



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

THÈSE

Pour l'obtention du Grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE
ECOLE NATIONALE SUPÉRIEURE DE MÉCANIQUE et D'ÉLECTRICITÉ

École Doctorale : EMMA - Energie Mécanique et Matériaux

Laboratoire : Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée

Secteur de recherche : Mécanique et Énergétique

Présentée par :

Mohammed GHESMOUNE

Avancement de la méthode de saturations négatives pour les écoulements multi-composants multi-phasiques avec gravité et diffusion.

Directeurs de Thèse : **Mikhail PANFILOV**

Thèse soutenue le 2 Avril 2013

devant la Commission d'Examen

– JURY –

Jérôme **JAFFRÉ**
Rainer **HELMIG**
Roland **MASSON**

Directeur de Recherche INRIA Rocquencourt
Professeur, Université de Stuttgart
Professeur, Université de Nice Sophia-Antipolis

Président
Rapporteur
Rapporteur

Romain **PRIVAT**
Mojdeh **RASOULZADEH**
Mikhail **PANFILOV**

Maître de Conférences, Université de Lorraine
Docteur, Université de Lorraine
Professeur, Université de Lorraine

Examineur
Examineur
Directeur de thèse

Remerciements

En premier lieu, je tiens à remercier chaleureusement Monsieur Rainer HELMIG et Monsieur Roland MASSON d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce mémoire. Mes remerciements vont également à Monsieur Jérôme JAFFRÉ pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse.

J'associe à ces remerciements les autres membres de jury, Monsieur Romain PRIVAT, et Madame Mojdeh RASOULZADEH pour avoir accepté d'examiner ce travail et pour leurs remarques et leurs critiques constructives.

Je souhaite aussi remercier mon directeur de thèse, Monsieur Mikhail PANFILOV qui m'a apporté sa précieuse aide et ses connaissances tout au long de ces trois ans et les autres membres de notre équipe Madame Irina PANFILOVA et Monsieur Antonio PERIERA pour leur soutien durant ces années de travail.

Je tiens à remercier également Monsieur Fabrice LEMOINE, Directeur de Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA-ENSEM-UL) de m'avoir accueillie dans son laboratoire.

Je ne saurais terminer ces remerciements sans saluer ma famille qui a fait beaucoup de sacrifices et qui a toujours été là pour moi.

Table des matières

Table des figures	vii
--------------------------	------------

Liste des tableaux	xi
---------------------------	-----------

Introduction générale

Chapitre 1

Les modèles dissymétriques pour les équilibres gaz-liquide

1.1	Principe de l'approche : cas d'un fluide simple	9
1.1.1	Relations d'équilibre	9
1.1.2	Pseudo-liquide et pseudo-gaz	10
1.1.3	Le point pseudo-critique	11
1.1.4	Cas d'une EOS uniforme pour les deux phases	13
1.1.5	Les conditions de consistance d'un modèle dissymétrique : La règle de Maxwell inversée	14
1.1.6	Consistance d'un liquide exponentiel et un gaz idéal	16
1.2	Détermination des coefficients de modèle	18
1.2.1	Technique générale d'ajustement des modèles dissymétriques	18
1.2.2	Exemple d'ajustement	20
1.2.3	Ajustement au voisinage du point critique	21
1.3	Les conditions de consistance en tenant compte des forces capillaires	22
1.3.1	Relations générales d'équilibre	22
1.3.2	Condensation capillaire : équation de Kelvin	24
1.4	Équilibre de phases des systèmes multi-composants	26
1.4.1	Équations d'équilibre	26

1.4.2	Diagramme de phase d'un fluide multi-composant	28
1.4.3	Possibilité d'utiliser une même EOS d'un pseudo-gaz pour l'ensemble des composants purs	29
1.4.4	Modèles des mélanges gazeux et liquides	30
1.4.5	Le modèle d'un gaz parfait et un liquide décrit par l'équation NRTL	31
1.5	Calcul d'équilibre pour un mélange multi-composant avec effet capillaire	32
1.5.1	Modèle d'équilibre - EOS de viriel pour le gaz et EOS exponentielle pour le liquide	32
1.5.2	Calculs d'équilibre pour un système binaire	33
1.5.3	Calculs d'équilibre pour un système ternaire	34
1.6	Comparaison avec les données expérimentales	36
1.6.1	Systèmes binaires	36
1.6.2	Systèmes ternaires	39
1.7	Conclusion	40

Chapitre 2

La méthode de saturations négatives

2.1	Interface de transition de phase	45
2.2	État d'équilibre et de déséquilibre des phases	45
2.3	Concept de la méthode Neg-Sat	47
2.4	Principe d'équivalence	48
2.4.1	Signification du principe d'équivalence	49
2.4.2	Preuve d'équivalence	50
2.5	Conclusion	52

Chapitre 3

Théorie analytique de résolution d'un problème de déplacement

3.1	Revue de la littérature	55
3.2	Formulation du problème	56
3.2.1	Mélange idéal	56
3.2.2	Introduction des débits fractionnaires	58
3.2.3	Forme adimensionnelle	58
3.3	Le déplacement diphasique d'un mélange ternaire	59

3.3.1	Les diagrammes de phases ternaires	59
3.3.2	Composition de phases	61
3.3.3	La théorie classique de construction de la solution	65
3.4	La théorie analytique basée sur la méthode de saturations négatives	79
3.4.1	Modèle canonique	79
3.4.2	Débit fractionnaire	80
3.4.3	Equations des chocs	81
3.4.4	Algorithme de construction de la solution	83
3.5	Comparaison entre les deux méthodes	85
3.6	Les systèmes multi-composants	90
3.6.1	Identification des tie lines	90
3.6.2	Construction de la solution	91
3.7	Conclusion	92

Chapitre 4

La méthode *Neg-Sat* pour un écoulement régi par diffusion et capillarité

4.1	Formulation du modèle	97
4.1.1	Equations diphasiques du fluide fictif	97
4.1.2	Démonstration de l'équivalence	98
4.1.3	Le modèle diphasique uniforme	99
4.2	Comportement des interfaces de transition	100
4.2.1	Problème de Riemann « <i>Influence de la diffusion</i> »	103
4.2.2	Régularisation par l'introduction de la capillarité	114
4.3	Migration d'hydrogène dans les dépôts souterrains des déchets radioactifs	116
4.3.1	Formulation du problème	116
4.3.2	Tests numériques	120
4.4	Conclusion	128

Chapitre 5

La méthode *Neg-Sat* pour un écoulement régi par gravité

5.1	Equations diphasiques uniformes	131
5.2	Preuve d'équivalence	132
5.3	Mélange binaire idéal	133

5.3.1	Démonstration de (5.8)	133
5.3.2	Forme adimensionnelle	135
5.4	Simulations numériques	136
5.4.1	Injection d'un gaz partiellement miscible dans un réservoir d'huile	137
5.4.2	L'ascension d'une bulle de gaz dans un aquifère	138
5.5	Conclusion	140

Chapitre 6

La méthode *Neg-Sat* pour un écoulement multiphasique

6.1	Modèle multiphasique fictif	143
6.2	Cas d'un mélange idéal	145
6.3	Simulation numérique d'un écoulement triphasique	146
6.4	Conclusion	150

Conclusion générale

Appendices

Annexe A

Démonstration de (1.28a)

Annexe B

Démonstration de (1.43) et (1.44)

