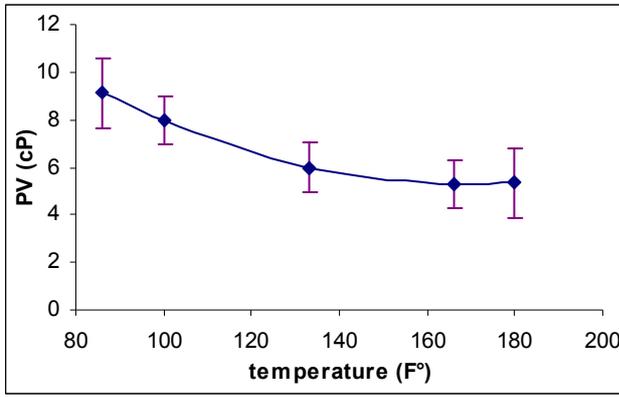
Actions du modèle	Effets sur les réponses					
	τ_0 (Pa)		K		n	
	Effet	IC	Effet	IC	Effet	IC
x_1	0	-	-1.53	2.11	0	-
x_2	14.47	0.79	11.93	2.11	0.048	0.014
x_1^2	0	-	0	-	0	-
x_2^2	6.49	0.89	2.18	2.40	0.046	0.016
x_1x_2	0	-	0	-	0	-

Pour l'ensemble des réponses, les courbes d'effets propres de la température et du %AO, sont tracées sur les figures Fig.VII.65-76. De même qu'avant vieillissement, il apparaît clairement sur ces graphes, le faible effet de la température (en particulier sur τ_0 , K, YP et n) qui tend à fluidifier la boue, et l'augmentation considérable des paramètres rhéologiques de cette boue (YP, Gel, K et τ_0) en fonction du %AO, qui tend à l'épaissir (surtout pour %AO > 3%).

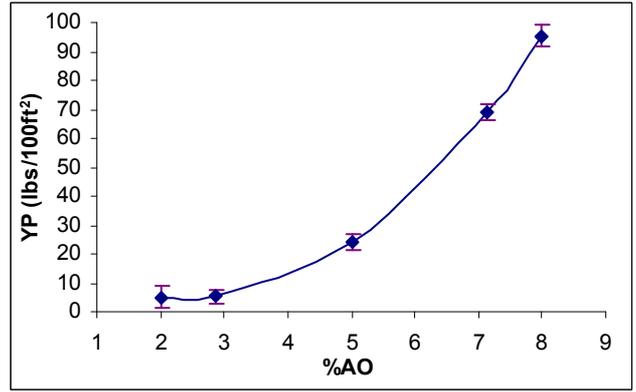
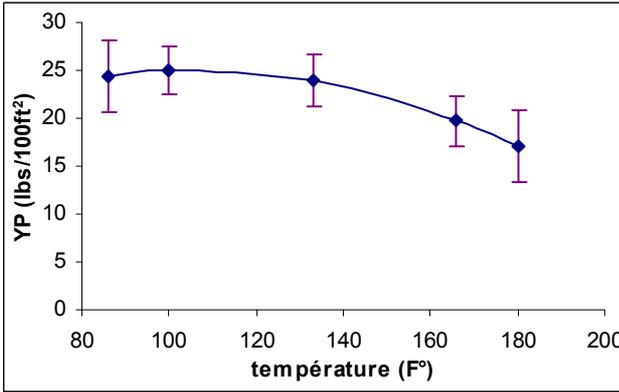
Bien que certaines allures aient légèrement changé par rapport à la boue fraîche, le vieillissement à haute température ne semble pas avoir affecté les propriétés rhéologiques de ce fluide. Au contraire, ces derniers sont montés d'un cran, et sont devenus encore plus robustes à la chaleur. On peut ainsi dire que ce traitement a eu un effet bénéfique sur cette boue.

L'évolution du gel (Gel₀ et Gel₁₀) semble assez sensible à l'interaction entre l'effet de la température et celui du %AO. Les figures Fig.VII.77-78 montrent que la variation de ces deux paramètres en fonction du %AO (ou de la température), dépend du niveau de la température (ou du %AO). Cette dépendance n'est cependant pas excessive, le manque de parallélisme des courbes n'est pas très accentué.

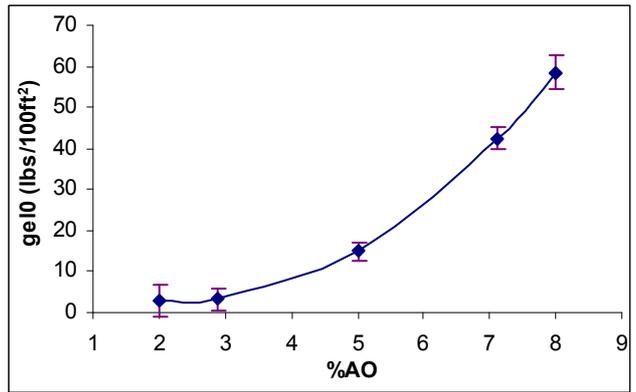
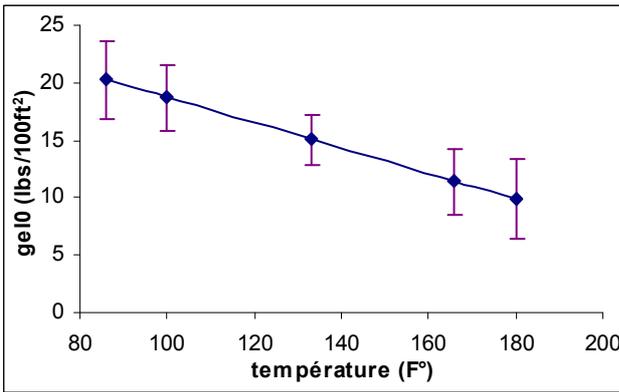
Les modèles des autres réponses ne font pas apparaître le terme d'interaction (x_1x_2), ce qui signifie que l'effet de cette dernière est soit nul soit négligeable.



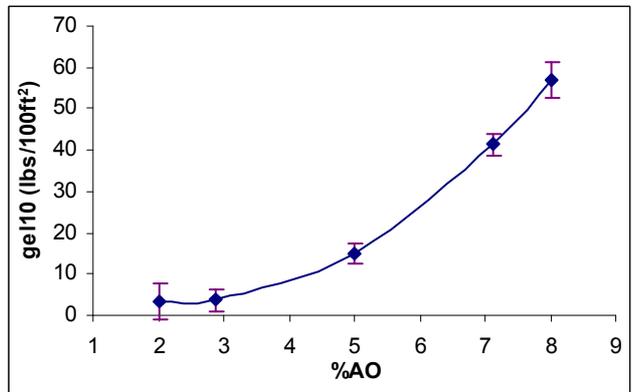
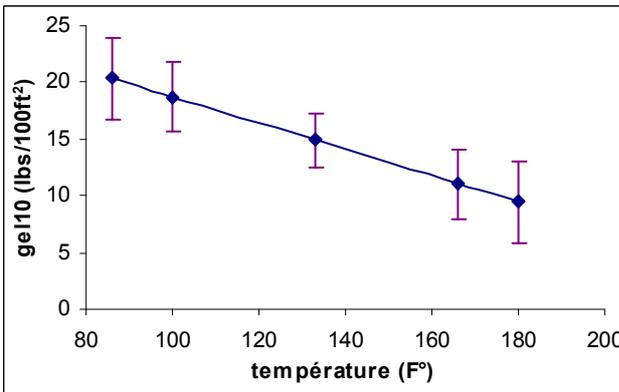
PV



YP

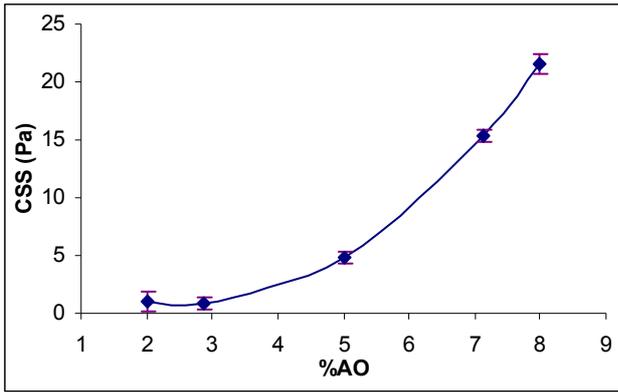


Gel₀

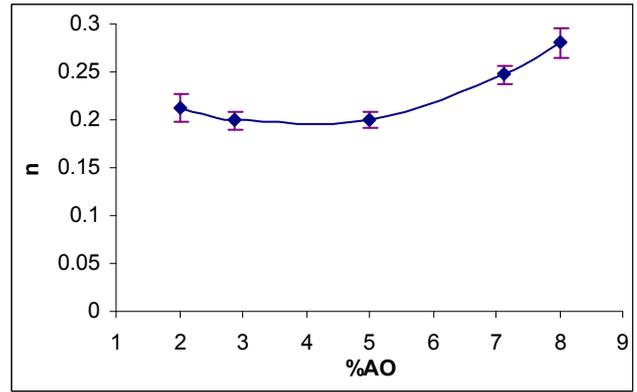


Gel₁₀

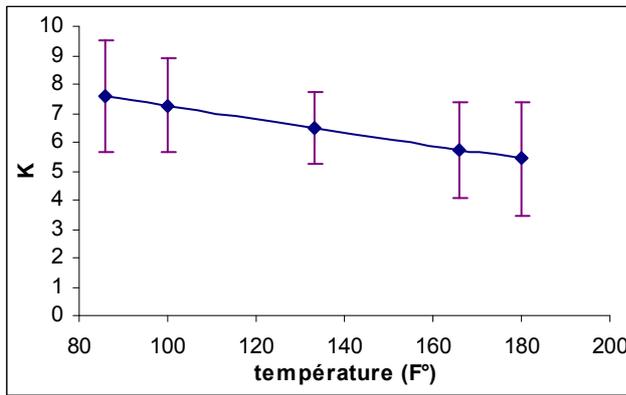
Fig.VII.65-72 : Courbes d'effets moyens de la température et du %AO sur les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil après vieillissement



CSS



n



K

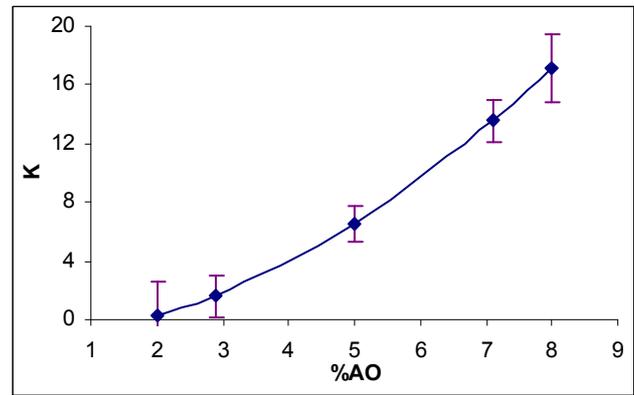
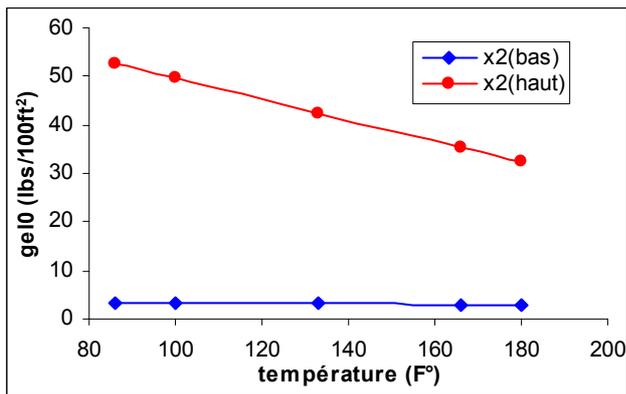
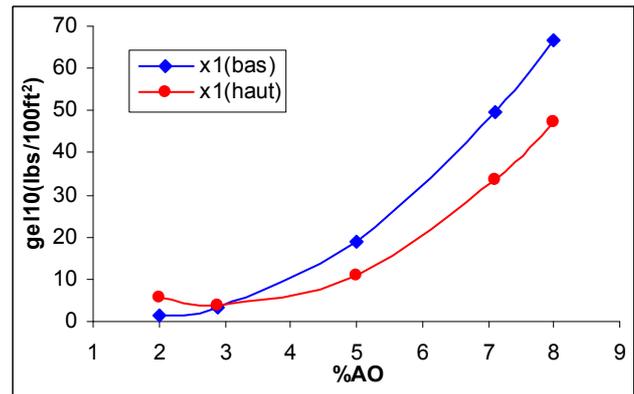


Fig.VII.73-76 : Courbes d'effets moyens de la température et du %AO sur les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil après vieillissement



Gel₀



Gel₁₀

Fig.VII.77-78 : Courbes des effets de l'interaction entre la température et le %AO sur les paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil après vieillissement

❖ **Evaluation des corrélations**

Les valeurs des coefficients de corrélation linéaires entre les réponses étudiées, sont affichées dans le tableau Tab.VII.13.

Tab.VII.13 : matrice de corrélation des paramètres rhéologiques de la boue AO + gasoil après vieillissement

Réponse	YP	PV	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_0	K	n
YP	1	0.92	0.99	0.98	0.99	0.96	0.90
PV	0.92	1	0.94	0.94	0.88	0.96	0.76
Gel ₀	0.99	0.94	1	0.99	0.96	0.97	0.87
Gel ₁₀	0.98	0.94	0.99	1	0.96	0.96	0.86
τ_0	0.99	0.88	0.96	0.96	1	0.94	0.91
K	0.96	0.96	0.97	0.96	0.94	1	0.78
n	0.90	0.76	0.87	0.86	0.91	0.78	1

Le niveau de corrélation seuil est de $r_{9;0.05} = 0.60$, par voie de conséquence, les liaisons entre les réponses sont toutes significatives. Celles qui peuvent être traduites en relations linéaires suffisamment adéquates, s'écrivent :

$$Gel_0 (lbs / 100 ft^2) = 0.62YP (lbs / 100 ft^2) + 0.78$$

$$Gel_{10} (lbs / 100 ft^2) = 0.60YP (lbs / 100 ft^2) + 1.19$$

$$\tau_0 (Pa) = 0.23YP (lbs / 100 ft^2) - 0.11$$

Les résultats expérimentaux de Gel₀ et Gel₁₀ sont pratiquement identiques, la corrélation est presque totale.

VII.3 L'argile hydrophile modifiée AHM

a. Etude de l'effet du pourcentage en AHM

On se contente dans cette partie, de modéliser les paramètres PV, YP, Gel₀ et Gel₁₀ de la boue fraîche AHM + eau, en fonction du pourcentage en viscosifiant AHM.

❖ Calcul des modèles

Les coefficients des modèles proposés pour traduire l'évolution de ces réponses, sont affichés dans le tableau Tab.VI.14.

Tab.VII.14 : Coefficients des modèles retenus pour les paramètres rhéologiques de la boue fraîche AHM + eau

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	PV (cP)		YP (lbs/100ft ²)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	8.51	0.30	45.58	0.38	19.25	0.27	21.41	0.43
x	1.4	0.19	15.7	0.24	5.1	0.17	5.2	0.28
x^2	-0.86	0.13	-0.91	0.17	-0.57	0.12	-0.88	0.20

Les tests de significativité ont tous donné des probabilités $pr \leq 0.01$, indiquant des effets hautement significatifs (HS) pour l'ensemble de ces coefficients.

❖ Qualité des modèles

➤ Adéquation des modèles

Les résultats de l'analyse de la variance sont rapportés dans le tableau Tab.VII.15.

Tab.VII.15 : Analyse de la variance pour les modèles retenus de la boue fraîche AHM + eau

Réponses	PV	YP	Gel ₀	Gel ₁₀
Modèle M				
<i>ddl</i>	2	2	2	2
V	17.01	1240.54	133.28	142.90
σ	4.12	35.22	11.54	11.95
Résidu e				
<i>ddl</i>	4	4	4	4
V	0.35	0.59	0.29	0.76
σ	0.59	0.77	0.54	0.87
Erreur pure ε				
<i>ddl</i>	2	2	2	2
V	0.33	0.33	0.33	0.33
σ	0.57	0.57	0.57	0.57
Ajustement Δ				
<i>ddl</i>	2	2	2	2
V	0.37	0.84	0.24	1.19
σ	0.61	0.92	0.49	1.09
F_{exp}	1.12	2.53	0.73	3.57
F_{crit}	19	19	19	19
pr	0.47	0.28	0.58	0.22
R^2	0.960	0.999	0.996	0.989

Ce tableau fait parfaitement ressortir le très bon ajustement des modèles retenus. Les variances expliquées par ces modèles représentent pratiquement la totalité des variances expérimentales observées, ce qui s'est traduit par des valeurs très proches de 1 du coefficient R^2 ($R^2 \geq 0.96$). Les valeurs du F_{exp} sont nettement inférieures à celles de F_{crit} , et les probabilités pr que les variances du manque d'ajustement soient négligeables, sont toutes supérieures à la valeur critique ($pr = 0.05$). Cela malgré la faible variance due aux erreurs expérimentaux ($V(\varepsilon) = 0.33$), qui d'ailleurs reflète la bonne répétabilité des expériences, et l'absence de tout facteur perturbateur.

Les graphes rapportés sur les figures Fig.VII.79-82, de la réponse observée via la réponse estimée, ne font que confirmer la bonne représentation des résultats des essais par les modèles proposés. Les points ne s'écartent que très peu de la première bissectrice.

➤ Prédiction des modèles

Pour chaque paramètre, la répartition de l'erreur sur la réponse prédite dans tout le domaine expérimental, est donnée par la fonction $\sigma(\hat{y})$. Chacune de ces formules est accompagnée par la valeur du coefficient de prédiction Q^2 .

$$\sigma(PV) = 0.59(0.25 - 0.04x^2 + 0.05x^4)^{1/2} \quad (\text{cP}) \quad Q^2 = 0.754$$

$$\sigma(YP) = 0.77(0.25 - 0.04x^2 + 0.05x^4)^{1/2} \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2) \quad Q^2 = 0.990$$

$$\sigma(Gel_0) = 0.54(0.25 - 0.04x^2 + 0.05x^4)^{1/2} \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2) \quad Q^2 = 0.972$$

$$\sigma(Gel_{10}) = 0.87(0.25 - 0.04x^2 + 0.05x^4)^{1/2} \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2) \quad Q^2 = 0.901$$

Ces expressions sont issues de la fonction erreur de prédiction $d(\hat{y})$, tracée sur la figure Fig.VII.83. Celle ci permet de dire que l'erreur sur la réponse estimée, est inférieure à l'écart résiduel. Le manque d'ajustement étant négligeable, on peut dire que les prédictions sont tout aussi précises que les résultats des essais. Cela est le synonyme d'un très bon pouvoir prédictif, qui est d'ailleurs bien mis en évidence par les très bonnes valeurs du coefficient Q^2 .

De même que précédemment, on rapporte dans la figure Fig.VII.84, l'histogramme récapitulatif des coefficients R^2 et Q^2 .

❖ Exploitation des modèles

Les formules développées des modèles retenus pour les paramètres rhéologiques étudiés de la boue fraîche AHM +eau, s'écrivent comme suit :

$$PV = 8.51 + 1.40x - 0.86x^2 \quad (\text{cP})$$

$$YP = 45.58 + 15.70x - 0.91x^2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

$$Gel_0 = 19.25 + 5.10x - 0.57x^2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

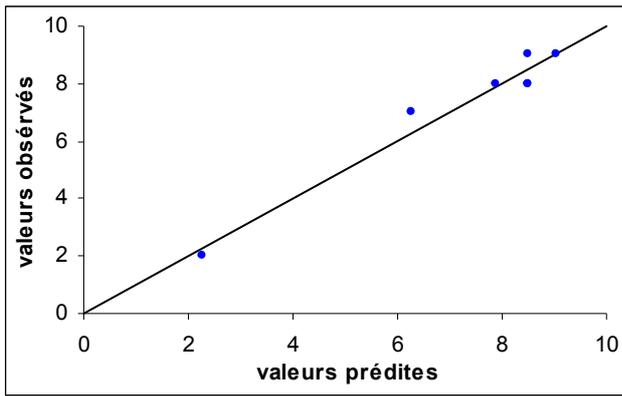
$$Gel_{10} = 21.41 + 5.20x - 0.88x^2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

Il apparaît bien que le %AHM tend à augmenter ces paramètres rhéologiques en agissant plus par un effet linéaire. Bien que très modéré, l'effet quadratique n'est pas négligeable, et se fait sentir par les faibles courbures des graphes d'évolution de ces réponses, tracés en fonction du pourcentage en AHM, sur les figures Fig.VII.85-88.

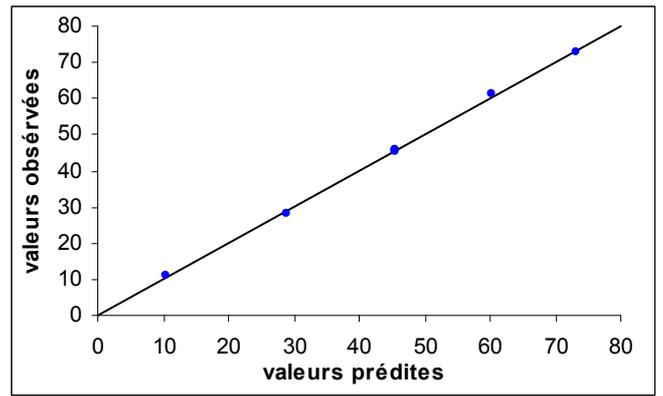
Au-delà de 3% en AHM (la zone intéressante), la PV reste pratiquement figée à la modeste valeur de 8cP, alors qu'au contraire, la YP grimpe rapidement, et le gel évolue moyennement. C'est là, les propriétés typiques de la boue désirée, et le comportement visé de l'utilisation du produit AHM comme viscosifiant.

Les réponses YP, Gel_0 et Gel_{10} sont hautement corrélées, on peut aisément écrire :

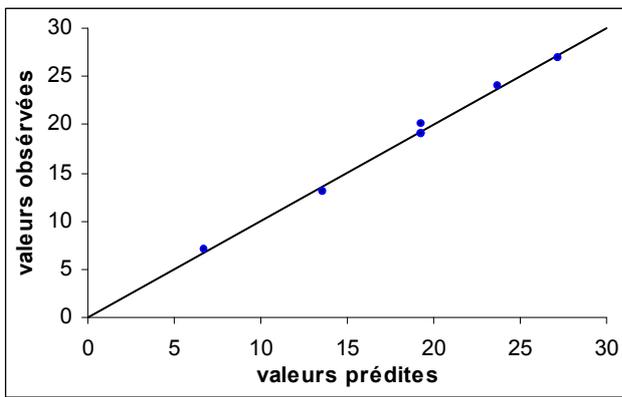
$$Gel_0 = 0.33YP + 3.95 \quad \text{et} \quad Gel_{10} = 0.34YP + 5.28 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2).$$



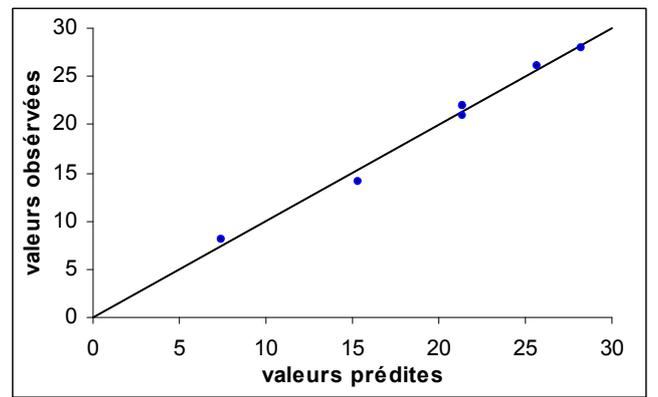
PV



YP



Gel₀



Gel₁₀

Fig.VII.79-82: Graphes des réponses observées en fonction des réponses prédites

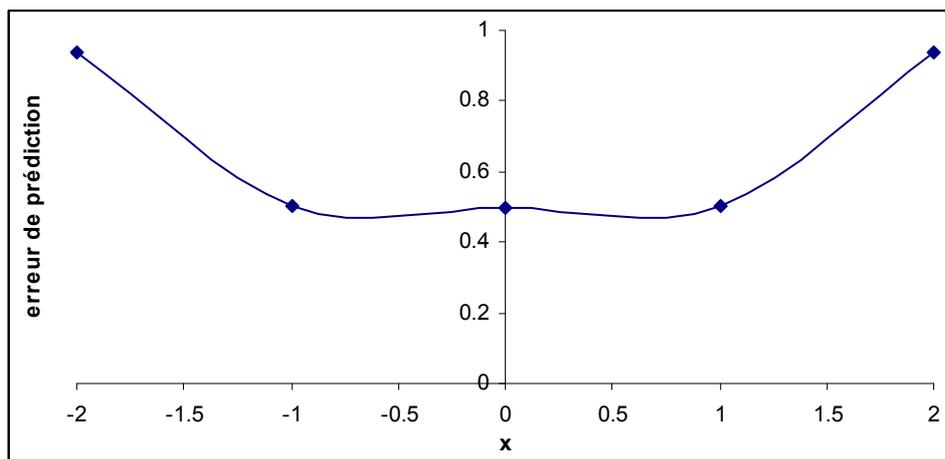


Fig.VII.83 : Erreur de prédiction des modèles retenus pour la boue fraîche AHM + eau

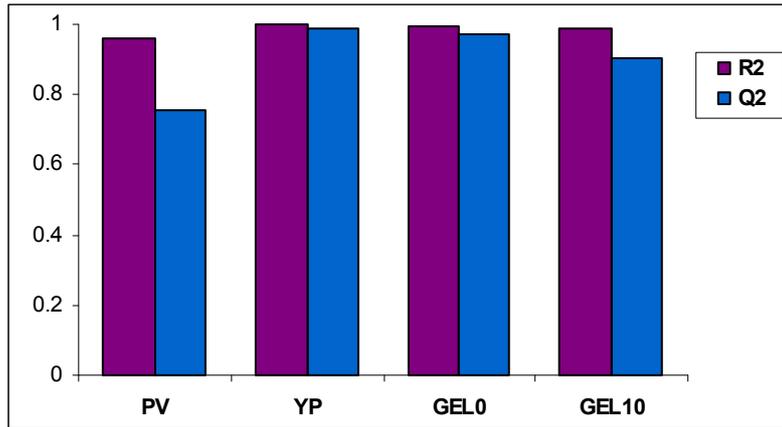
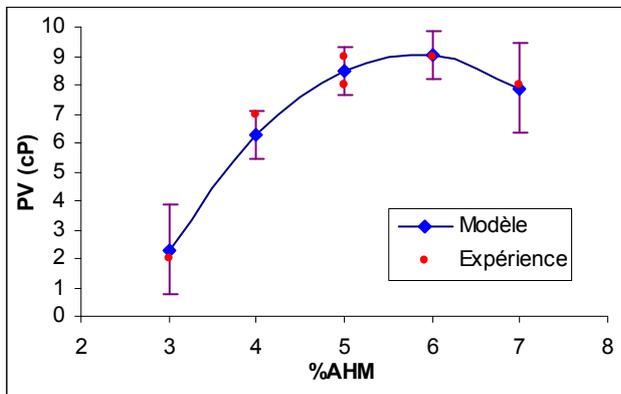
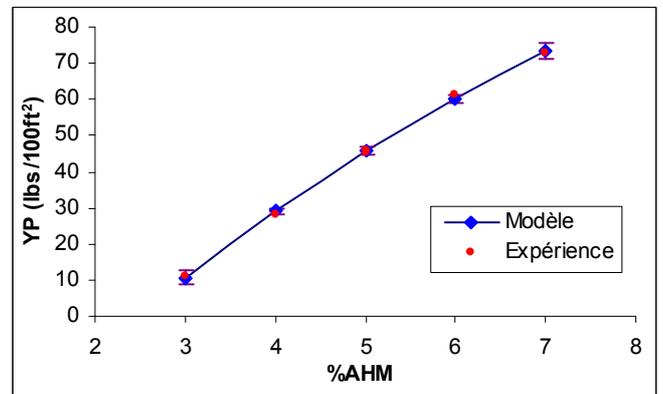


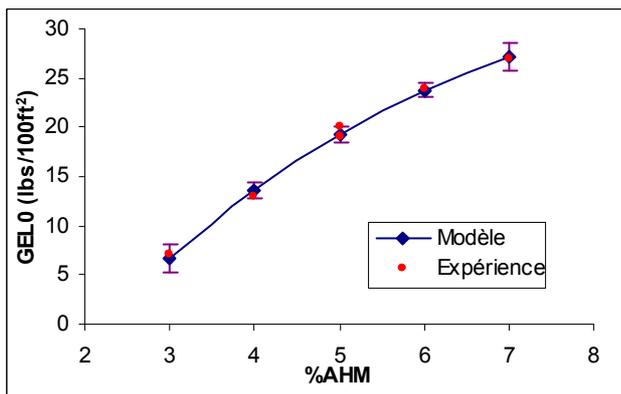
Fig.VII.84 : Histogramme des coefficients R^2, Q^2 des modèles retenus pour la boue fraîche AHM + eau



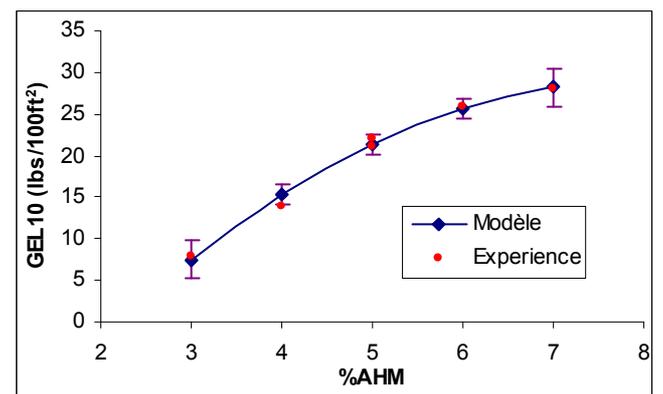
PV



YP



Gel₀



Gel₁₀

Fig.VII.85-88: Evolution des paramètres rhéologiques de la boue fraîche AHM + eau en fonction du %AHM

VII.3.b Comportement de la boue AHM + eau après vieillissement

Il s'agit de modéliser la variation des paramètres rhéologiques de la boue AHM + eau, en fonction de la température et du pourcentage en AHM, après vieillissement dynamique des échantillons à 250F° pendant 16h à l'étuve rotative.

Les paramètres concernés sont : YP, Gel₀, Gel₁₀, τ_0 (notée CSS) et les coefficients A, B et μ_∞ (notée C) du modèle de Williamson.

Le paramètre PV est pratiquement constant, il ne varie ni en fonction de la température ni en fonction du %AHM.

❖ Calcul des modèles

Les coefficients des modèles empiriques retenus, accompagnés des erreurs d'estimation sont affichés dans le tableau Tab.VII.16.

Tab.VII.16 : Coefficients des modèles retenus pour la boue AHM + eau après vieillissement

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	YP (lbs/100ft ²)		Gel ₀ (lbs/100ft ²)		Gel ₁₀ (lbs/100ft ²)		τ_0 (Pa)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	64	0.89	23	0.20	22.8	0.34	7.01	0.29
x_1	0	-	0	-	-0.17	0.31	2.24	0.27
x_2	14.17	0.81	5	0.27	5	0.31	2.95	0.27
x_1^2	0	-	0	-	1.7	0.47	0	-
x_2^2	-5.5	1.20	0	-	0	-	1.55	0.39
x_1x_2	0	-	0	-	0	-	0	-

Termes du modèle	Coefficients des modèles					
	A		B		μ_∞ (Pa.s)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	31.87	0.55	7.33	0.15	0.0116	5.2 10 ⁻⁴
x_1	0	-	-0.44	0.14	0.0007	4.1 10 ⁻⁴
x_2	7.79	0.5	-0.47	0.14	0.0040	4.1 10 ⁻⁴
x_1^2	0	-	0	-	-0.0031	6.4 10 ⁻⁴
x_2^2	5.89	0.75	-3.48	0.21	0.0040	6.4 10 ⁻⁴
x_1x_2	0	-	-1.15	0.17	0.0017	5.1 10 ⁻⁴

❖ Qualité des modèles

➤ Adéquation des modèles

Pour l'ensemble des réponses, l'analyse des résidus n'a fait ressortir aucune anomalie. La distribution de ces écarts est tout à fait aléatoire et très homogène. La variation des réponses est stable, et l'erreur expérimentale ne peut être imputée qu'aux différentes sources naturelles de fluctuation.

Le tableau Tab.VII.17 renferme les résultats de l'analyse de la variance. Les valeurs affichées témoignent amplement de la bonne adéquation des modèles retenus ; Les variances résiduelles sont négligeables, les coefficients R^2 sont tous très proches de 1, les valeurs de F_{exp} sont très inférieures à celles de F_{crit} , et les probabilités que le manque d'ajustement soit négligeable, sont plus que satisfaisantes.

Les variances de répétition sont très faibles, ce qui reflète la bonne reproductibilité des essais.

On peut ainsi dire que ces modèles représentent dignement les résultats du plan réalisé.