Annexe C

Solution analytique du problème de migration de l'hydrogène

C.1	Formulation du problème	161
C.2	Modèle asymptotique	164
C.3	Estimation du temps d'apparition de gaz	165
C.4	Profil de saturation	166

Bibliographie

167

Table des figures

1.1	Illustration du concept des phases réelles et des pseudo-phases sur le diagramme $P - v$. (i) EOS individuelle de gaz (ABM), (ii) EOS individuelle de liquide (ADE), (iii) EOS cubique uniforme pour le gaz et le liquide (ABGFHDE).	11
1.2	Technique graphique de la détermination de la ligne d'équilibre, dans le cas d'une EOS uniforme (cubique)	14
1.3	(a) Technique graphique pour déterminer les conditions de consistance : la surface grise correspond à l'intégrale dans Eq. (1.9); (b) Le diagramme de phase résultant	15
1.4	Solvabilité de (1.15)	17
1.5	La fonction $\mathcal{Q}(\xi)$ définie par Eq. (1.19)	20
1.6	Diagrammes de phase $P - v$ pour le decane en utilisant : le modèle dissymétrique (en rouge) et l'EOS de Peng-Robinson (en vert)	21
1.7	Diagrammes de phase $P - v$ au voisinage de point critique pour le heptane en utilisant : le modèle dissymétrique (la ligne continue) et l'EOS de Peng-Robinson (les points)	22
1.8	La solution graphique de l'équation d'équilibre (1.24) « a ». Le diagramme de phase résultant P vs v « b ».	23
1.9	Interprétation graphique de l'équation (1.26). La solution physique non triviale correspond au point A	24
1.10	Diagramme de phase tridimensionnel d'un mélange binaire : P est la pression, v le volume molaire, C^1 la fraction molaire du composant léger dans le mélange	29
1.11	Exemple de consistance d'une même EOS de pseudo-gaz pour l'ensemble des composants : détermination graphique de la pression d'équilibre $P_{eq,1}$ (a) et $P_{eq,2}$ (b)	30
1.12	Diagramme de phase binaire (2-methylpentane-octane) $P - \log(v)$ à $T=328.15^\circ\text{K}$	37
1.13	Diagramme de phase binaire (Heptane-octane) $P - C_{C7}$ à $T=328.15^\circ\text{K}$	37

Table des figures

1.14	Diagramme de phase binaire (2-methylpentane-heptane) $P - C_{C6}$ at $T=328.15^{\circ}\text{K}$.	38
1.15	Diagramme de phase binaire (2-methylpentane-octane) $P - C_{C6}$ à $T=328.15^{\circ}\text{K}$. .	38
1.16	Diagramme de phase ternaire 2-methylpentane-heptane-octane ($P = 0.5$ bar et $T=328.15^{\circ}\text{K}$) sans effet capillaire. En rouge : mélange idéal, bleu : liquide non idéal	39
1.17	Diagramme de phase ternaire 2-methylpentane-heptane-octane ($P = 0.5$ bar et $T=328.15^{\circ}\text{K}$). En rouge : liquide non-idéal sans effet capillaire, bleu : liquide non-idéal avec effet capillaire	39
2.1	Interface de transition de phase à l'échelle de pore (a) et à l'échelle macroscopique (b)	45
2.2	États d'équilibre et de déséquilibre sur un diagramme de phase	46
3.1	-a- diagramme de phases de Gibbs ; -b- diagramme de phase cartésien	60
3.2	Structure interne des diagrammes ternaires : -a- diagramme de phases de Gibbs ; -b- Diagramme de phase cartésien	61
3.3	Tie Lines	63
3.4	Comparaison entre deux tie lines	64
3.5	Représentation graphique du débit fractionnaire total	67
3.6	Débit fractionnaire total de deux différentes compositions de phase	68
3.7	Interprétation graphique d'un C-choc	70
3.8	Interprétation graphique d'un $C\alpha$ -choc : -a- l'onde de raréfaction est devant le choc ; -b- l'onde de raréfaction est derrière le choc	73
3.9	Choc de transition de phase : AB entre un liquide et un fluide diphasique ; CD entre un gaz et un fluide diphasique	75
3.10	Problème de déplacement par un gaz sec : A gaz injecté ; B h'huile initiale	76
3.11	Construction graphique de la solution du problème de déplacement par un gaz sec	77
3.12	Profile de la concentration totale C^1 et de la saturation en liquide S_l	79
3.13	Structure de la fonction de débit fractionnaire	80
3.14	Choc de transition de phases	81
3.15	Choc intermédiaire	83
3.16	Trajectoire de la solution	85
3.17	Profile de la saturation en gaz	85
3.18	Méthode classique	87
3.19	Méthode de Neg-Sat	87

3.20	Profil de la saturation en gaz	88
4.1	Extra-diffusion $D(S_g)$	103
4.2	Schématique d'un schéma volume finie centrée où les faces des cellules se trouvent au milieu des noeuds	104
4.3	Solution numérique du problème de Riemann	107
4.4	Profil de la saturation en gaz pour les différents schémas	112
4.5	Extra-diffusion $D^*(S_g)$	115
4.6	Effet de la capillarité sur le comportement des interfaces	115
4.7	Génération d'hydrogène dans un site de stockage	116
4.8	La géométrie du milieu poreux	120
4.9	Profil de saturation en gaz «stage 1»	123
4.10	Profil de pression de gaz «stage 1»	123
4.11	Profil de la saturation en gaz «stage 2»	124
4.12	Profil de pression de gaz «stage 2»	125
4.13	Profil de la saturation en gaz «stage 1»	126
4.14	Profil de pression de gaz «stage 1»	126
4.15	Profil de la saturation en gaz «stage 2»	127
4.16	Profil de pression de gaz «stage 2»	127
5.1	Gas saturation at $\tau = 0.05, 0.1$ et 0.5	137
5.2	La saturation de gaz pour les moments $\tau = 0.005, 0.01, 0.05, 0.1, 0.15$ et 0.2 . . .	139
6.1	Illustration de l'apparition des interfaces entre les fluides monophasiques et la zone triphasique (au milieu) : a - en termes des saturations négatives ; b - en terme des saturations normalisées	149

Table des figures

Liste des tableaux

1.1	Paramètres du mélange binaire 2-methylpentane - heptane	36
1.2	Paramètres du mélange binaire 2-methylpentane - octane	36
1.3	Paramètres du mélange binaire heptane - octane	36
3.1	Parcours de la solution	86
4.1	Propriétés d'équivalence	100
4.2	Propriétés des fluides	107
4.3	Les différents schémas numériques du problème (4.26)	109
4.4	Quelques limiteurs de flux pour les schémas de second ordre.	110
4.5	Les données physiques	121
5.1	Propriétés des fluides	137
6.1	Propriétés des composants purs	146
6.2	Paramètres du modèle de Corey	147

Introduction générale

De nombreux procédés physiques intervenant dans le champ des nouvelles technologies industrielles nécessitent une compréhension du phénomène de déplacement compositionnel de deux ou plusieurs phases en milieu poreux. Ce domaine suscite un grand intérêt scientifique de par la complexité des phénomènes de dissolution et de transition de phases à prendre en compte ainsi qu'un intérêt pratique direct dans le domaine de la récupération assistée du pétrole (EOR) : Enhanced oil recovery, la séquestration du CO₂, et la génération d'hydrogène dans les déchets radioactifs.