Tab.VII.17 : Analyse de la variance pour les modèles retenus de la boue AHM + eau après vieillissement

Réponses	YP	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_0	A	B	μ_∞
Modèle <i>M</i>							
<i>ddl</i>	2	1	3	3	2	4	5
<i>V</i>	643.33	150	52.68	29.58	229.49	10.20	3.26 10 ⁻⁵
σ	25.36	12.25	7.26	5.44	15.15	3.19	0.0057
Résidu <i>e</i>							
<i>ddl</i>	8	9	7	7	8	6	5
<i>V</i>	3.92	0.44	0.59	0.42	1.52	0.12	1.03 10 ⁻⁶
σ	1.98	0.67	0.77	0.65	1.23	0.35	0.0010
Erreur pure ε							
<i>ddl</i>	2	2	2	2	2	2	2
<i>V</i>	2.33	1	1	0.13	0.83	0.06	2.48 10 ⁻⁶
σ	1.53	1	1	0.36	0.91	0.24	0.0016
Ajustement Δ							
<i>ddl</i>	6	7	5	5	6	4	3
<i>V</i>	4.44	0.29	0.43	0.54	1.74	0.15	6.25 10 ⁻⁸
σ	2.11	0.53	0.65	0.74	1.32	0.39	0.0002
F_{exp}	1.90	0.29	0.43	4.23	2.09	2.52	0.03
F_{crit}	19.3	19.4	19.3	19.3	19.3	19.2	19.2
<i>pr</i>	0.38	0.91	0.81	0.20	0.36	0.30	0.99
R^2	0.976	0.974	0.975	0.968	0.974	0.983	0.969

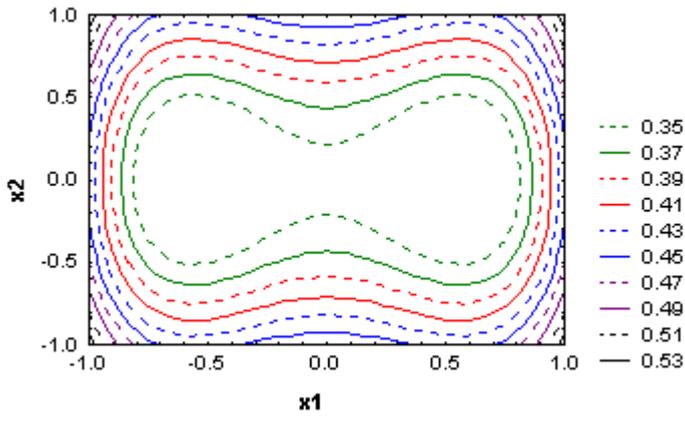
➤ Prédiction des modèles

Pour chaque réponse on rapporte ci-dessous, l'expression de l'erreur sur la réponse estimée $\sigma(\hat{y})$ et la valeur du coefficient de prédiction Q^2 .

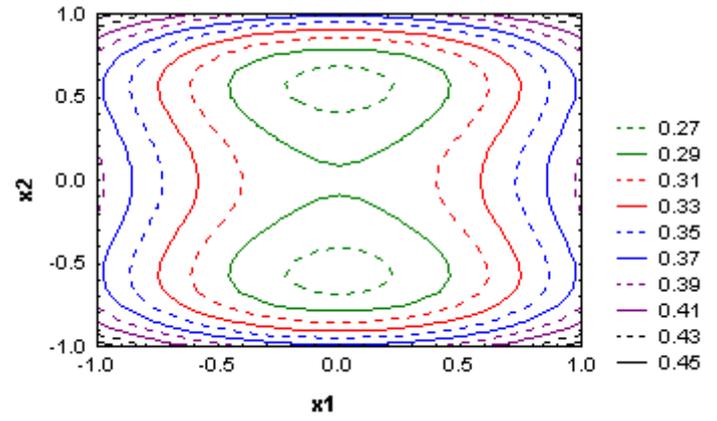
$$\begin{aligned} \sigma(YP) &= 1.98(0.2 - 0.23x_2^2 + 0.37x_2^4)^{1/2} && (\text{lbs}/100\text{ft}^2) \quad Q^2 = 0.956 \\ \sigma(Gel_0) &= 2.26(0.09 + 0.17x_2^2)^{1/2} && (\text{lbs}/100\text{ft}^2) \quad Q^2 = 0.961 \\ \sigma(Gel_{10}) &= 0.77(0.2 - 0.23x_1^2 + 0.17x_2^2 + 0.37x_1^4)^{1/2} && (\text{lbs}/100\text{ft}^2) \quad Q^2 = 0.942 \\ \sigma(\tau_0) &= 0.65(0.2 + 0.17x_1^2 - 0.23x_2^2 + 0.37x_2^4)^{1/2} && (\text{Pa}) \quad Q^2 = 0.917 \\ \sigma(A) &= 1.23(0.2 - 0.23x_2^2 + 0.37x_2^4)^{1/2} && \quad Q^2 = 0.945 \\ \sigma(B) &= 0.35(0.2 + 0.17x_1^2 - 0.23x_2^2 + 0.37x_2^4 + 0.25x_1^2x_2^2)^{1/2} && \quad Q^2 = 0.926 \\ \sigma(\mu_\infty) &= (0.26 - 0.15(x_1^2 + x_2^2) + 0.39(x_1^4 + x_2^4) + 0.04x_1^2x_2^2)^{1/2} \cdot 10^{-3} && (\text{Pa.s}) \quad Q^2 = 0.934 \end{aligned}$$

Ces formules sont traduites en isoerreurs sur les figures Fig.VII.89-95. De visu, on peut aisément constater que ces modèles jouissent d'une très bonne précision sur les prédictions. En effet, dans la quasi-totalité du domaine d'étude, l'erreur sur la réponse prédite est du même ordre que l'erreur expérimentale.

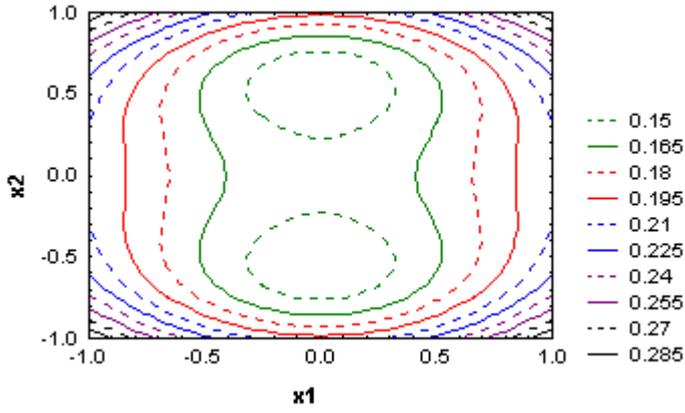
Les valeurs du coefficient Q^2 (toutes supérieures à 0.7) ne font que confirmer ces constatations et certifier le bon pouvoir prédictif de ces modèles.



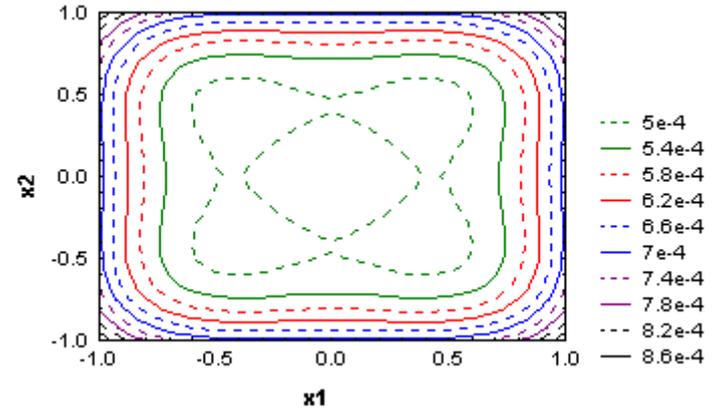
Gel₁₀



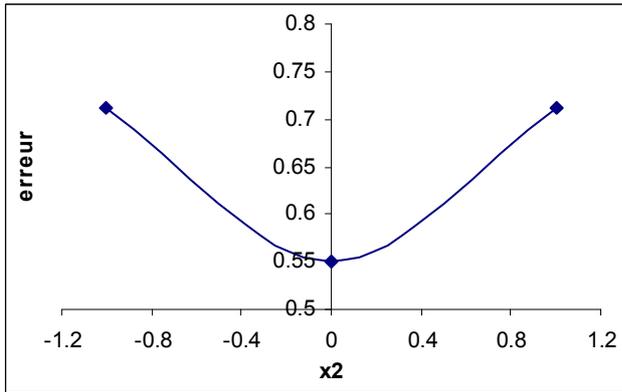
CSS



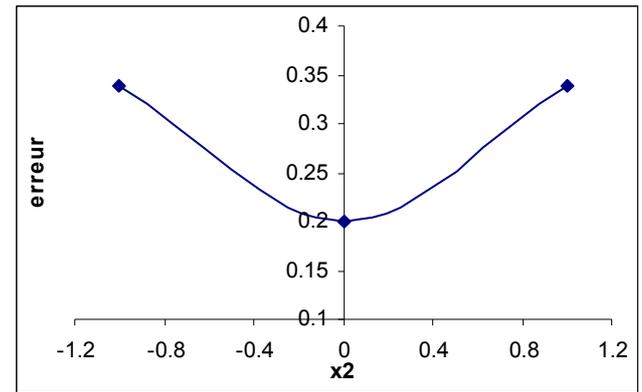
B



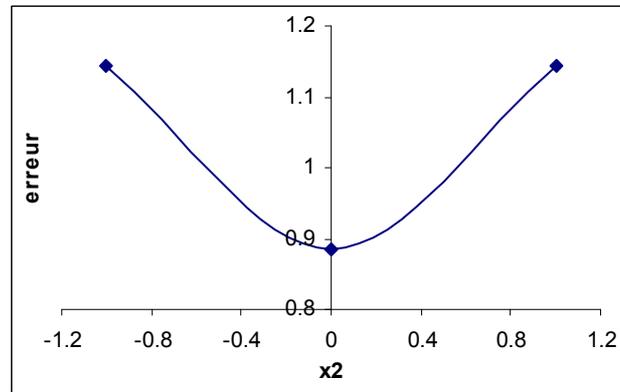
C



A



Gel₀



YP

Fig.VII.89-95: Courbes d'isoerreurs sur les réponses prédites

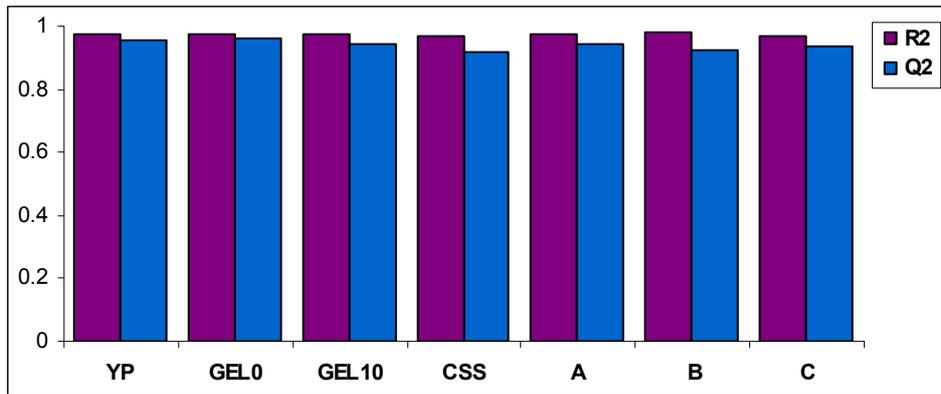


Fig.VII.96 : Histogramme des coefficients R^2 et Q^2 des modèles de la boue AHM + eau après vieillissement

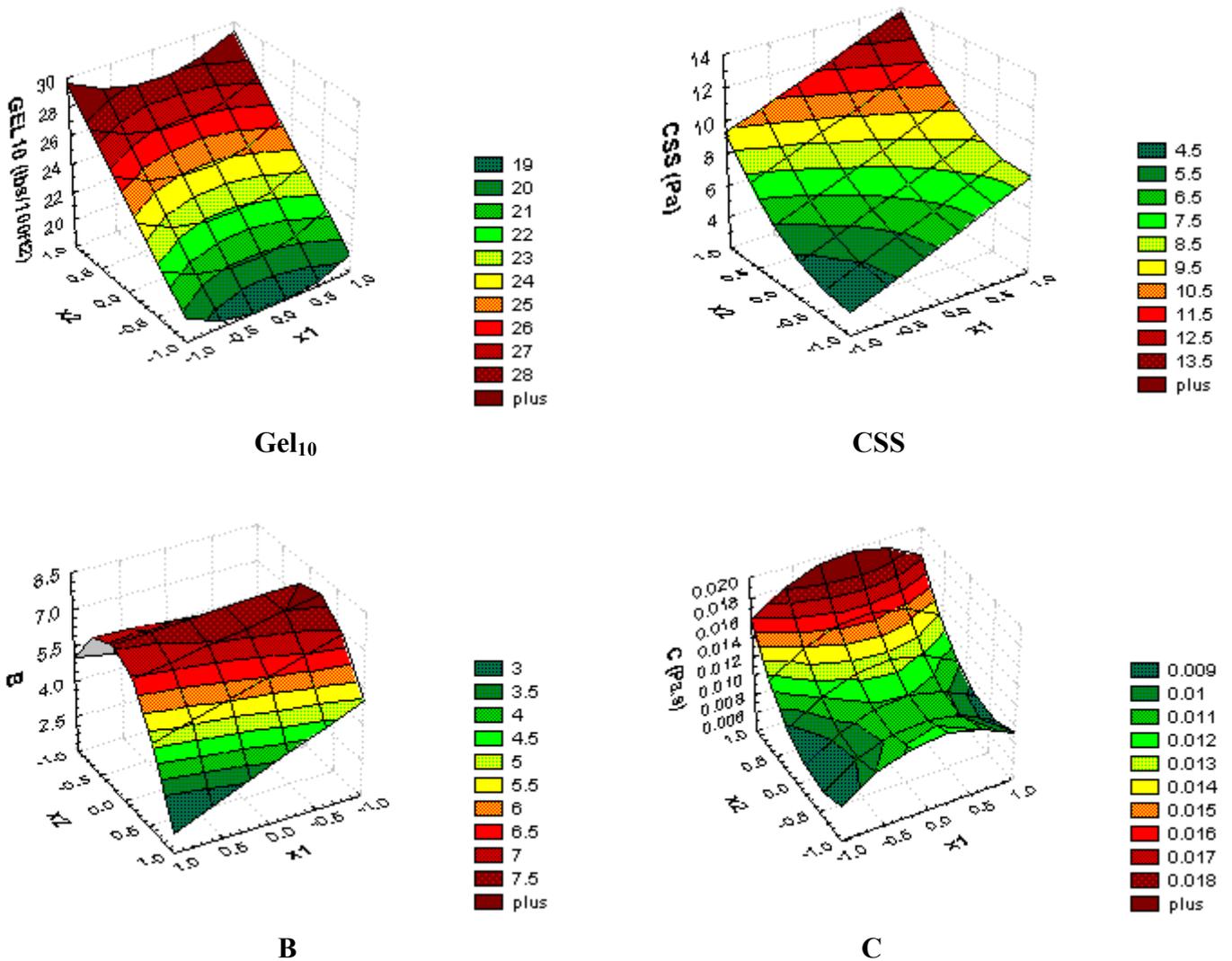


Fig.VII.97-100: Surfaces de réponses des paramètres rhéologiques de la boue AHM + eau après vieillissement

L'histogramme récapitulatif des coefficients R^2 et Q^2 , présenté sur la figure Fig.VII.96, laisse facilement prétendre que les modèles calculés traduisent vraiment la variation de ces réponses dans toute la plage expérimentale, tout en garantissant une bonne prédiction.

❖ Exploitation des modèles

Les formules développées des modèles proposés s'écrivent comme suit :

$$YP = 64 + 14.17x_2 - 5.50x_2^2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

$$Gel_0 = 23 + 5x_2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

$$Gel_{10} = 22.8 - 0.17x_1 + 5x_2 + 1.70x_1^2 \quad (\text{lbs}/100\text{ft}^2)$$

$$\tau_0 = 7.01 + 2.24x_1 + 2.95x_2 + 1.55x_2^2 \quad (\text{Pa})$$

$$A = 31.87 + 7.79x_2 + 5.89x_2^2$$

$$B = 7.33 - 0.44x_1 - 0.47x_2 - 3.48x_2^2 - 1.15x_1x_2$$

$$\mu_\infty = (11.61 + 0.68x_1 + 4.04x_2 - 3.08x_1^2 + 3.97x_2^2 + 1.70x_1x_2).10^{-3} \quad (\text{Pa.s})$$

Une représentation tridimensionnelle de ces expressions est rapportée sur les figures Fig.VII.97-100. Ce type de graphique permet de toucher du doigt, l'évolution des paramètres étudiés en fonction des deux facteurs à la fois. En plus du fait qu'elles servent à faire des prédictions directes et faciles, en n'importe quel point du domaine d'étude, ces surfaces de réponses concrétisent les effets réels des facteurs et permettent de les mettre en balance.

En effet, pour l'ensemble des réponses, on peut déjà dire, à partir des pentes de variation relatives à chaque direction, que l'effet du %AHM est nettement plus important que celui de la température. Cela est bien appuyé par les courbes d'évolution moyenne en fonction de chaque facteur à part, présentées sur les figures Fig.VII.101-111.

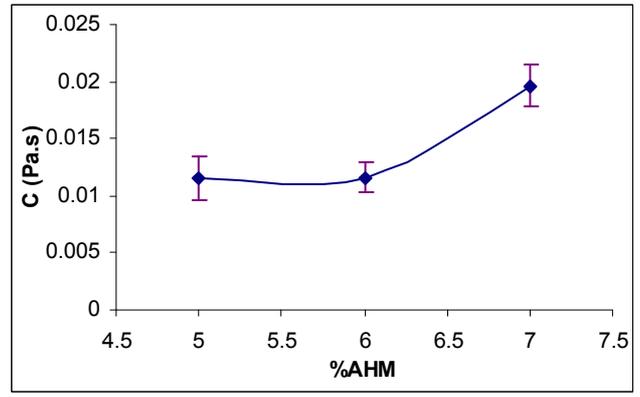
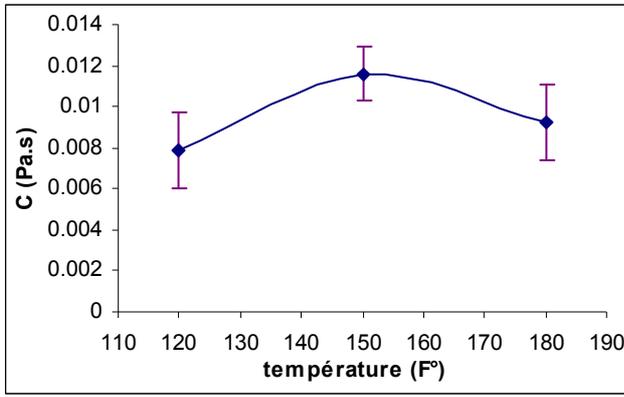
De ces graphes, il apparaît bien que même après vieillissement à haute température, le pourcentage en AHM a gardé les mêmes effets sur les paramètres rhéologiques de cette boue. La PV est quasiment constante, la YP augmente rapidement, et le gel évolue modérément. La contrainte seuil τ_0 et les coefficients du modèle rhéologique de Williamson présentent à peu près les mêmes allures que le gel.

L'effet de la température est vraiment minime pour les paramètres Gel_{10} et B, et il est complètement négligeable pour YP, A et Gel_0 . Cet effet est cependant assez conséquent pour τ_0 et μ_∞ .

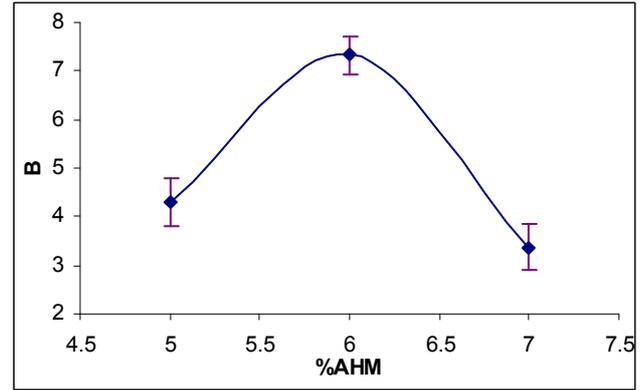
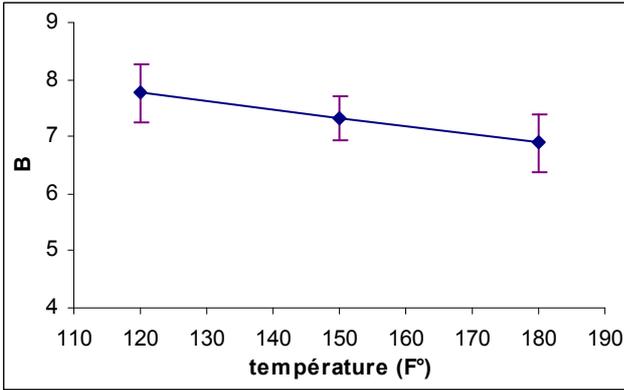
L'influence de la température n'entre en interaction avec celle du %AHM que dans la variation des paramètres μ_∞ et B. Effectivement, le manque assez accentué (surtout pour le coefficient B) de parallélisme, observé entre les courbes rapportées sur les figures Fig.VII.112-113, montre bien la dépendance de l'effet du %AHM du niveau de la température et vis versa.

❖ Evaluation des corrélations

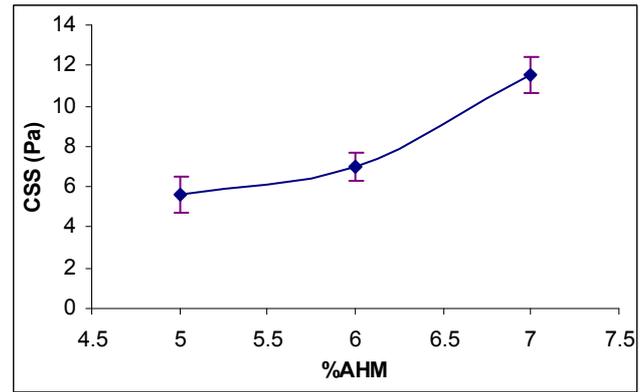
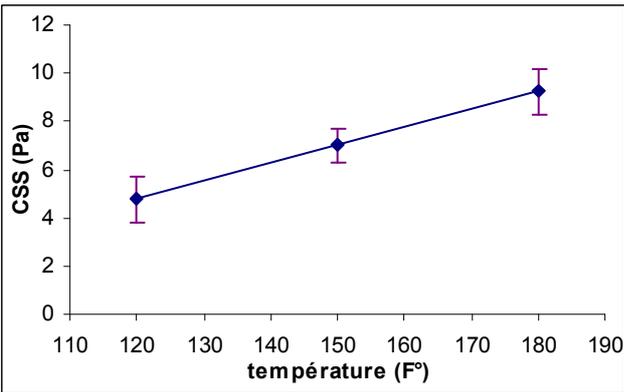
Bon nombre des réponses étudiées présente des relations assez significatives, avec des coefficients de corrélation dépassant le seuil requis $r_{9,0.05} = 0.60$. Cependant, aucun lien n'est suffisamment conséquent pour se traduire en formule linéaire à proprement parler.



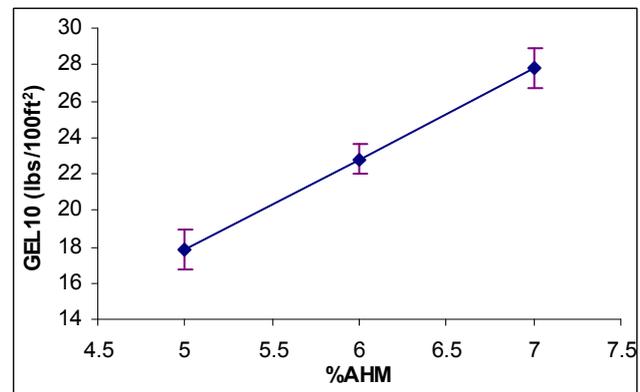
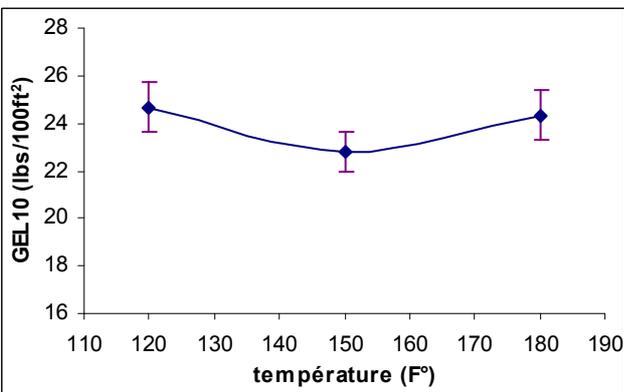
C



B

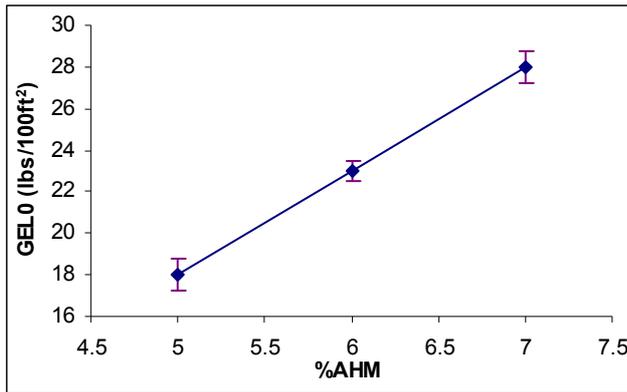


CSS

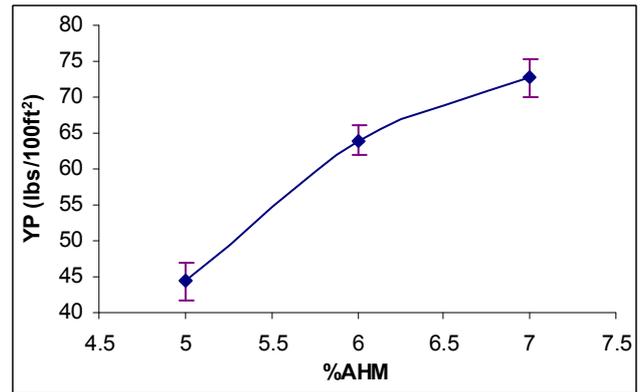


Gel₁₀

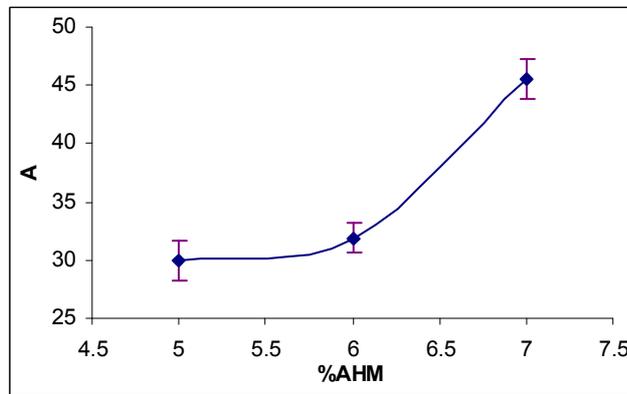
Fig.VII.101-108 : Courbes d'effets moyens de la température et du %AHM sur les paramètres rhéologiques de la boue AHM + eau après vieillissement



Gel₀

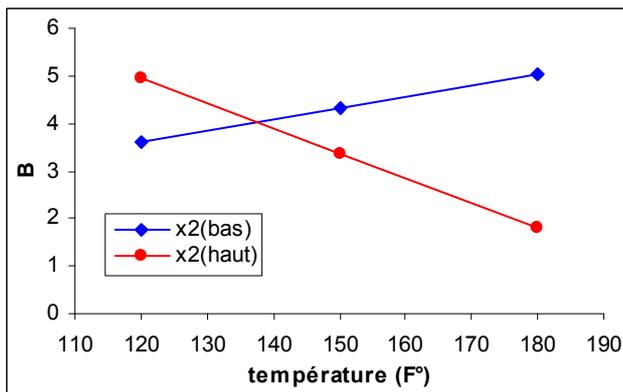


YP

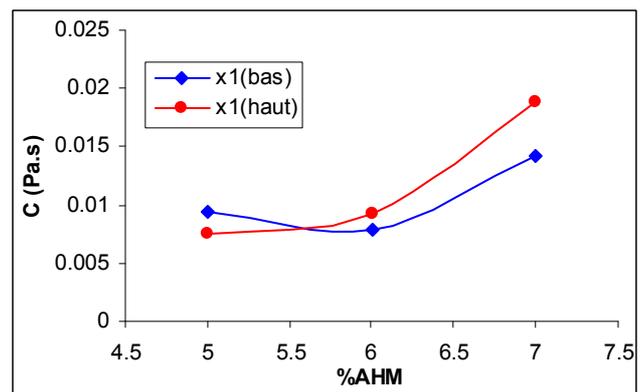


A

Fig.VII.109-111 : Courbes d'effets moyens de la température et du %AHM sur les paramètres rhéologiques de la boue AHM + eau après vieillissement



B



C

Fig.VII.112-113 : Courbes des effets de l'interaction entre la température et le %AHM sur les paramètres rhéologiques de la boue AHM + eau après vieillissement

VII.3.c Etude de l'effet des paramètres de synthèse du produit AHM

Cette dernière partie est consacrée à la modélisation des paramètres rhéologiques de la boue des produits Mont-Al-OH, en fonction des principaux éléments de formulation. Les réponses étudiées sont : YP, PV, Gel_0 , Gel_{10} , τ_0 (notée CSS) et les coefficients A, B et μ_∞ (notée C) du modèle de Williamson.

❖ Calcul des modèles

Le tableau Tab.VII.18 renferme les coefficients des modèles retenus après élimination des termes jugés non significatifs.

Tab.VII.18 : Coefficients des modèles retenus pour la boue Mont-Al-OH + eau

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	PV (cP)		YP (lbs/100ft ²)		Gel_0 (lbs/100ft ²)		Gel_{10} (lbs/100ft ²)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$
Constante	6.26	0.45	60.63	1.89	15.90	0.99	17.11	1.05
x_1	1.64	0.19	3.26	0.80	-2.81	0.43	-2.45	0.45
x_2	-1.90	0.20	-8.35	0.82	-4.05	0.43	-4.44	0.46
x_3	-0.12	0.25	3.15	0.80	-2.80	0.43	-3.09	0.46
x_4	1.18	0.22	7.18	1	-2.09	0.56	-2.17	0.59
x_5	4.13	0.19	49.61	1	8.69	0.43	8.74	0.45
x_1^2	1.27	0.17	2.20	0.72	3.55	0.37	3.18	0.39
x_2^2	0.77	0.17	1.88	0.72	1.16	0.37	1.35	0.39
x_3^2	0.76	0.23	4.87	0.72	2.15	0.37	2.04	0.39
x_4^2	0.15	0.21	2.15	0.92	5.07	0.51	5.17	0.54
x_5^2	2.41	0.17	-9.04	0.92	2.29	0.37	2.13	0.39
x_1x_2	0.49	0.26	8.59	1.04	-1.46	0.57	-2.18	0.60
x_1x_3	-1.08	0.26	9.21	1.08	-1.75	0.57	-1.88	0.60
x_1x_4	-0.38	0.24	0	-	7.31	0.57	8.09	0.59
x_1x_5	0.83	0.24	-11.80	1.08	6.57	0.57	7.47	0.59
x_2x_3	0	-	7.34	1.04	0	-	0	-
x_2x_4	-0.54	0.26	0	-	-2.82	0.57	-3.09	0.60
x_2x_5	-1.53	0.26	-9.20	1.04	-6.81	0.57	-7.51	0.60
x_3x_4	1.01	0.26	22.88	1.08	3.13	0.57	3.16	0.60
x_3x_5	0	-	9.68	1.08	0	-	0	-
x_4x_5	1.49	0.24	-1.67	1.08	9.61	0.57	9.91	0.59

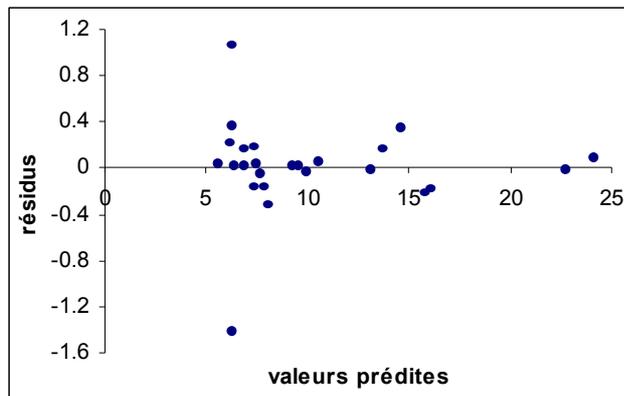
Tab.VII.18 (suite) : Coefficients des modèles retenus pour la boue Mont-Al-OH + eau

Termes du modèle	Coefficients des modèles							
	τ_0 (Pa)		A		B		μ_∞ (Pa.s)	
	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	\hat{a}	$\sigma(\hat{a})$	$\hat{a} \cdot 10^{-3}$	$\sigma(\hat{a}) \cdot 10^{-3}$
Constante	4.61	0.25	29.83	0.97	13.15	0.42	5.89	0.30
x_1	-0.002	0.10	2.13	0.41	2.23	0.22	1.54	0.12
x_2	-1.85	0.10	-4.83	0.40	0.002	0.22	-1.75	0.13
x_3	-0.20	0.10	1.36	0.41	2.66	0.23	-0.23	0.17
x_4	2.55	0.12	0.86	0.48	1.93	0.22	1.16	0.15
x_5	5.51	0.12	21.93	0.48	0.09	0.29	3.69	0.12
x_1^2	0.56	0.09	0.98	0.37	-0.94	0.19	1.16	0.11
x_2^2	0.88	0.09	0.78	0.37	-0.75	0.19	0.71	0.11
x_3^2	0.89	0.09	2.33	0.37	0	-	0.68	0.15
x_4^2	-0.19	0.11	2.01	0.45	-2.16	0.19	0.11	0.14
x_5^2	2.04	0.11	-3.48	0.45	-0.60	0.25	2.35	0.11
x_1x_2	-0.75	0.14	3.80	0.54	-1.02	0.28	0.32	0.17
x_1x_3	-2.50	0.14	3.76	0.52	0	-	-1.24	0.17
x_1x_4	0.33	0.14	4.56	0.54	0	-	-0.48	0.16
x_1x_5	1.31	0.14	-1.39	0.54	1.17	0.31	0.94	0.16
x_2x_3	1.98	0.14	4.21	0.54	-2.57	0.31	0	-
x_2x_4	-0.94	0.14	3.13	0.52	-1.33	0.28	-0.61	0.17
x_2x_5	-3	0.14	-1.65	0.52	2.76	0.31	-1.45	0.17
x_3x_4	1.01	0.14	7	0.54	-0.80	0.31	0.77	0.17
x_3x_5	-1.54	0.14	0	-	0.99	0.28	0	-
x_4x_5	1.19	0.14	0	-	0.79	0.31	1.53	0.16

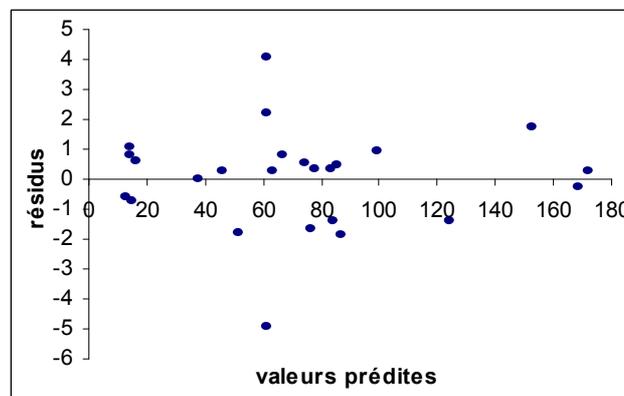
❖ Qualité des modèles

La répartition des résidus en fonction des réponses prédites est rapportée dans les figures Fig.VII.114-121. Pour chaque paramètre, la distribution est très homogène et ne fait apparaître aucune valeur erronée ou une quelconque dépendance du niveau de la réponse estimée. Les points ne sont pas très écartés de l'axe des abscisses, ce qui signifie que les modèles approchent bien les résultats des essais.