Une partie des techniques mises en œuvre en EOR consiste à injecter un gaz dans un réservoir d'huile afin d'en modifier les propriétés (réduction de la viscosité) et/ou d'en évaporer partiellement ou complètement l'huile, dans le but d'améliorer la production. Au cours de l'injection, des composants présents dans le gaz se dissolvent dans l'huile tandis que des composants présents dans l'huile se transfèrent vers la phase gazeuse. Cela conduit à l'apparition des zones diphasiques (ou triphasiques si on considère l'eau interstitielle) entre les zones monophasiques gaz et huile. Le réservoir peut alors être considéré comme divisé en différentes zones, avec un nombre différent de phases, séparées par des surfaces macroscopiques spécifiques appelées " Interfaces of phase transition (IPT) ou phase disappearance (IPD)". Ainsi, les équations d'écoulement sont différentes de chaque côté d'une IPT ce qui impose de sérieuses difficultés dans la modélisation numérique.

S'ajoute à cela le fait que les équations hydrodynamiques qui décrivent l'écoulement des fluides sont couplées avec les équations thermodynamiques qui décrivent l'équilibre entre les phases. Pour simuler le déplacement d'un fluide dans un réservoir géologique, plus de la moitié du temps de calcul est consommé pour résoudre le système thermodynamique.

Ces deux types de problèmes ont été traités dans cette thèse qui a été divisée en deux parties :

La partie thermodynamique

Cette première partie est consacrée au développement d'une nouvelle approche qui permet de résoudre le système thermodynamique analytiquement et ainsi réduire le temps de calcul, tout en conservant un niveau de précision acceptable. Ce problème est particulièrement pertinent pour les mélanges multi-composants de deux ou plusieurs phases.

En ingénierie de réservoir, l'hypothèse d'équilibre local est souvent appliquée en se basant sur le fait que le temps caractéristique de l'échange de masse entre les phases est généralement très petit par rapport au temps de déplacement, en raison de la grande surface de contact entre les phases. Par conséquent, l'échange de masse est décrit par des équations d'équilibres thermodynamiques. Ces équations sont formulées en terme d'équivalence des potentiels chimiques (ou fugacités) de chaque composant dans chaque phase.

Les équations d'équilibre doivent être complétées par des équations d'état (EOS : Equations of state) pour chaque phase. Les plus fréquemment utilisées sont les EOS cubiques développées par "Van der Waals", "Peng-Robinson" ou "Redlich-Kwong", en raison de leur capacité à décrire de manière satisfaisante la coexistence (ou l'équilibre) gaz-liquide.

La résolution du système thermodynamique d'équilibre renseigne sur la composition chimique de chaque phase à des pressions et températures connues, et sur la fraction volumique de chaque phase. Dans le cas d'un fluide confiné dans un milieu poreux, le modèle thermodynamique doit également être capable de décrire l'influence des effets capillaires sur le comportement des phases.

En utilisant des EOS cubiques, on obtient un système d'équations d'équilibre non linéaires qui n'a pas de solution analytique explicite et qui peut être résolu uniquement par des méthodes numériques. Ce type de procédure numérique a été suggéré dans [9] et [10] sous une forme appelée « *flash calculation* ». Ce calcul itératif doit être effectué à chaque pas de temps et en chaque point de l'espace, ce qui demande un temps de calcul considérable.

Par conséquent, un grand nombre de méthodes visant à réduire le temps de calcul flash par réduction du nombre de variables primaires ont été publiées. Michelsen dans [11] a réduit le nombre de paramètres à trois en considérant des valeurs nulles pour tous les paramètres d'interaction binaires (PIB). De même, le nombre de paramètres a pu être réduit à cinq dans [5] en ne prenant en compte que les PIB entre un composant et le système de tous les autres composants. Plus récemment, dans [8] les auteurs ont suggéré la scission des PIB en deux paramètres à l'aide d'une simple expression quadratique.

Une autre façon de réduire le temps de calcul consiste à séparer la thermodynamique de l'hydrodynamique. Un exemple de cette séparation a été publié dans [13], [14] où les auteurs

ont développé le HT-splitting, une procédure asymptotique qui a permis d'obtenir un système d'équations thermodynamiques complètement indépendantes des équations hydrodynamiques et dans lequel les concentrations des phases dépendent uniquement de la pression. Cette approche a conduit à un nouveau type de modèle thermodynamique formé par l'ensemble des relations traditionnelles et des nouvelles équations thermodynamiques différentielles.

La technique HT-splitting a été également proposée dans [15] pour la récupération assistée du pétrole diphasique. L'intérêt de la méthode réside dans la séparation du modèle mathématique EOR en deux parties thermodynamique et hydrodynamique. L'introduction d'un potentiel associé à l'une des lois de conservation et son utilisation comme une nouvelle coordonnée indépendante permet de réduire le système d'une équation. Le modèle des lois de conservation pour un écoulement diphasique de n composants de dimension $(n) \times (n)$ est transformé en un système auxiliaire de dimension $(n - 1) \times (n - 1)$ contenant uniquement des variables thermodynamiques (fractions d'équilibre des composants, isothermes de sorption) et une équation de transport contenant uniquement des paramètres hydrodynamiques (les perméabilités relatives et les viscosités des phases).

L'objectif de notre travail est de développer une approche alternative basée sur l'utilisation des EOS dissymétriques pour le gaz et le liquide au lieu d'une seule et même EOS cubique. En effet, le principal avantage d'une EOS cubique réside dans sa capacité à décrire simultanément la phase gazeuse, la phase liquide et la zone diphasique. Cependant, cette EOS cubique, du fait de sa complexité mathématique lors de la description de l'ensemble de ces états de façon continue, peut aussi s'avérer un défaut. En effet, l'EOS cubique conduit à des relations fortement non linéaires d'une complexité excessive. Etant donné qu'elle ne sera pas utilisée à l'intérieur de la zone de transition diphasique mais tout simplement remplacée par la ligne isobare droite de Maxwell, il semble donc logique de tenter de décrire le liquide et le gaz par deux EOS différentes plus simples.

L'approche basée sur des EOS dissymétriques n'est pas nouvelle et souvent appliquée dans le domaine de la chimie à des fins diverses. Il existe un grand nombre de documents dans lesquels des modèles dissymétriques sont utilisés pour calculer certains paramètres thermodynamiques des mélanges. Cependant, l'utilisation de cette méthode pour calculer les équilibres des phases est moins connue. Une telle application a été réalisée pour la première fois par Kelvin, qui a utilisé le modèle du gaz parfait et du liquide incompressible pour décrire l'équilibre contrôlé par les forces capillaires pour un fluide mono-composant. Les EOS dissymétriques ont été appliquées aux mélanges binaires dans [7], [6] pour calculer l'enveloppe diphasique. Dans [18] la généralisation de l'équation de Kelvin a été obtenue pour des mélanges multi-composants en utilisant

une EOS de gaz réel et un liquide incompressible et en introduisant un nouveau concept « *mixed volume* ». L'équation résultante est valide seulement près du point de rosée.