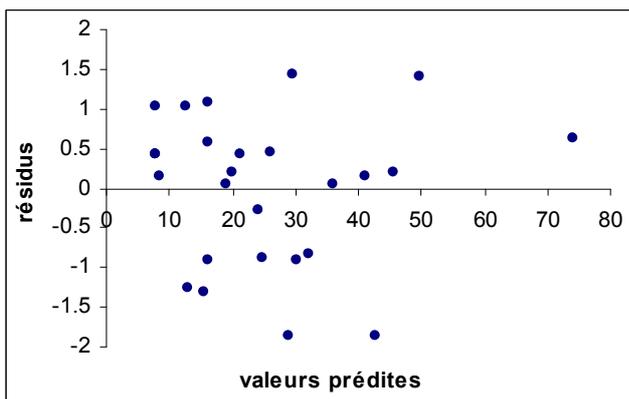
Les éléments de l'analyse de la variance sont affichés dans le tableau Tab.VII.19. Ce dernier comporte une ligne supplémentaire réservée au coefficient de prédiction Q^2 . Comme pour les plans précédents, les valeurs éditées permettent de ventiler la qualité des modèles proposés. En effet, ces derniers rendent compte de la quasi-totalité des variances expérimentales observées. Les variances résiduelles sont négligeables et les coefficients R^2 sont tous très proches de 1 ($R^2 > 0.98$). Les valeurs de F_{exp} sont nettement plus faibles que celles de F_{crit} , avec de très bonnes probabilités que le manque d'ajustement soit négligeable. Ajouter à cela, les faibles variances de l'erreur pure qui reflètent la bonne reproductibilité des résultats expérimentaux et la stabilité des phénomènes mis en jeu. Tout cela permet d'affirmer que les modèles calculés sont bien ajustés.



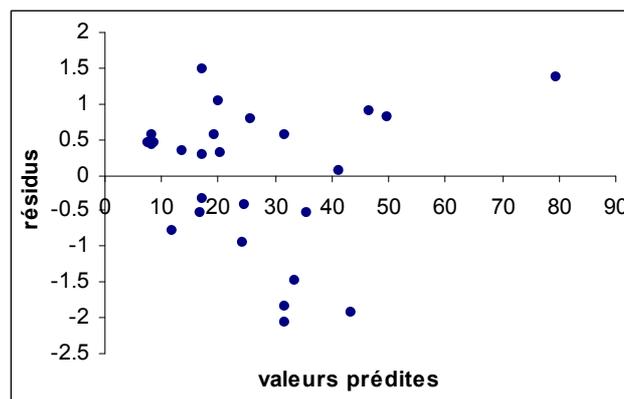
PV



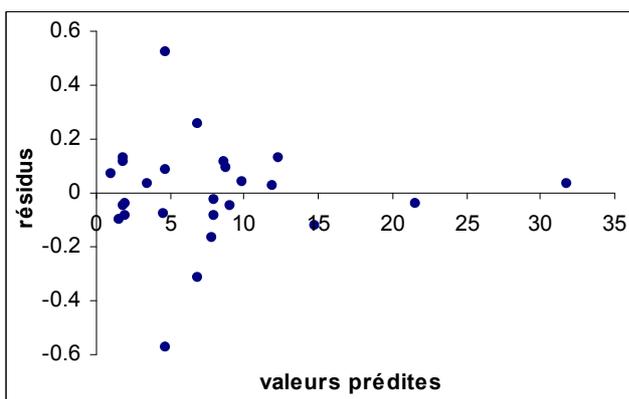
YP



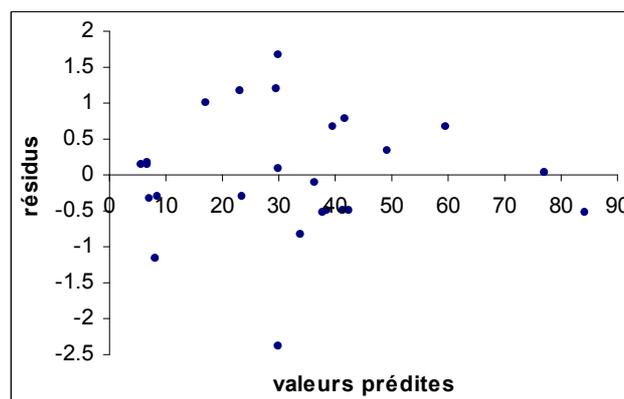
Gel₀



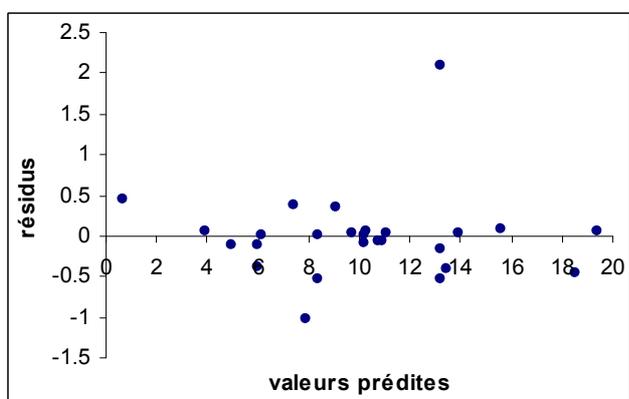
Gel₁₀



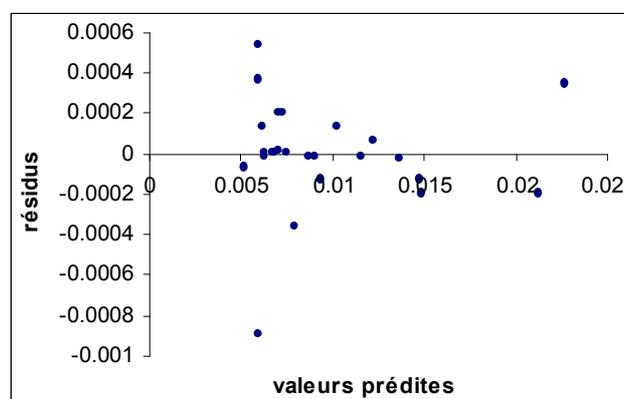
CSS



A



B



C

Fig.VII.114-121: Distribution des résidus en fonction des réponses prédites

Les valeurs du coefficient Q^2 sont très proches de 1 ($Q^2 > 0.91$), on peut prétendre qu'avec ces modèles, on dispose d'un bon pouvoir prédictif dans toute la zone expérimentale.

Tab.VII.19 : Analyse de la variance pour les modèles retenus de la boue Mont-Al-OH + eau

Réponses	PV	YP	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_0	A	B	μ_∞
Modèle M								
<i>ddl</i>	18	18	18	18	20	18	17	18
V	34.57	2739.13	339.23	369.70	59.03	578.08	27.35	$2.92 \cdot 10^{-5}$
σ	5.88	52.34	18.42	19.23	7.68	24.04	5.23	$5.40 \cdot 10^{-3}$
Résidu e								
<i>ddl</i>	6	6	7	7	5	6	8	7
V	0.63	11.30	3.19	3.55	0.19	2.93	0.88	$2.82 \cdot 10^{-7}$
σ	0.79	3.36	1.79	1.88	0.43	1.71	0.94	$5.31 \cdot 10^{-4}$
Err. pure ε								
<i>ddl</i>	2	2	2	2	2	2	2	2
V	1.64	22.50	1.08	0.84	0.31	4.18	2.01	$6.10 \cdot 10^{-7}$
σ	1.28	4.74	1.04	0.92	0.55	2.04	1.42	$7.81 \cdot 10^{-4}$
Ajust. Δ								
<i>ddl</i>	4	4	5	5	3	4	6	4
V	0.12	5.70	4.04	4.63	0.11	2.31	0.50	$1.18 \cdot 10^{-7}$
σ	0.35	2.39	2.01	2.15	0.33	1.52	0.71	$3.44 \cdot 10^{-4}$
F_{exp}	0.08	0.25	3.73	5.52	0.35	0.55	0.25	0.19
F_{crit}	19.2	19.2	19.3	19.3	19.2	19.2	19.3	19.2
pr	0.98	0.89	0.23	0.16	0.80	0.73	0.92	0.92
R^2	0.994	0.999	0.996	0.996	0.999	0.998	0.985	0.997
Q^2	0.950	0.955	0.927	0.919	0.973	0.961	0.926	0.973

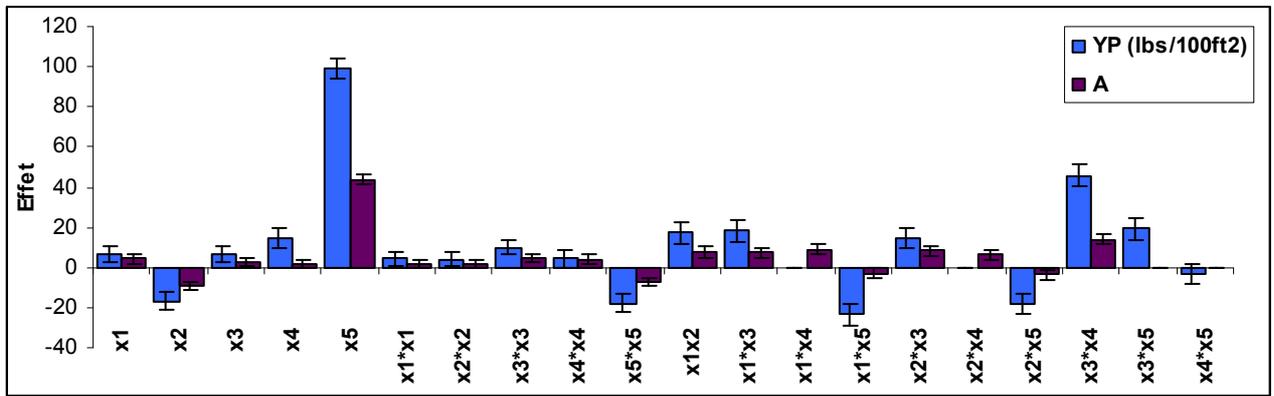
❖ Exploitation des modèles

Les formules développées des modèles retenus, s'écrivent :

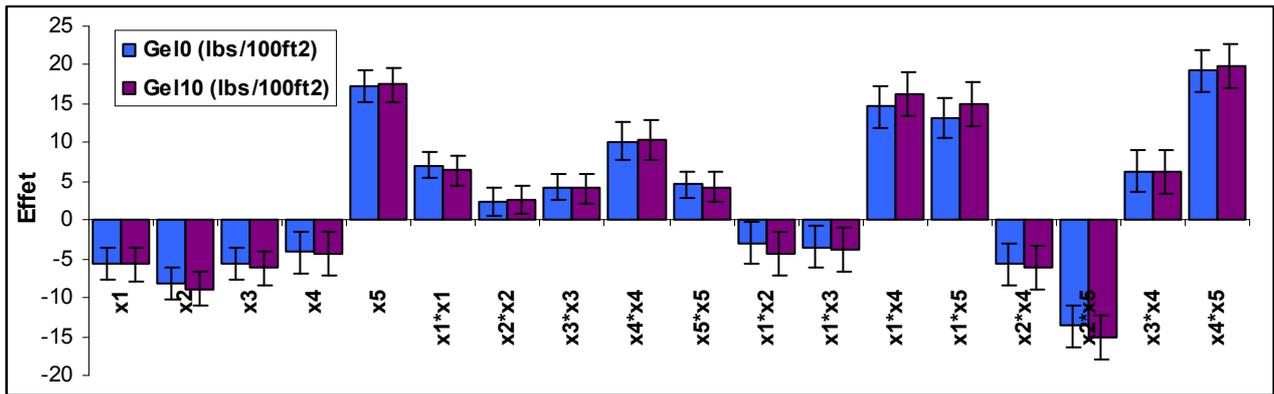
$$PV(cP) = 6.26 + 1.64x_1 - 1.90x_2 - 0.12x_3 + 1.18x_4 + 4.13x_5 + 1.27x_1^2 + 0.77x_2^2 + 0.76x_3^2 + 0.15x_4^2 + 2.41x_5^2 + 0.49x_1x_2 - 1.08x_1x_3 - 0.38x_1x_4 + 0.83x_1x_5 - 0.54x_2x_4 - 1.53x_2x_5 + 1.01x_3x_4 + 1.49x_4x_5$$

$$YP(\text{lbs}/100\text{ft}^2) = 60.63 + 3.26x_1 - 8.35x_2 + 3.15x_3 + 7.18x_4 + 49.61x_5 + 2.20x_1^2 + 1.88x_2^2 + 4.87x_3^2 + 2.15x_4^2 - 9.04x_5^2 + 8.59x_1x_2 + 9.21x_1x_3 - 11.80x_1x_5 + 7.34x_2x_3 - 9.20x_2x_5 + 22.88x_3x_4 + 9.68x_3x_5 - 1.67x_4x_5$$

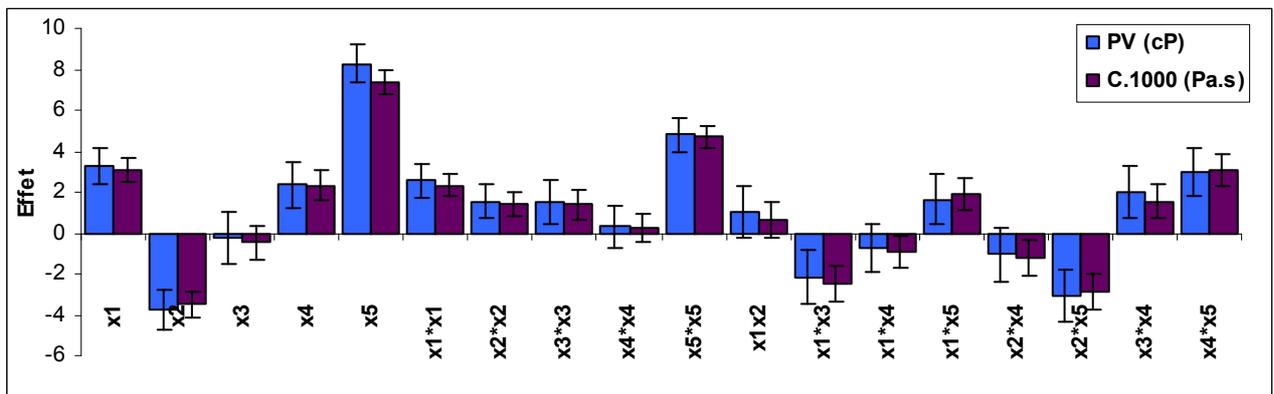
$$Gel_0(\text{lbs}/100\text{ft}^2) = 15.90 - 2.81x_1 - 4.05x_2 - 2.80x_3 - 2.09x_4 + 8.69x_5 + 3.55x_1^2 + 1.16x_2^2 + 2.15x_3^2 + 5.07x_4^2 + 2.29x_5^2 - 1.46x_1x_2 - 1.75x_1x_3 + 7.31x_1x_4 + 6.57x_1x_5 - 2.82x_2x_4 - 6.81x_2x_5 + 3.13x_3x_4 + 9.61x_4x_5$$



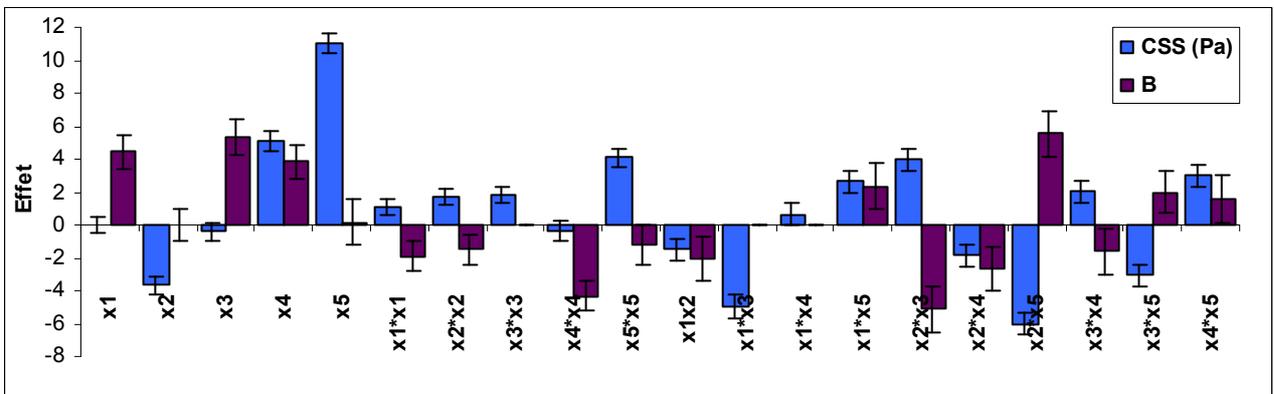
YP, A



Gel₀, Gel₁₀



PV, C



CSS, B

Fig.VII.122-125: Histogrammes des effets des actions des modèles retenus de la boue Mont-Al-OH + eau

$$Gel_{10} (lbs / 100 ft^2) = 17.11 - 2.85x_1 - 4.44x_2 - 3.09x_3 - 2.17x_4 + 8.74x_5 + 3.18x_1^2 + 1.35x_2^2 + 2.04x_3^2 + 5.17x_4^2 + 2.13x_5^2 - 2.18x_1x_2 - 1.88x_1x_3 + 8.09x_1x_4 + 7.47x_1x_5 - 3.09x_2x_4 - 7.51x_2x_5 + 3.16x_3x_4 + 9.91x_4x_5$$

$$\tau_0 (Pa) = 4.61 - 0.002x_1 - 1.85x_2 - 0.20x_3 + 2.55x_4 + 5.51x_5 + 0.56x_1^2 + 0.88x_2^2 + 0.89x_3^2 - 0.19x_4^2 + 2.04x_5^2 - 0.75x_1x_2 - 2.50x_1x_3 + 0.33x_1x_4 + 1.31x_1x_5 + 1.98x_2x_3 - 0.94x_2x_4 - 3x_2x_5 + 1.01x_3x_4 - 1.54x_3x_5 + 1.50x_4x_5$$

$$A = 29.83 + 2.13x_1 - 4.83x_2 + 1.36x_3 + 0.86x_4 + 21.93x_5 + 0.98x_1^2 + 0.78x_2^2 + 2.33x_3^2 + 2.01x_4^2 - 3.48x_5^2 + 3.80x_1x_2 + 3.76x_1x_3 + 4.56x_1x_4 - 1.39x_1x_5 + 4.21x_2x_3 + 3.13x_2x_4 - 1.65x_2x_5 + 7x_3x_4$$

$$B = 13.15 + 2.23x_1 + 0.002x_2 + 2.66x_3 + 1.93x_4 + 0.09x_5 - 0.94x_1^2 - 0.75x_2^2 - 2.16x_3^2 - 0.60x_4^2 - 1.02x_1x_2 + 1.17x_1x_5 - 2.57x_2x_3 - 1.33x_2x_4 + 2.76x_2x_5 - 0.80x_3x_4 + 0.99x_3x_5 + 0.79x_4x_5$$

$$\mu_{\infty} (Pa.s) = (5.89 + 1.54x_1 - 1.75x_2 - 0.23x_3 + 1.16x_4 + 3.69x_5 + 1.16x_1^2 + 0.71x_2^2 + 0.68x_3^2 + 0.11x_4^2 + 2.35x_5^2 + 0.32x_1x_2 - 1.24x_1x_3 - 0.48x_1x_4 + 0.94x_1x_5 - 0.61x_2x_4 - 1.45x_2x_5 + 0.77x_3x_4 + 1.53x_4x_5) \cdot 10^{-3}$$

Ces expressions traduisent toute la complexité des phénomènes mis en jeu dans la variation des propriétés rhéologiques de cette boue en fonction des facteurs étudiés. Ces modèles permettent de prédire le comportement de ce fluide dans tout le domaine expérimental, de déterminer les propriétés rhéologiques de la boue à obtenir selon les conditions de formulation adoptées, de trouver les valeurs opératoires nécessaires pour aboutir à une boue de performances données et d'optimiser une propriété ou un critère fonction de plusieurs propriétés. Ils permettent aussi une meilleure approche et une interprétation physique plus adéquate, du comportement rhéologique de cette boue.

Les hypersurfaces (5dimensions) issues de ces relations, peuvent être soit représentées en isovaleurs ou en surfaces de réponses pour chaque couple de facteurs, soit tracées en fonction de facteurs fictifs indépendants (combinaison de plusieurs facteurs réels) en utilisant l'analyse canonique.

Les histogrammes rapportés sur les figures FigVII.122-125, traduisent l'étendue des effets des différentes actions des modèles retenus.

L'évolution moyenne de chacun des paramètres rhéologiques étudiés, en fonction de chaque facteur à part, est représentée dans les figures Fig.VII.126-165.

Les équations ci-dessus, montrent clairement que les effets de ces facteurs sont très dépendants. Les termes d'interactions sont omniprésents et leurs coefficients sont souvent très conséquents. On se contente cependant, de représenter pour chaque réponse, l'influence de l'interaction la plus importante, tel qu'il apparaît sur les figures Fig.VII.166-173. En effet, les intersections ou même le manque très accentué de parallélisme observés entre ces courbes, reflètent bien l'ampleur des effets de ces interactions.

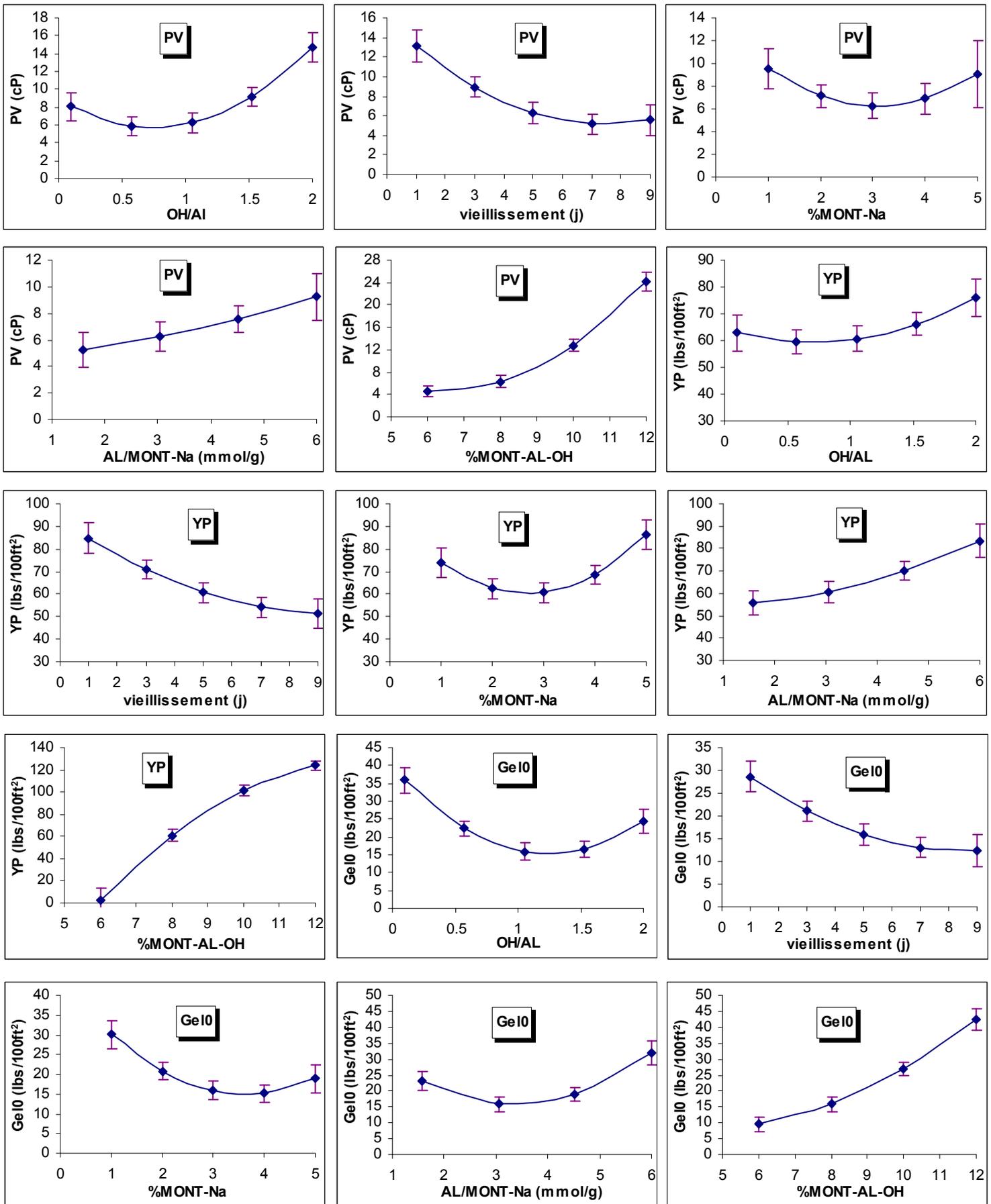


Fig.VII.126-140 : Courbes d'évolution moyenne des paramètres rhéologiques de la boue Mont-Al-OH + eau

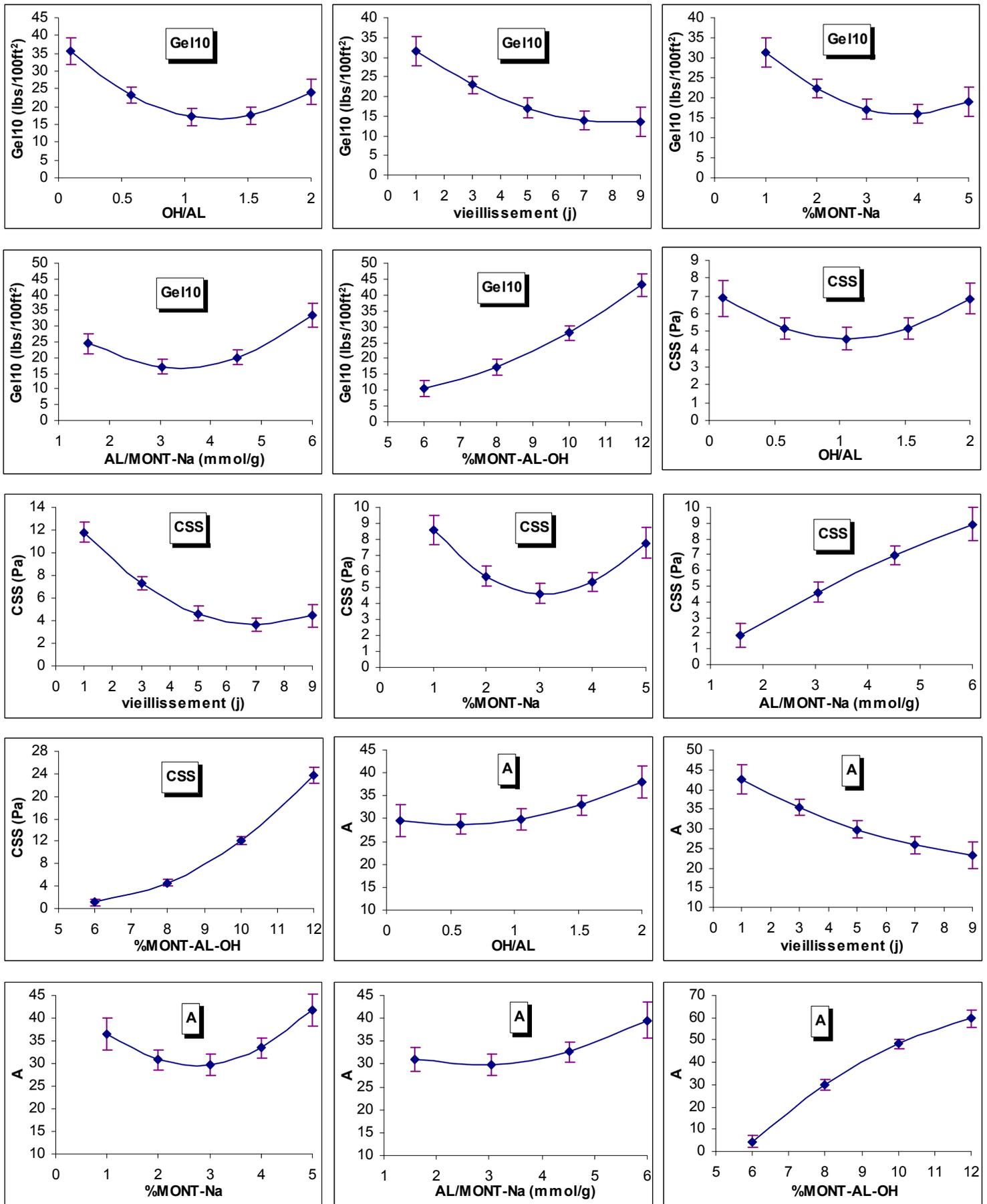


Fig.VII.141-155 : Courbes d'évolution moyenne des paramètres rhéologiques de la boue Mont-Al-OH + eau

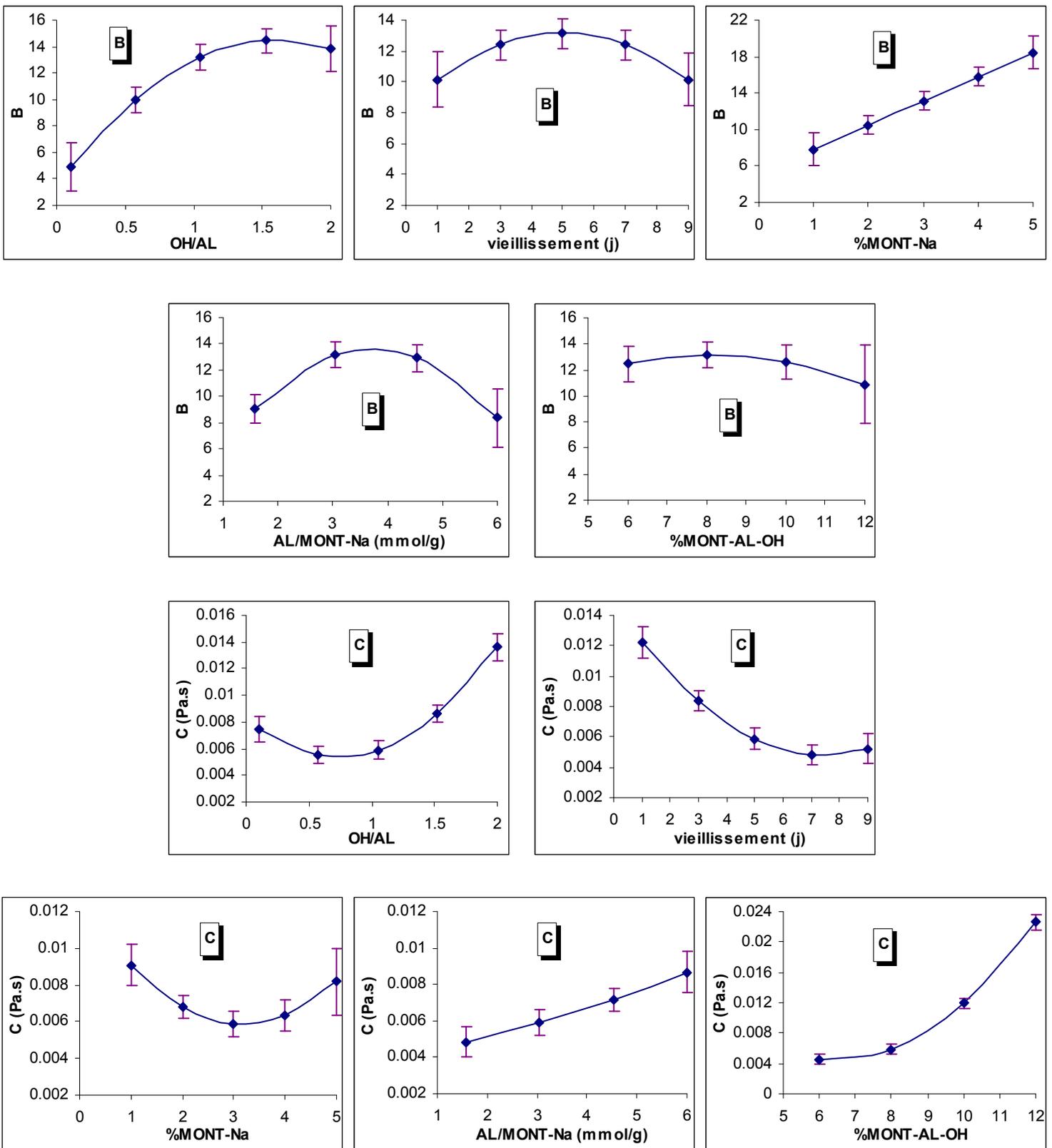
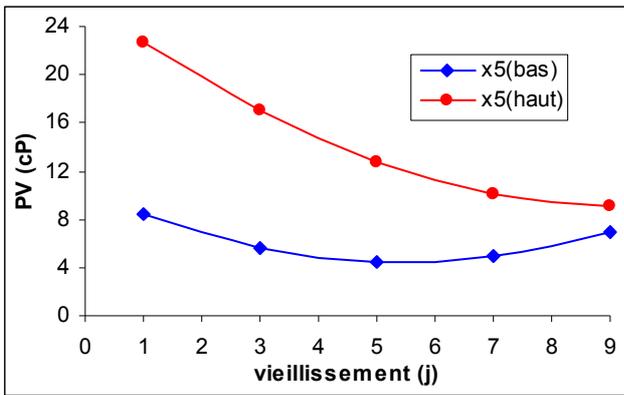
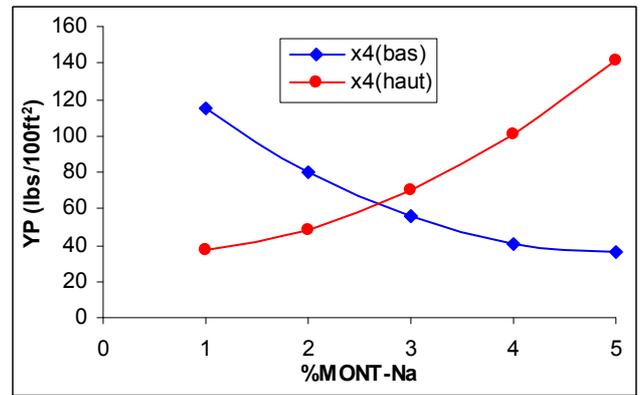