Dans les méthodes précédemment énoncées, le choix des EOS dissymétriques individuelles est arbitraire et non contraint. Cependant, une fois que nous avons essayé d'étendre les modèles dissymétriques aux mélanges multi-composants, nous avons constaté que plusieurs EOS conduisent à la non-existence de l'état diphasique. En particulier, il est possible de montrer que le liquide incompressible est incapable de capturer l'état diphasique quelle que soit l'EOS choisie pour le gaz. La capacité d'une EOS à capturer la zone diphasique est appelée "conditions de consistance". Ainsi, le choix des EOS dissymétriques pour le gaz et le liquide n'est pas arbitraire et doit satisfaire certaines conditions d'auto-consistance, qui assurent en principe la détection de l'état diphasique (coexistence gaz-liquide). Nous avons développé la théorie mathématique qui permis de déterminer ces conditions.

L'approche développée aboutit à un système d'équations d'équilibre très simple pouvant être résolu analytiquement par rapport aux concentrations des phases, y compris dans le cas des systèmes multi-composants non idéaux et en considérant les effets capillaires, ce qui réduit considérablement le temps de calcul.

La partie hydrodynamique

Plusieurs méthodes de récupération assistée du pétrole conduisent à l'apparition des interfaces de transition de phases (IPT) [23], ou de disparition de phases (IPD) [24], [25], [26]. Les fluides séparés par une IPT sont en déséquilibre et ont un nombre de phases différent.

Par exemple, l'injection de CO₂ dans l'huile conduit à la formation d'un gaz monophasique près du puits d'injection, suivi d'une zone diphasique (ou triphasique : gaz, huile, eau), suivie par la phase huile monophasique initiale (ou deux phases : huile et eau). Les équations d'écoulement sont différentes dans toutes ces zones et souvent ne peuvent pas être déduites les unes des autres par une dégénérescence continue, ce qui rend difficile la modélisation et la simulation numérique d'un tel écoulement.

La dégénérescence continue se définit par la réduction de la fraction volumique (ou saturation) d'une phase à zéro. Il semble que le fluide monophasique peut être facilement obtenu à partir d'un fluide diphasique ou triphasique en faisant tendre respectivement une ou deux saturations vers zéro. De ce point de vue, les équations hydrodynamiques d'un fluide monophasique peuvent être facilement obtenues à partir des équations hydrodynamiques d'un fluide multiphasique par une dégénérescence continue. Malheureusement ce raisonnement ne peut être étendu

aux équations thermodynamiques d'équilibre : l'équilibre multiphasique qui détermine la composition d'un fluide multiphasique n'a rien à voir avec celui d'un fluide monophasique dont la composition n'est pas contrôlée par les contraintes thermodynamiques.

Pour cette raison, la dégénérescence du système complet d'équations multiphasiques (hydrodynamiques et thermodynamiques) ne décrira pas de manière satisfaisante le véritable fluide monophasique dont le comportement est loin du domaine d'équilibre.

Pour décrire un tel système, une nouvelle méthode mathématique conceptuelle appelée " la methode de saturation négative" a été développée. Elle est basée sur le remplacement du véritable fluide monophasique par un fluide multiphasique imaginaire ayant des propriétés fictives, [20] , [21] , [22]. Cette méthode permet de décrire le fluide comme multiphasique dans l'ensemble des zones et d'effectuer des simulations numériques directes en utilisant les équations hydro et thermodynamiques multiphasiques.

Le principe d'équivalence détermine les propriétés physiques du fluide fictif, ainsi que la structure des équations multiphasiques uniformes qui peuvent contenir des termes supplémentaires non classiques dans de nombreux cas.

Cette méthode permet également de montrer que la saturation de chaque phase devient une fonction étendue qui peut être négative ou supérieure à un dans les zones monophasiques. Cela constitue un moyen efficace pour localiser les IPT, déterminer le nombre de phases en tout point de l'espace et déterminer le degré de déséquilibre des phases.

La méthode a été développée en premier lieu pour le cas diphasique et les mélanges binaires. Dans cette thèse, tout d'abord, nous avons développé la théorie analytique de la méthode pour les mélanges diphasiques idéaux en déplacement unidimensionnel. Nous avons ainsi démontré que dans ce cas, le problème de déplacement se réduit à une seule équation de Buckley-Levrett quel que soit le nombre de composants ou de phases (un ou deux phases) , à laquelle doit s'ajouter l'ensemble des conditions de Rankine-Hugoniot au niveau des chocs. Ensuite, une nouvelle version de la méthode a été développée pour les mélanges multiphasiques compositionnels et en prenant en compte l'effet de gravité, de diffusion et de capillarité. Nous avons obtenu les nouvelles équations multiphasiques qui contiennent des termes additionnels responsables de la diffusion et de la gravité à travers les IPT.

Chapitre 1

Les modèles dissymétriques pour les équilibres gaz-liquide

La description de l'équilibre des phases dans le cas des fluides multi-composants en se basant sur une équation d'état uniforme pour toutes les phases reste une procédure couteuse en terme de temps de calcul numérique, ce qui entrave considérablement la simulation de la dynamique des fluides dans les milieux poreux. L'autre approche, qui consiste à utiliser des équations d'état dissymétriques, une pour le gaz et une pour le liquide est fréquemment appliquée à des mélanges simples ou binaires.

Dans ce chapitre, nous allons présenter l'extension de cette approche à des systèmes multi-composants. Il s'est révélé lors de la mise en place de cette approche que cette extension est non triviale et impose des conditions de consistance entre les EOS individuelles de chaque phase et les équations d'équilibre. Ces conditions déterminent les classes d'EoS autorisées, c-à-d les EOS pouvant être utilisées pour décrire le comportement des phases et l'état d'équilibre. Nous avons développé une technique graphique (règle de Maxwell inversée) qui permet de déterminer la consistance d'un modèle choisi.

Cette approche permet d'obtenir des relations explicites pour les concentrations des phases des composants chimiques au lieu des algorithmes non linéaires traditionnellement utilisés pour (calculs flash). En tenant compte des forces capillaires, nous avons obtenu l'extension de la théorie de Kelvin "condensation capillaire" pour des systèmes multi-composants. Plusieurs exemples sont présentés à la fin de chapitre pour les mélanges binaires et ternaires idéaux et non idéaux en comparaison avec les données expérimentales.

1.1 Principe de l'approche : cas d'un fluide simple

La meilleure façon de présenter le principe de l'approche est d'analyser un fluide simple, contenant un seul composant chimique. Dans cette section, nous négligeons les phénomènes capillaires.

1.1.1 Relations d'équilibre

L'équilibre gaz-liquide peut être décrit en utilisant le système constitué d'une équation d'équilibre (1a) et de deux équations d'état (1b) et (1c) ayant la forme suivante :

$$\int_{P_{rg}}^{P_{eq}} v_g(P, T) dP + \mu_g(P_{rg}, T) = \int_{P_{rl}}^{P_{eq}} v_l(P, T) dP + \mu_l(P_{rl}, T), \quad (1.1a)$$

$$v_g = v_g(P, T), \quad (1.1b)$$

$$v_l = v_l(P, T) \quad (1.1c)$$

Où P représente la pression, T la température, v le volume molaire, μ le potentiel chimique, P_{rg} et P_{rl} sont des pressions de références arbitraires, P_{eq} la pression d'équilibre à une température T donnée. Les indices g et l correspondent à la phase gaz et la phase liquide respectivement.

Le Potentiel chimique, le volume du fluide ainsi que le volume molaire peuvent être définis à travers l'énergie de Gibbs comme suit :

$$\mu = \left(\frac{\partial G}{\partial N} \right)_{T,P}, \quad V = \left(\frac{\partial G}{\partial P} \right)_{T,N}, \quad v = \left(\frac{\partial V}{\partial N} \right)_{T,P} \quad (1.2)$$

Où N est le nombre de moles du fluide.