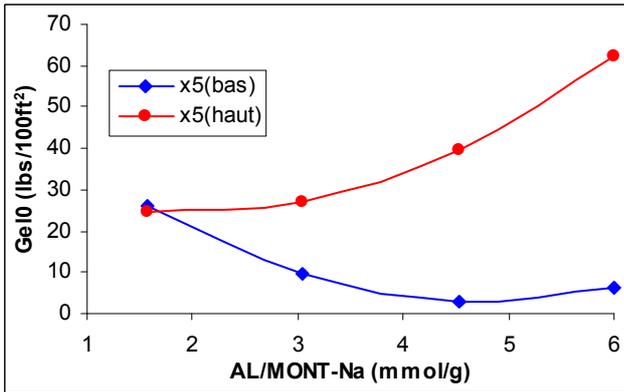
Fig.VII.156-165 : Courbes d'évolution moyenne des paramètres rhéologiques de la boue Mont-Al-OH + eau



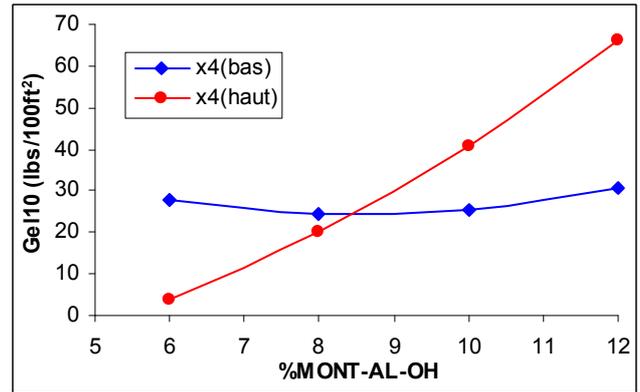
PV



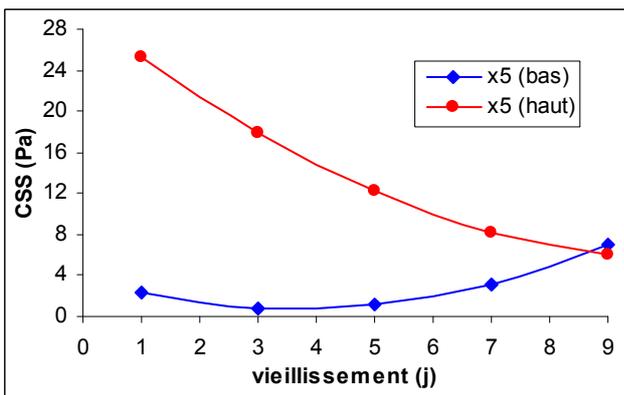
YP



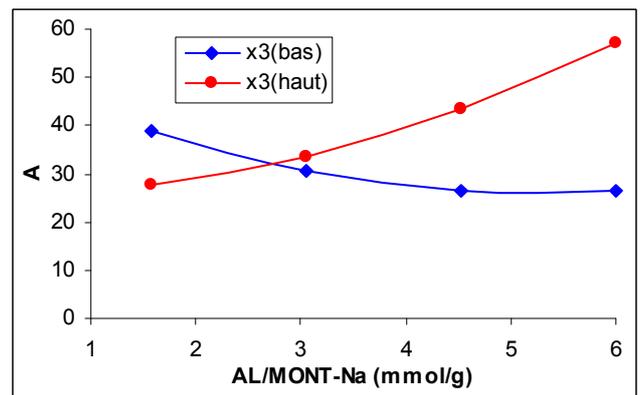
Gel₀



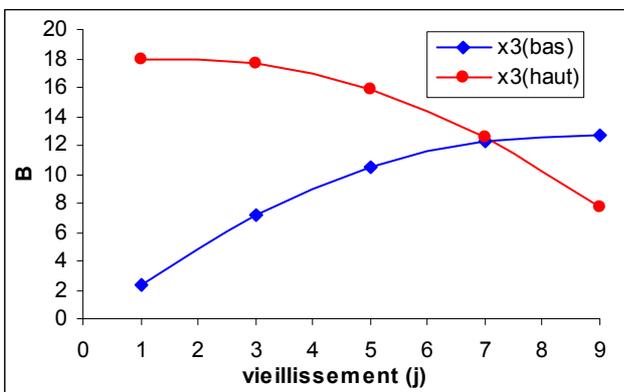
Gel₁₀



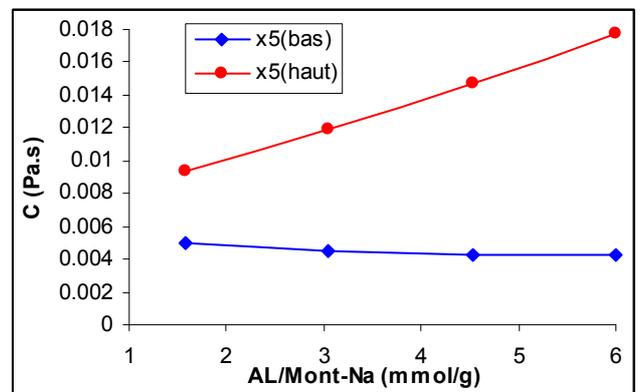
CSS



A



B



C

Fig.VII.166-173 : Courbes des effets des interactions entre les facteurs sur les paramètres rhéologiques de la boue Mont-AL-OH + eau

❖ Evaluation des corrélations

La matrice des corrélations linéaires issues des résultats expérimentaux des réponses étudiées, est rapportée sur le tableau Tab.VII.20.

Tab.VII.20 : Coefficients de corrélation linéaire entre les paramètres rhéologiques de la boue Mont-Al-OH + eau

Réponse	YP	PV	Gel ₀	Gel ₁₀	τ_0	A	B	μ_∞
YP	1	0.85	0.81	0.82	0.85	0.99	0.25	0.83
PV	0.85	1	0.74	0.74	0.76	0.85	0.06	0.99
Gel ₀	0.82	0.74	1	0.99	0.98	0.80	- 0.20	0.75
Gel ₁₀	0.82	0.74	0.99	1	0.98	0.81	- 0.20	0.75
τ_0	0.85	0.76	0.98	0.98	1	0.84	- 0.14	0.76
A	0.99	0.85	0.80	0.81	0.83	1	0.26	0.83
B	0.25	0.06	- 0.20	- 0.20	- 0.14	0.26	1	0.06
μ_∞	0.83	0.99	0.75	0.75	0.76	0.83	0.06	1

Les relations jugées négligeables, compte tenu du niveau minimal requis $r_{27;0.05} = 0.37$, sont celles dont les valeurs du coefficient R sont écrites en gras, à l'instar du coefficient B qui est le seul à ne présenter aucun lien conséquent avec les autres réponses.

Les relations hautement significatives susceptibles de se traduire en expressions mathématiques adéquates, s'écrivent comme suit :

$$A = 0.49YP(\text{lbs}/100\text{ft}^2) - 0.01$$

$$\mu_\infty(\text{Pa.s}).10^4 = 9.42PV(\text{cP}) - 0.28$$

$$\tau_0(\text{Pa}) = 0.39Gel_0(\text{lbs}/100\text{ft}^2) - 2.07$$

$$Gel_{10}(\text{lbs}/100\text{ft}^2) = 1.03Gel_0(\text{lbs}/100\text{ft}^2) - 0.17$$

La mise en évidence de ces corrélations, permettra de réduire le nombre de réponses à étudier, de prendre ses précautions lors de la définition des critères à optimiser, et de contribuer à la validation et l'interprétation des résultats.

Conclusions

Au début de cette étude, on s'est fixé comme objectif, la fabrication à partir de la bentonite, de matériaux avec de meilleures et/ou de nouvelles performances comme viscosifiant pour les fluides de forage.

A l'issue du travail réalisé, on a pu obtenir trois produits : la montmorillonite sodique (Mont-Na), l'argile organophile (AO) et l'argile hydrophile modifiée (AHM).

L'analyse par IR et DRX a pu mettre en évidence les modifications opérées et confirmer le succès des méthodes de traitement utilisées. En effet la Mont-Na a montré une grande pureté indiquant l'élimination des différentes impuretés cristallines présentes dans le produit brut. Les produits AO et AHM ont donné respectivement des distances basales d_{001} de l'ordre de 22 Å et 19 Å, montrant l'expansion de la structure initiale.

Les mesures rhéologiques effectuées sur les boues formulées, ont permis d'évaluer la qualité des viscosifiants proposés, de décrire et de modéliser le comportement rhéologique de ces boues.

La Mont-Na soumise aux tests standards API, a donné des résultats montrant qu'elle est tout à fait digne du grade OCMA. On est ainsi passé d'une bentonite brute à une bentonite de meilleur rendement, et conforme aux normes d'application dans les fluides de forage.

L'étude des propriétés rhéologiques de la boue de Mont-Na dans l'eau distillée, a montré que ces derniers grimpent rapidement en fonction de la concentration, traduisant ainsi, la grande consistance de cette boue, et le bon gonflement du produit Mont-Na.

L'argile organophile AO a donné un excellent gonflement dans le gasoil, reflétant un très bon caractère organophile. La boue obtenue présente de très bonnes propriétés rhéologiques, avec en particulier, un caractère rhéofluidifiant prononcé, une bonne capacité de mise en suspension, une mise en écoulement facile, et une grande stabilité à la chaleur et au vieillissement à haute température. En plus cette boue est très légère et semble présenter un bon pouvoir lubrifiant. Ces propriétés sont de nature à ouvrir à cette boue un grand éventail d'applications telle que : les opérations de forage au voisinage de la couche productrice, les techniques de nettoyage des puits, les opérations spéciales et autres.

L'étude des propriétés rhéologiques de cette boue a permis d'aboutir à des modèles prévisionnels de bonne qualité, traduisant l'évolution de ces propriétés en fonction de la température et de la concentration du viscosifiant AO.

En comparaison avec le VG69, le viscosifiant commercial MI, le produit AO a donné de meilleures performances dans le système MI-Versadril 95/5, et un résultat médiocre dans système 70/30. En réalité les deux produits n'agissent pas de la même façon, en plus le produit AO présente une interaction très négative avec les émulsifiants anioniques utilisés dans ces boues.

La boue à base d'eau du produit AHM a entièrement satisfait les objectifs tracés au départ. En effet cette boue présente un comportement rhéologique typique du fluide MMH-Bentonite dont on a inspiré l'idée. Le caractère rhéofluidifiant, la capacité de mise en suspension, la consistance du gel et sa fragilité et la stabilité à la chaleur, sont toutes du même ordre de grandeur que celles de la boue imitée.

Les modèles obtenus des paramètres rhéologiques de cette boue, permettent de faire des prévisions précises en fonction de la température et du pourcentage en AHM.

D'un autre côté, les modèles mathématiques de ces paramètres, calculés en fonction des facteurs de synthèse de ce viscosifiant, ont permis d'apprécier l'importance des effets de

ces derniers, ce qui offre la possibilité d'orienter le mode opératoire selon les performances désirées.

Il est tout à fait clair que les résultats expérimentaux obtenus sont très satisfaisants, cependant, il faut dire qu'il reste un long chemin périlleux à ces produits pour se retrouver au fond d'un puits.

En fin, il faut souligner l'apport de l'application de la méthode des plans d'expériences, qui a permis d'affiner l'approche expérimentale, d'optimiser le choix des essais, d'organiser leur exécution, de mieux exploiter les résultats expérimentaux et de juger la qualité des modèles estimés. On espère par l'utilisation de cette méthode, avoir contribué à sa diffusion et au développement d'une stratégie de travail plus fiable et plus judicieuse.

Cette étude a permis aussi de mettre en valeur l'intérêt de la mise en commun du savoir et du savoir-faire, et de la collaboration entre scientifiques et industriels.

Ceci étant, ce travail est loin d'être exhaustif, au contraire beaucoup reste à faire. En effet les propriétés rhéologiques ne sont pas les seules à juger de la qualité d'un fluide de forage, d'autres paramètres peuvent être déterminants, tel que : le filtrat, le cake, la densité, la stabilité aux contaminants et autres. D'un autre côté, l'effet de la température n'est pas le seul à craindre au bas du trou, l'influence de la pression, entre autres, peut être très néfaste.

Il serait aussi très opportun de tester le produit AO dans d'autres systèmes de boue avec des composants plus compatibles, d'essayer le produit AHM dans une formulation complète avec tous les ingrédients utilisés pour le fluide MMH-Bentonite, et d'élargir les tests aux autres propriétés y compris la toxicité.

Beaucoup reste à faire aussi au niveau de la compréhension et de l'interprétation physique des comportements observés. Cela pourrait déboucher sur la maîtrise des phénomènes mis en jeu, et par conséquent, pouvoir les orienter au profit de la performance, la rentabilité, la sécurité et la sauvegarde de l'environnement.

Références Bibliographiques :

- [1]: M. Zamora, M. Stephens (Petroleum well construction. Chapter 5: Drilling fluids); Edition John Wiley & Sons (1998).
- [2]: C.Garcia, et P. Parigot (Boue de forage) ; Edition Technip (1968)
- [3]: H.C.H. Darley, G.R.Gray (Composition and properties of drilling and completion fluids); Fifth edition, Gulf Publishing Company (1988)
- [4]: R.Caenn, G.V.Chillinger (Drilling fluids: State of the art)
Journal of petroleum science and engineering (14), 221-230, (1996)
- [5]: J.P. Nguyen (Le forage : Techniques d'exploitation pétrolière); Edition Technip (1993)
- [6]: C. Labbé (Notes sur les boues de forage); I.F.P (1965)
- [7]: R. Dupont (Les fluides de forage. Chapitre: Boues douces de forage)
Edition Technip (1968)
- [8]: J.P. Poley, T.G. Wilkinson (Environmental impact of oil based mud cuttings discharge-A north sea perspective); IADC/SPE paper (11400) 335-339 (1983)
- [9]: R.B. Bannet (New drilling fluid technology: Mineral oil mud)
Journal of petroleum technology 36 (7) 975-981 (1984)
- [10]: R.K. Clark, R.F. Scheuerman, H. Rath, H.G. Vanlaar (Polyacrylamide/ Potassium Chloride mud for drilling water sensitive shales)
Journal of petroleum technology 28 (6) 642-651 (1976)
- [11]: B.G. Chesser, D.P. Enrigh (High temperature stabilization for drilling fluid with a low molecular weight copolymer); Journal of petroleum technology 32 (6) 950-956 (1980)
- [12]: L.H. Williams Jr., D.R. Underdown (New polymer offers effective permanent clay stabilization treatment); Journal of petroleum technology 33 (7) 1211-1216 (1981)
- [13]: R.H.Retz, J. Friedhelm, L.J. Lee, and O.O. Welch (An environmentally acceptable and field practical cationic polymer mud system); SPE paper (23064) 325-336 (1991)
- [14]: J.P. Plank (Water based mud using synthetic polymers developed for high temperature drilling); Oil and Gas journal 90 (9) 40-45 (1992)
- [15]: T.W. Beihoffer, D.S.Dorrough, C.K. Deem, D.D. Schmidt, and R.P. Bray
(Cationic polymer drilling fluid can sometimes replace oil based mud)
Oil and Gas journal 90 (11) 47-52 (1992)
- [16]: T. Hemphill, R. Valenziano, P. Bale and B. Sketchler (Cationic drilling fluid improve ROP in reactive formations); Oil and Gas journal 90 (23) 60-65 (1992)
- [17]: A.P. Zakharov, E.A. Kanovalov (Silicon based additives improved mud rheology); Oil and Gas journal 90 (32) 61-64 (1992)
- [18]: S.D. Strickland (Polymer drilling fluids in the 1990's: will they replace oil based mud?); Journal of petroleum technology 46 (8) 691-692 (1994)
- [19]: A.P. Zakharov, E.A. Kanovalov and Y.A. Ivanov (Innovative mud additives developed from industrial wastes); Oil and Gas journal 92 (51) 112-114 (1994)
- [20]: E. Stamatakis, C.J. Thaemlitz (New generation of shale inhibitors for water based mud); IADC/SPE paper (29406) 623-631 (1995)
- [21]: D. Rui, Q. Zhengsong and L. Jianying (Soluble silicate mud additives inhibit unstable clays); Oil and Gas journal 94 (14) 66-68 (1996)
- [22]: F. Miano, S. Carminati, T.P. Lockhart and G. Burrafato (Zirconium additives for high temperature rheology control of dispersed mud)
SPE Drilling and Completion 11 (3) 147-152 (1996)
- [23]: T. Hemphill, T.I. Larsen (Hole cleaning capabilities of water and oil based drilling fluids: a comparative study); SPE Drilling and Completion 11 (4) 201-207 (1996)
- [24]: E. Van Oort, R.G. Bland, S.K. Howard, R.J. Wiersma and L. Roberson
(Improving high pressure high temperature stability of water based drilling fluids)
Journal of petroleum technology 49 (6) 634-635 (1997)