Démonstration de (1.1a) :

1°. Les conditions générales d'équilibre d'un fluide simple sans tenir compte des forces capillaires sont :

$$P_g = P_l \equiv P_{eq}, \quad T_g = T_l \equiv T, \quad \mu_g(P_{eq}, T) = \mu_l(P_{eq}, T) \quad (1.3)$$

2°. En utilisant la définition (1.2) et l'équivalence :

$$\left(\frac{\partial}{\partial P} \left(\frac{\partial G}{\partial N} \right)_{T,P} \right)_{T,N} = \left(\frac{\partial}{\partial N} \left(\frac{\partial G}{\partial P} \right)_{T,N} \right)_{T,P},$$

Nous obtenons :

$$\left(\frac{\partial \mu}{\partial P}\right)_{T,N} = \left(\frac{\partial V}{\partial N}\right)_{T,P} = v$$

Ce qui donne, après intégration, la relation explicite bien connue du potentiel chimique :

$$\mu(P, T) = \int_{P_r}^P v(\bar{P}, T) d\bar{P} + \mu(P_r, T) \quad (1.4)$$

3°. En substituant (1.4) dans (1.3) nous obtenons (1.1a).

Dans le système (1.1) les potentiels chimiques $\mu_g(P_{rg}, T)$ et $\mu_l(P_{rl}, T)$ sont connus pour les pressions de références P_{rg} et P_{rl} .

Donc pour toute T , Eq. (1.1a) représente une équation non-linéaire par rapport à l'inconnu P_{eq} , qui est la pression de coexistence gaz-liquide.

L'approche classique consiste à utiliser une seule et même EOS cubique pour toutes les phases. Nous proposons une nouvelle approche alternative qui consiste à utiliser une EOS différente pour chacune des phases : une pour le gaz et une autre pour le liquide.

1.1.2 Pseudo-liquide et pseudo-gaz

Dans le cadre de l'approche proposée, il est nécessaire d'introduire les définitions suivantes :

Le pseudo-liquide et le pseudo-gaz : sont des fluides hypothétiques, autorisés à exister pour toutes T et P , chacun d'eux étant défini uniquement par une EOS formelle (1.1b) ou (1.1c).

Cela signifie que les deux pseudo-phases peuvent coexister à toutes T et P , mais que ce genre de coexistence n'est pas prouvé par des conditions d'équilibre.

Les EOS de pseudo-gaz et pseudo-liquide sont représentées par les deux courbes *ADE* et *ABM* respectivement sur la figure 1.1.

La véritable coexistence gaz-liquide : elle correspond à des fluides définis par le système des deux EOS (1.1b) et (1.1c) et l'équation d'équilibre (1.1a) de telle sorte que ce système de trois équations peut avoir qu'une seule solution pour la pression de coexistence P_{eq} et les volumes molaires $v_{g,eq}$, $v_{l,eq}$ (pour une température fixe T), qui satisfont l'inégalité :

$$v_{g,eq} > v_{l,eq} \quad (1.5)$$

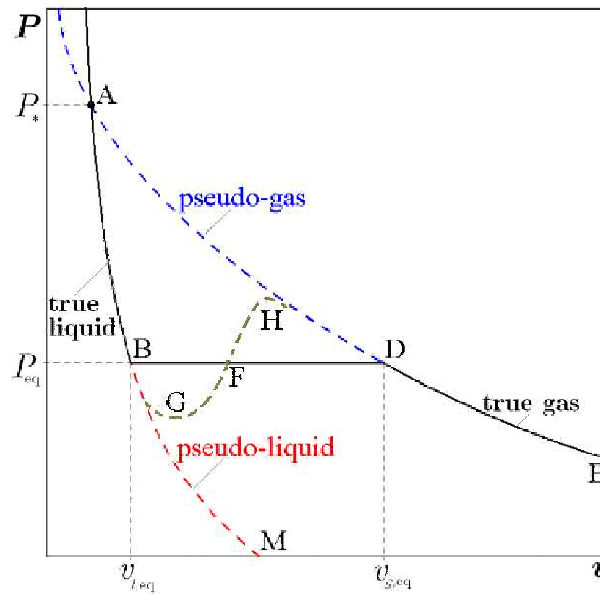


FIGURE 1.1 – Illustration du concept des phases réelles et des pseudo-phases sur le diagramme $P - v$. (i) EOS individuelle de gaz (ABM), (ii) EOS individuelle de liquide(ADE), (iii) EOS cubique uniforme pour le gaz et le liquide (ABGFHDE).

Cela correspond à la ligne horizontale de Maxwell BD , caractérisée par les trois paramètres : P_{eq} , $v_{l,eq}$ et $v_{q,eq}$ sur Fig. 1.1.

Le véritable gaz et le véritable liquide : correspondent à des fluides déterminés uniquement par les EOS et existent en dehors du domaine de coexistence des deux phases, à savoir le véritable gaz correspond à : $v_g \geq v_{g,eq}$, tandis que le véritable liquide correspond à $v_l \leq v_{l,eq}$.

Dans Fig. 1.1 ceci correspond au segment DE pour le gaz et BA pour le liquide.

Les phases réelles et les pseudo-phases sont décrites par les mêmes EOS. Cela signifie qu'un pseudo-liquide peut être considéré comme l'extension continue de véritable liquide dans le domaine des volumes molaires supérieurs à $v_{l,eq}$, alors que le pseudo-gaz est l'extension du véritable gaz dans le domaine des volumes molaires inférieurs à $v_{g,eq}$.

1.1.3 Le point pseudo-critique

Deux courbes $v(P)$ représentant deux EOS différentes peuvent se croiser en un point (A), qui correspond à la pression P_* . En ce point, la pression, la température et le volume du gaz et du liquide sont trivialement identiques, puisque la différence entre les deux phases disparaît. Par

conséquent, les potentiels chimiques au point A sont identiques. Il est facile de le prouver en utilisant la propriété d'homogénéité de l'énergie de Gibbs.

En effet, l'énergie libre de Gibbs dépend de la pression du fluide P , de la température T , du volume V et du nombre de moles N : $G = G(P, T, V, N)$. Étant une fonction additive du nombre de particules, l'énergie satisfait la condition d'homogénéité suivante :

$G(P, T, \lambda V, \lambda N) = \lambda G(P, T, V, N)$, pour tout λ . En choisissant $\lambda = 1/N$, on obtient :

$$G\left(P, T, \frac{1}{N}V\right) = \frac{1}{N}G(P, T, V, N) \quad (1.6)$$

Le théorème d'Euler pour les fonctions homogènes stipule que :

$$\frac{1}{N}G(P, T, V, N) = \frac{\partial G(P, T, V, N)}{\partial N} \equiv \mu, \quad \text{et} \quad \frac{1}{N}V(N) = \frac{\partial V(N)}{\partial N} \equiv v \quad (1.7)$$

Il s'en suit de (1.6) et (1.7) que $\mu = \mu(P, T, v)$.

Ainsi, pour des valeurs fixes de P, T, v , le potentiel chimique μ d'un fluide est constant, indépendamment de son état de phase. Donc, au point P_* , on a : $\mu_g = \mu_l$.

Le point A sera appelé le point pseudo-critique. La pression $P_*(T)$ est la pression pseudo-critique, définie comme étant la solution de l'équation suivante :

$$v_l(P_*, T) = v_g(P_*, T) \quad (1.8)$$

Dans le cas général deux courbes monotone décroissante peuvent se croiser en plusieurs points : $P_*^I, P_*^{II}, \dots$. Tous seront appelés points pseudo-critiques.

Si nous sélectionnons comme pressions de référence : $P_{rg} = P_{rl} = P_*$, alors les potentiels chimiques $\mu_g(P_*, T)$ et $\mu_l(P_*, T)$ doivent être identiques. Pour cette raison, l'équation d'équilibre (1.1) peut être simplifiée comme suit :

$$\int_{P_*}^{P_{eq}} \left[v_g(P, T) - v_l(P, T) \right] dP = 0 \quad (1.9)$$

Cette équation représente une équation algébrique par rapport à la pression d'équilibre P_{eq} .

La signification géométrique du côté gauche de cette équation est la surface délimitée par les deux courbes $v_g(P)$ et $v_l(P)$ (pour une T fixe) et les deux pressions : pseudo-critique P_* et de coexistence gaz-liquide P_{eq} .

1.1.4 Cas d'une EOS uniforme pour les deux phases

Dans le cas classique, l'EOS est identique pour le liquide et le gaz. Alors tout point satisfait (1.8) et est pseudo-critique. Il est facile de montrer que dans ce cas, l'équation d'équilibre (1.9) est indépendante du choix de P_* .

Soit P_* une pression de référence arbitraire située loin de la zone diphasique.

Transformons l'intégrale $\int v(P)dP$ dans (1.9) en $\int P(v)dv$. L'intégration par parties de (1.9) donne :

$$vP \Big|_{v_* P_*}^{v_{g,eq} P_{eq}} - \int_{v_*}^{v_{g,eq}} P(v) dv = vP \Big|_{v_* P_*}^{v_{l,eq} P_{eq}} - \int_{v_*}^{v_{l,eq}} P(v, T) dv$$

Ou

$$\begin{cases} (v_{g,eq} - v_{l,eq}) P(v_{g,eq}) = \int_{v_{l,eq}}^{v_{g,eq}} P(v) dv, \\ P(v_{g,eq}) = P(v_{l,eq}) \end{cases} \quad (1.10)$$

qui sagit d'un système de deux équations non linéaires pour deux volumes molaires d'équilibre : $v_{g,eq}$ et $v_{l,eq}$.

Une EOS cubique, comme celle de Van-der-Waals : $P = \frac{RT}{v-b} - \frac{a}{v^2}$ avec deux coefficients empiriques a et b , est une courbe $P(v)$ qui a , en dessous du point critique, la forme représentée sur la figure 1.2. Donc, l'existence de la solution non triviale de la première équation dans (1.10) peut être interprétée graphiquement comme le montre la Fig. 1.2. Le côté gauche de cette équation est la surface rectangulaire $ABDE$. Le côté droit correspond évidemment à la même surface si les surfaces grises AMC et CNB s'éliminent l'une l'autre, c.à.d sont identiques, ce qui détermine l'emplacement unique de la ligne de Maxwell AB et la pression d'équilibre P_{eq} .

Cette technique graphique est connue sous le nom La règle de Maxwell.

La règle de Maxwell détermine la condition mathématique nécessaire du comportement de la courbe $P(v)$, qui garantit l'existence de l'état diphasique : elle doit être non-monotone avec M minimums et M maximums et $M \geq 1$. Seulement dans ce cas, le système (1.10) a une solution non triviale. Cette propriété de la courbe $P(v)$ représente *la condition de consistence* entre l'EOS et l'équation d'équilibre. Cette propriété est vérifiée pour une EOS cubique par rapport au volume.

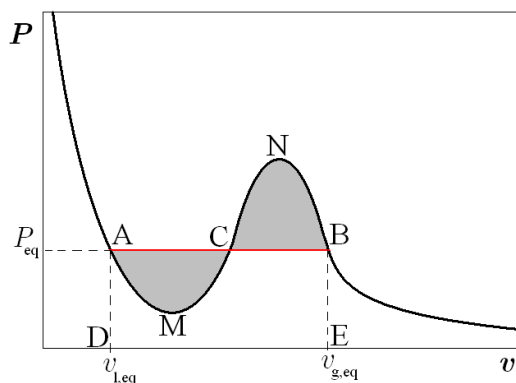


FIGURE 1.2 – Technique graphique de la détermination de la ligne d'équilibre, dans le cas d'une EOS uniforme (cubique)

1.1.5 Les conditions de consistance d'un modèle dissymétrique : La règle de Maxwell inversée

Pour un modèle dissymétrique, la technique d'application de l'équation d'équilibre (1.9) et la condition de consistance est différente et fondée sur l'utilisation de la pression pseudo-critique P_* .

L'existence de l'état diphasique impose des contraintes sur la forme des deux EOS individuelles, qui doivent garantir la solvabilité de l'équation (1.9). Nous appellerons ces conditions *les conditions de solvabilité* de l'équation d'équilibre ou *les conditions de consistance* entre l'équation d'équilibre et les EOS.

Les conditions nécessaires de solvabilité peuvent être formulées d'une manière géométrique, en tenant compte du fait que l'intégrale dans (1.9) représente la surface entre les deux courbes $v_g(P)$ et $v_l(P)$ (pour T fixe), comme indiqué dans la Fig. 1.3-a. Pour que cette surface soit nulle, il doit y avoir au moins une partie positive et une partie négative, et les surfaces de ces deux parties doivent être identiques. Ainsi, on obtient les conditions nécessaires et suffisantes de solvabilité (ou de consistance) :

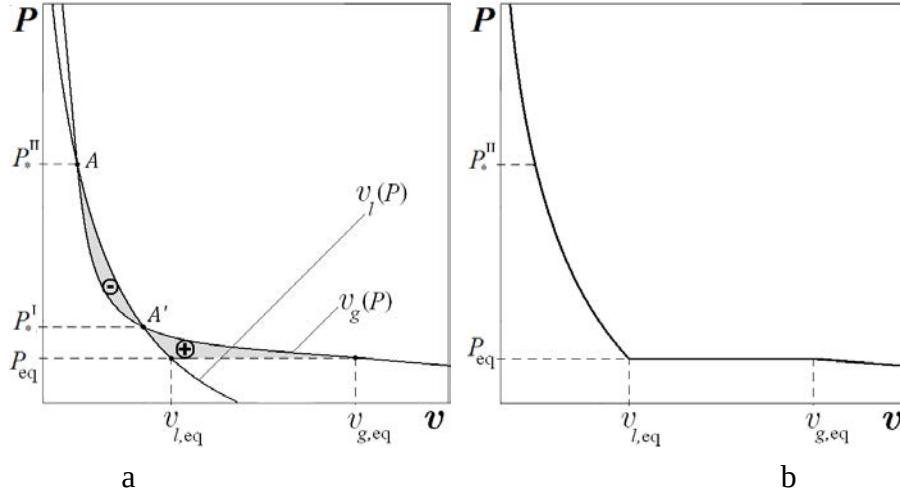


FIGURE 1.3 – (a) Technique graphique pour déterminer les conditions de consistance : la surface grise correspond à l'intégrale dans Eq. (1.9) ; (b) Le diagramme de phase résultant

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Pour une } T \text{ fixe :} \\ \bullet \text{ l'équation } v_g(P) - v_l(P) = 0 \quad (a) \\ \quad \text{a deux solutions positives différentes } P_*^I \text{ and } P_*^{II} \text{ (} P_*^{II} > P_*^I > 0 \text{)}; \\ \bullet v_g < v_l, \quad \forall P \in (P_*^I, P_*^{II}) \quad (b) \end{array} \right\} \quad (1.11)$$

La première condition signifie que les courbes $v_g(P)$ et $v_l(P)$ se croisent deux fois (aux points A et A' dans la Fig. 1.3). Cela est nécessaire pour obtenir deux parties de la surface avec des signes différents.