- [25]: J.E. Berry, J.B. Darby (Rheologically stable, non toxic, high temperature water based drilling fluid); SPE Drilling and Completion 12 (3) 158-162 (1997)
- [26]: S. Seaton, W. Patterson, J. Martin and G. Hertfelder (Glycol enhanced mud is used to drill an extended reach well of California); World Oil 219 (10) 53-58 (1998)
- [27]: J.E. Argillier, A. Audibert and D. Longeron (Performance evaluation and formation damage potential of a new water based drilling formula)
SPE Drilling and Completion 14 (4) 266-273 (1999)
- [28]: K.V. Antonov (Polymer mud improve drilling efficiencies in Bashkortostan)
Oil and Gas journal 99 (5) 52-55 (2001)
- [29]: J.E. Friedheim, R.M. Pontermuehl (Superior performance with minimal environmental impact: a novel non aqueous drilling fluid)
SPE/IADC paper (25753) 713-726 (1993)
- [30]: J.E. Candler, J.H. Rushing, A.J.J. Leuterma (Synthetic based mud systems offer environmental benefits over traditional mud systems); SPE paper (25993) 485-499 (1993)
- [31]: P. Kenny (Ester based muds show promise for replacing some oil based muds)
Oil and Gas journal 91 (45) 88-91 (1993)
- [32]: F.B. Growcock, S.L. Andrews and T.P. Frederick (Physico-chemical properties of synthetic drilling fluids); IADC/SPE paper (27450) 181-190 (1994)
- [33]: J.A. Veil, C.J. Burke and D.O. Moses (Synthetic based mud can improve drilling efficiency without polluting); Oil and Gas journal 94 (10) 49-54 (1996)
- [34]: P. Kenny, T. Hemphill (Hole cleaning capabilities of an ester based drilling system)
SPE Drilling and Completion 11 (1) 3-9 (1996)
- [35]: J.E. Friedheim, H.L. Conn (Second generation synthetic fluids in the north sea: are they better?); IADC/SPE paper (35061) 215-227 (1996)
- [36]: F.B. Growcock, T.P. Frederick (Operational limits of synthetic drilling fluids)
SPE Drilling and Completion 11 (3) 132-136 (1996)
- [37]: (World oils fluids: classification of fluid systems); World Oil 220 (6) 81-114 (1999)
- [38]: G. Couarraze, J. K. Grossiord (Initiation à la rhéologie) 2^{ème} édition
Lavoisier Tec.& Doc. (1991)
- [39]: J.F. Steffe (Rheological methods in food process engineering); Freeman Press (1996)
- [40]: N. Kherfellah (Caractérisation rhéologique d'une substance complexe en régime dynamique) ; Thèse de magister, Institut de physique, USTHB (1998)
- [41]: (Recommended practice on the rheology and hydraulics of oil well drilling fluids)
API. Recommended practice 13D, Third edition (1995)
- [42]: (Manuel de rhéologie des fluides de forage et laitier ciment)
Chambre syndical de la recherche et de la production du gaz et du pétrole
Comité des techniciens. Edition Technip (1979)
- [43]: T. Hemphill, W. Compos and A. Pilehvari (Yield power law model more accurately predicts mud rheology); Oil and Gas journal 91 (34) 45-50 (1993)
- [44]: P.E. Clark (Drilling mud rheology and the API recommended measurements)
SPE paper (29543) 933-941 (1995)
- [45]: G. Ricard (Introduction à la technique des boues de forage. Fascicule1: L'aspect technologique des boues de forage) ; Edition Technip (1958)
- [46]: R. Aguilera, J.S Artindale, G.M. Cordell, M.C. Ng, G.W. Nicholl et
G.A. Runions (Horizontal wells: Formation evaluation, drilling and production)
Gulf publishing company (1991)
- [47]: S.S. Okrajni, J.J. Azar (The effect of mud rheology on annular hole cleaning in directional wells); SPE reprint series (30) 46-57 (1986)
- [48]: J. Estes, B. Randall and K. Bridges (Bingham plastic fluids more effectively clean horizontal holes); Oil and Gas journal 94 (46) 89-94 (1996)

- [49]: T.E. Becker, J.J. Azar and S.S. Okrajni (Correlations of mud rheological properties with cuttings transport in directional holes); SPE paper (19535) 16-24 (1991)
- [50]: S.M. AlZahrani (A generalized rheological model for shear thinning fluids)
Journal of petroleum science and engineering (17), 211-215 (1997)
- [51]: M.D. Politte (Invert oil mud rheology as a function of temperature and pressure)
SPE/IADC paper (13458) 305-310 (1985)
- [52]: O.H. Howen, T. Geehan (Rheology of oil based muds); SPE paper 15416 (1986)
- [53]: O. Guillot, G.C. Maitland (High temperature high pressure rheology of water based mud); SPE paper (18035) 187-195 (1988)
- [54]: R. Rommetveit, K.S. Bjørkevold (Temperature and pressure effects on drilling fluid rheology and ECD in very deep wells); SPE/IADC paper (39282) 297-305 (1997)
- [55]: G. Pages (Argile et diagraphie : Ch.I: Argiles) ; Total, Direction exploration (1988)
- [56]: R.E. Grim (Applied clay mineral); Edition Mc Graw Hill (1962)
- [57]: S. Caillère, S. Hinin, M. Rautureau (Minéralogie des argiles ; Tome II : Classification et nomenclature) 2^{ème} Edition ; Edition Masson (1982)
- [58] : S. Benazzouk, A. Fodil (Application des micro-ondes dans la préparation des AL-polycations, et études de l'acidité de surface des Al-Montmorillonite pontées)
PFE Institut de chimie industrielle Université Saad Daahleb (Blida) (1999)
- [59]: (Specification for drilling fluid materials); API Spec. 13A, 15th Edition (1993)
- [60]: G.M. Bol (Bentonite quality and quality evaluation methods)
SPE paper (13454) 288-296 (1986)
- [61]: (Livret des substances utiles non métalliques de l'Algérie: Wilaya de Mostaganem)
Office nationale de la recherche géologique et minière (ORGM)
Edition du service géologique de l'Algérie. Boumerdes (1998)
- [62] : (Livret des substances utiles non métalliques de l'Algérie: Wilaya de Telemcen)
Office nationale de la recherche géologique et minière (ORGM)
Edition du service géologique de l'Algérie. Boumerdes (1998)
- [63]: (Fiche technique de la bentonite de forage) ; ENOF. Unité de Mostaganem
- [64]: (Fiche technique de la bentonite de forage) ; ENOF. Unité de Maghnia
- [65]: Document inédit : Service géologique de l'Algérie ; (SGA) (1987) ORGM/ENOF
- [66]: S.C. Polnaszek, L.G. Fraser (Drilling fluid formulation for shallow offshore horizontal well drilling); SPE paper (22577) 385-392 (1991)
- [67]: J. Plank, G. Keilhofer, P. Lange (MMH-Bentonite fluids provide outstanding performances in oil field drilling); Oil and Gas journal 98 (11) 39-42 (2000)
- [68]: J.L. Burba, W.E. Holman and C.R. Crabb (Laboratory and field evaluation of a novel inorganic drilling fluid additive); IADC/SPE paper (17198) 179-186 (1988)
- [69]: F. Lavoix, M. Lewis (Mixed metal hydroxide drilling fluid minimize well bore washouts); Oil and Gas journal 90 (39) 87-90 (1992)
- [70]: J. Filixberger (Mixed metal hydroxide (MMH): A new and unique inorganic viscosifier for water based drilling fluid); 113 Jahrgang 1, ErdölErdgas Kohle 12-17 (1997)
- [71]: L.J. Fraser (Unique characteristics of mixed metal hydroxide fluid provide gauge hole in divers types of formation); SPE paper (22379) 499-506 (1992)
- [72]: J.L. Burba, W.F. Tehan, F.D. Hamilton and W.E. Holman (Field evaluation confirm superior benefits of MMLHC fluid systems on hole cleaning, borehole stability, and rate of penetration); IADC/SPE paper (19956) 371-380 (1990)
- [73]: D.D Schmidt, A.J. Roos, J.T. Cline (Interaction of water with organophilic clay to build viscosity); SPE paper (16683) 87-101 (1987)
- [74]: R.M. Barrer, D.N. Mclaod, Trans.Faraday Soc. (51) 1290-1300 (1955)
- [75]: R.M. Barrer (Zeolites and clay minerals as sorbents and molecular sieves)
Academic Press, London (1978)

- [76]: M.R. Sun Kou, S. Kendioroz, M.I. Guirro (A thermal study of Zirconium montmorillonite); *Thermochimica acta*, 323 (1-2) (1998) 145
- [77]: J. Sterte (Synthesis and properties of Titanium oxide cross linked montmorillonite)
Clays and Clay minerals 34 (6) 658-664 (1986)
- [78]: S. Yamanaka, M. Hattari, *Catal. Today* 2 (1988) 261
- [79]: M.V. Sychev, N.Y. Kostoglod, I.M. Astrelin, M. Rosewadowski and E.M. Vanores (Study of porous structure of pillared clays.1: Montmorillonite fixed by Chromium III oxide); *Kinetics and catalysis* 39 (1) 106-113 (1998)
- [80]: A. Bellaloui, D.Plee and P. Meriaudeau (Gallium containing pillared interlayer clays and catalytic properties); *App. Catalysis* 63 (1990) 17-110
- [81]: K. Benrakowski, M. Gasior, A. Kielski, J. Podobinski, E.M. Serwika L.A. Vartikian, and K. Wodnika (Physico-chemical characterization and catalytic properties of copper doped alumina pillared monmorillonite)
Clays and Clay minerals 46 (1) 98-102 (1998)
- [82]: N.D. Huston, M.I. Hoeksira and R.T. Yang (Control of microporosity of Al₂O₃ pillared clays: effect of pH, calcination temperature, and clay cation exchanged capacity)
Microporous and mesoporous materials 28 (3) 447-459 (1980)
- [83]: G. Brindley and Cin Kao (Formation, composition and properties of hydroxyaluminium montmorillonite); *Clays and clay minerals* 28 (6) 435-443 (1980)
- [84]: P.M. Bertch (Conditions for Al₁₃ polymer formation in partially neutralized Aluminum solution); *Sol Sci. Soc. Am. J.* 51, 225-228 (1987)
- [85]: K. Suzuki, T. Mori and K. Kawase (Preparation of determined clay having narrow micropore distribution in the presence of hydroxyaluminium with montmorillonite and polyvinyl alcohol); *Clays and Clay minerals* 36 (1988)
- [86]: S. Shan and Kodama (Reaction of polynuclear hydroxyaluminium cation with montmorillonite and formation of 28A° pillared clay)
Clays and Clay 97 (402) 36-37 (1988)
- [87]: J.T. Klopogge, D. Seykens, J.W. Gens and J.B.H. Jansen (Temperature influence on Al₁₃ formation in partially neutralized aluminum solution: a ²⁷Al nuclear magnetic resonance study); *Journal of non-crystalline solids* 142, 87-93 (1992)
- [88]: D.R. Parker P.M. Bersch (Formation of Al₁₃ tridecameric polycation under diverse synthetic conditions); *Environ. Sci. Technol.* 26 (5) (1992)
- [89]: W.Z. Wang and P.A. Hsu (The nature of polynuclear HO-Al complexes in laboratory hydrolyzed and commercial hydroxyaluminium solutions)
Clays and Clay 42 (3) 356-368 (1994)
- [90]: G. Fetter, G. Heredia, A.M. Maubert and P. Bosch (Synthesis of Al intercalated montmorillonite using microwaves irradiations);
J. Mater. Chem. 6 (11) 1857-19-858 (1996)
- [91]: J.T. Klopogge (Synthesis of smectite and porous pillared clay catalysts: A review); *Journal of porous materials* 5, 5-41 (1998)
- [92]: J.M. Dominguez, J.C.B. Pozos, A.L. Ortega and M.T. Ramirez (Study of pillar precursors [Ga (III)-Al (III), Ln (III)-Al (III), Zr (IV)] for hydrothermally stable pillared clay); *Catalysis Today* 43, 69-77 (1998)
- [93]: Hadj Khelifa Leila (Application de la photodegradation catalytique sur l'oxydation des polluants phénoliques en présence de TiO₂ et Ti-Bentonite pontée); Thèse de Magister, Département de chimie industrielle, Université Saad Dahleb (Blida) (2002)

- [94] : Rezala Houria (Contribution à l'étude des propriétés adsorptives des bentonites pontées vis à vis des isomères de Xylène); Thèse de Magister, Département de chimie industrielle, Université Saad Dahleb (Blida) (2002)
- [95]: L. Sarc, O. Bouras, H. Khalaf (Somme consideration on the influence of source clay material and synthesis conditions on the properties of Al-pillared clay)
Applied Clay Sciences (8) 405-415 (1994)
- [96]: H. Khalaf, O. Bouras, V. Perrichon (Synthesis and characterization of Al-pillared, and cationic surfactant modified Al-pillared Algerian bentonite)
Microporous materials (8) 141-150 (1997)
- [97]: O. Bouras, H. Khalaf, A. Berrezig et D. Ghribi (Synthèse, caractérisation et application d'une montmorillonite pontée à base de polycation de Titane et de tensioactif)
J. Soc. Alg. Chim. 8 (1) 57-66 (1998)
- [98]: H. Khalaf, O. Bouras and M. Houari (Adsorption of phenolic compounds by surfactant modified Al-pillared bentonite)
Toxicol and environmental chemistry 70, 221-229 (1999)
- [99]: O. Bouras, M. Houari and H. Khalaf (Using a surfactant modified Fe- pillared bentonite for the removal of pentachlorophenol from aqueous stream)
Environmental technology 22 (1) 69-75 (2001)
- [100]: O. Bouras, T. Chami, M. Houari, H. Khalaf, J.C. Ballinger and M. Baudu
(Removal of sulfacid pink from an aqueous stream by adsorption onto surfactant modified Ti-pillared bentonite)
Acceptée pour publication dans Environmental thechnology
- [101] : N. Bouchenefa (Argile intercalée au Zirconium : préparation, caractérisation et application catalytique dans la réaction d'hydroisomerisation des n-alcanes légers)
Thèse de Magister, Département de chimie industrielle, Université Saad Dahleb (Blida) (1998)
- [102] : A. Aggoun (Coagulation-floculation des substances humiques sur le PCBA et couplage de l'adsorption sur une bentonite modifiée à la microfiltration);Thèse de Magister, Département de chimie industrielle, Université Saad Dahleb (Blida) (2000)
- [103] : D. Hadj Bachir (Préparation et caractérisation de catalyseurs au palladium supporté sur montmorillonite pontée au Al_{13} : application à l'oxydation des oléfines ternaires)
Thèse de Magister, Département de chimie industrielle, Université Saad Dahleb (Blida) (2001)
- [104]: R. Issaadi, F. Garin, C.E. Chitour and G. Maire (Catalytic behavior of combined palladium-acid catalysts: use of Al and Zr- pillared monmorillonite as supports. Part I. Reactivity of linear, branched and cyclic hexane hydrocarbons)
Applied Catalysis A: General 207, 323-332 (2001)
- [105]: P. Shimmerling, J.C. Sisson et A. Zaïdi (Pratique des plans d'expériences)
Techniques & documentation (1998)
- [106] : J. Goupy (Plans d'expériences pour surfaces de réponses) ; Edition Dunod (1999)
- [107]: Techniques de l'ingénieur. Traité analyse et caractérisation: Plans d'expériences P.230
- [108] : G. Sado, M.C.Sado (Les plans d'expériences : de l'expérimentation à l'assurance qualité) ; AFNOR (2000)
- [109] : Logiciel STATISTICA
- [110] : Logiciel des plans d'expériences MODDE 0.5 DEMO
- [111] : Logiciel des plans d'expériences JMP DEMO
- [112] : MI manual of drilling fluids engineering