La deuxième condition détermine la position correcte de ces deux courbes l'une par rapport à l'autre, afin d'assurer l'inégalité (1.5).

Donc l'équation d'équilibre (1.9) prend la forme :

$$\int_{P_*^{II}}^{P_{eq}} [v_g(P, T) - v_l(P, T)] dP = 0 \quad (1.12)$$

Si les conditions (1.11) sont remplies, alors la pression d'équilibre P_{eq} sera déterminée de telle sorte que les parties négative et positive de la surface entre les courbes $v_g(P)$ et $v_l(P)$ et les points P_*^{II} et P_{eq} soient identiques .

Dans le cas général, les courbes $v_g(P)$ et $v_l(P)$ peuvent se croiser à un certain nombre de points supérieur à deux. Mais pour assurer la solvabilité, il est suffisant d'avoir seulement deux points.

A partir de cette technique graphique, il s'en suit que **l'équilibre diphasique est impossible pour un liquide incompressible**. En effet, toute fonction monotone $v_g(P)$ ne peut pas croiser deux fois la ligne verticale $v_l = \text{const.}$

A partir de ces principes nous avons déduit la technique graphique suivante, qui peut être facilement utilisée pour détecter la consistance (ou non) du système des EOS sélectionnées et pour déterminer la pression d'équilibre :

- (i) Deux EOS doivent être sélectionnées de manière à ce que leurs graphiques P versus v satisfassent les conditions suivantes :
 - les deux fonctions $P(v)$ pour le gaz et le liquide doivent être monotones et uniques en chaque point v ;
 - elles se croisent en deux points (pressions) différents P_*^I et P_*^{II} (Fig. 1.3) ;
 - la courbe $P(v)$ du pseudo gaz doit être située sur la gauche de celle du pseudo-liquide entre P_*^I et P_*^{II} (condition (1.11)-b).
- (ii) La pression d'équilibre P_{eq} est déterminée graphiquement de telle sorte que la surface limitée par les deux courbes entre les points P_*^I et P_{eq} (Fig. 1.3) soit identique à la surface entre les points P_*^I et P_*^{II} .

Dans le cas classique examiné dans la section précédente, les équations d'équilibre (1.10) sont résolues par rapport à deux volumes différents $v_{l,eq}$ et $v_{g,eq}$. Dans le cas présent, la solution de (1.9) est recherchée directement par rapport à la valeur unique de la pression P_{eq} .

Les surfaces graphiques qui s'éliminent les unes les autres sont situées le long de l'axe P (Fig. 1.3-a) et non le long de l'axe v comme dans la technique classique, on obtient donc « **la règle de Maxwell inversée** ».

1.1.6 Consistance d'un liquide exponentiel et un gaz idéal

Un modèle qui satisfait les conditions de consistance est celui d'un gaz parfait et un liquide exponentiel qui représente une équation théorique basée sur l'hypothèse que le coefficient de compressibilité est indépendant de la pression :

$$v_g = \frac{RT}{P}, \quad v_l = v_{l0} e^{-\beta(P-P_0)} \quad (1.13)$$

Où R est la constante universelle des gaz, P_0 est une pression arbitraire constante (différente de P_r dans (1.1) et (1.4)), tandis que $v_{l0}(T)$ et $\beta(T)$ sont deux paramètres empiriques du modèle qui déterminent le comportement du diagramme de phase. Le paramètre β a la signification d'un coefficient de compressibilité isotherme. En effet, l'équation exponentielle résulte immédiatement de la définition du coefficient de compressibilité : $\beta \equiv -\frac{1}{v} \frac{dv}{dP}$, si on suppose que $\beta = \beta(T)$, ce qui est valable loin du point critique.

On va prouver que le modèle choisi (1.13) est auto-consistant, si ses paramètres vérifient les conditions suivantes :

$$0 < a < e^{-1} = 0.37, \quad a = \beta P_{\oplus}, \quad P_{\oplus} \equiv \frac{RT}{v_{l0}} e^{-\beta P_0} \quad (1.14)$$

Donc, l'équation (1.11)-a prend la forme adimensionnelle suivante en fonction de la pression adimensionnelle $p \equiv P/P_{\oplus}$:

$$p = e^{ap} \quad (1.15)$$

Dans (1.14), la valeur ($a = e^{-1}$) correspond au point critique formel (voir section 1.2.3), tandis que la valeur ($a = 0$) désigne le liquide incompressible.

Fig. 1.4 représente le graphique des côtés gauche et droit de (1.15).

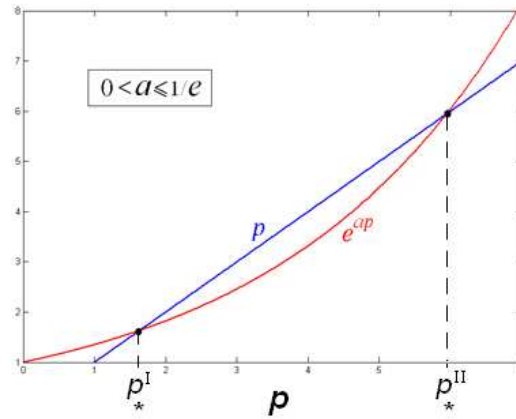


FIGURE 1.4 – Solvabilité de (1.15)

Cette équation a une seule solution lorsque la fonction exponentielle $y_1 = e^{ap}$ croise la ligne droite $y_2 = p$, ce qui signifie que les dérivées de y_1 et y_2 sont identiques $ae^{ap} = 1$. Cette équation et l'équation (1.15) déterminent deux valeurs : p et a :

$$a = e^{-1}, \quad \text{and} \quad p = e \quad (1.16)$$

Pour les petites valeurs de a la courbe $y_1 = e^{ap}$ franchit la ligne $y_2 = p$ en deux points p_*^I et p_*^{II} . Lorsque $a \rightarrow 0$, la première pression p_*^I tend vers 1 et la deuxième pression p_*^{II} tend vers l'infini. Cela donne la condition (1.14). Ainsi, pour ces valeurs de a , la condition (1.11)-a est satisfaite. Il est facile de montrer que (1.11)-b est également satisfaite.

Une fois que la pression pseudo-critique p_*^{II} est déterminée à partir de (1.15), la pression d'équilibre p_{eq} peut être calculé comme la solution de l'équation suivante obtenue à partir de (1.12) :

$$a \ln \frac{p_{eq}}{p_*^{II}} = e^{-ap_*^{II}} - e^{-ap_{eq}} \quad (1.17)$$

La valeur p_{eq} est la solution non triviale de cette équation, elle est différente de p_*^{II} .

Ainsi, pour une valeur de a donnée, on peut obtenir p_*^{II} et p_{eq} . Puisque nous connaissons les EOS de gaz et de liquide nous pouvons obtenir $v_{l,eq}$ et $v_{g,eq}$, et l'enveloppe du diagramme de phase (la ligne reliant les points de rosée et les points de bulle).

1.2 Détermination des coefficients de modèle

1.2.1 Technique générale d'ajustement des modèles dissymétriques

Comme indiqué dans la section 1.1.6, pour le liquide exponentiel et le gaz idéal, si nous connaissons les valeurs de $\beta(T)$ et $v_{l0}(T)$ (c.à.d le paramètre a), alors il est possible de déterminer la pression et les volumes d'équilibre. D'une manière similaire, il est possible de formuler le problème symétrique : pour déterminer les paramètres $\beta(T)$ et $v_{l0}(T)$ en utilisant l'information expérimentale sur la pression d'équilibre et les volumes des composants purs. Les modèles dissymétriques ajustés obtenus seront utilisés par la suite pour décrire les mélanges multi-composants sans ajustement supplémentaire.

Supposons que la pression d'équilibre $P_{eq}(T)$ et le volume molaire du liquide à l'équilibre $v_{l,eq}(T)$ sont des données expérimentales. L'objectif est de déterminer les fonctions $\beta(T)$ et $v_{l0}(T)$. Le paramètre P_0 est sélectionné de façon libre (dans les exemples ci-dessous, il a été choisi $P_0 = 100$ bars). Donc, le système d'équations (1.15), (1.17) et la deuxième équation dans (1.13) sont suffisantes pour déterminer β et v_{l0} à partir de P_{eq} et $v_{l,eq}$. Ce système sous forme adimensionnelle est donné par :

$$\begin{aligned}
 \beta P_{\oplus} \ln \frac{P_{\text{eq}}}{P_{\text{II}}^*} &= e^{-\beta P_{\text{II}}^*} - e^{-\beta P_{\text{eq}}}, \\
 \frac{P_{\text{II}}^*}{P_{\oplus}} &= e^{\beta P_{\text{II}}^*}, \\
 P_{\oplus} &= \frac{RT}{v_{l0}} e^{-\beta P_0}, \\
 v_{l,\text{eq}} &= v_{l0} e^{\beta P_0} e^{-\beta P_{\text{eq}}}
 \end{aligned} \tag{1.18}$$

En introduisant les nouvelles variables adimensionnelles :

$$\mathcal{Q} \equiv \beta P_{\text{eq}}, \quad \mathcal{P} \equiv \frac{P_{\text{II}}^*}{P_{\text{eq}}}, \quad \mathcal{S} \equiv \frac{P_{\oplus}}{P_{\text{eq}}}, \quad \xi \equiv \frac{RT}{v_{l,\text{eq}} P_{\text{eq}}}$$

On peut transformer le système (1.18) en une équation non linéaire qui détermine la fonction $\mathcal{P}(\xi)$, où ξ est un paramètre donné :

$$-\frac{\mathcal{P}}{\mathcal{P}-1} \ln \left(\frac{\mathcal{P}}{\xi} \right) \ln \mathcal{P} = 1 - \frac{\mathcal{P}}{\xi} \tag{1.19}$$

et une relation explicite pour la fonction $\mathcal{Q}(\xi)$:

$$\mathcal{Q} = \frac{1}{1 - \mathcal{P}(\xi)} \ln \left(\frac{\xi}{\mathcal{P}(\xi)} \right) \tag{1.20}$$

Preuve :

1. En éliminant $v_{l0}/v_{l,\text{eq}}$ de (1.18), on obtient :

$$-\mathcal{Q} \mathcal{S} \ln \mathcal{P} = e^{-\mathcal{Q} \mathcal{P}} - e^{-\mathcal{Q}}, \quad \mathcal{S} = \mathcal{P} e^{-\mathcal{Q} \mathcal{P}}, \quad \mathcal{S} = \xi e^{-\mathcal{Q}}$$

2. Eliminons $\mathcal{S}$:

$$\begin{aligned}
 -\mathcal{Q} \mathcal{P} \ln \mathcal{P} &= 1 - e^{\mathcal{Q}(\mathcal{P}-1)} \\
 \mathcal{P} e^{\mathcal{Q}(1-\mathcal{P})} &= \xi
 \end{aligned}$$

A partir de la deuxième équation, nous obtenons (1.20). En la remplaçant dans la première équation, on trouve (1.19).

Les fonctions $\mathcal{P}(\xi)$ et $\mathcal{Q}(\xi)$ sont universelles et ne dépendent pas des propriétés individuelles des composants chimiques.

La solution de (1.19) obtenue numériquement est représentée sur Fig. 1.5.

Pour sélectionner la première approximation de la solution itérative de (1.19), il est possible d'utiliser la grande approximation : $\mathcal{P} \approx \xi^{1.98}$.

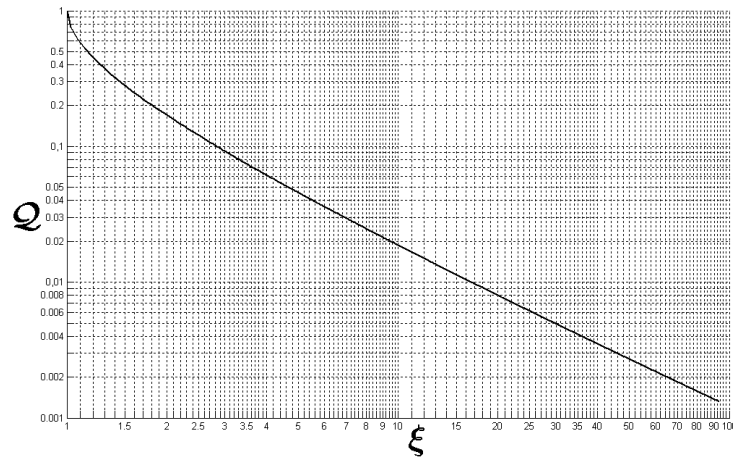


FIGURE 1.5 – La fonction $Q(\xi)$ définie par Eq. (1.19)

Notez que les valeurs limites de ces fonctions qui correspondent au point critique formel sont : $Q_{cr} = 1$, $\mathcal{P}_{cr} = 1$, $S_{cr} = e^{-1}$, $\xi_{cr} = 1$.

En utilisant Q on peut déterminer les paramètres $\beta(T)$ et $v_{l0}(T)$:

$$\beta(T) = \frac{Q(\xi)}{P_{eq}(T)}, \quad v_{l0} = v_{l,eq} e^{\beta(P_{eq}-P_0)} \quad (1.21)$$

Cette technique donne des bons résultats pour $T < 0.88T_{cr}$.

1.2.2 Exemple d'ajustement

Comme exemple de l'application de cette technique, nous présentons les résultats obtenus pour le décane pour quatre températures différentes : $T = \{297, 347, 397, 447\}$ K. Sa pression et sa température critiques sont : 2.11 MPa et 617.8 K. les données exactes sur la pression d'équilibre et le volume du liquide à l'équilibre ont été calculées en utilisant l'équation d'état de Peng-Robinson .

La valeur du paramètre ξ est calculée à partir de sa définition, le paramètre $\mathcal{P}$ est calculé comme la solution de l'équation (1.19) et le paramètre Q est calculé à partir de (1.20). Le coefficient de compressibilité β et le volume molaire de référence du liquide v_{l0} déterminés à partir de (1.21) sont :

$$\begin{aligned} \beta &= \{0.983 \cdot 10^{-8}; 1.440 \cdot 10^{-8}; 1.939 \cdot 10^{-8}; 2.142 \cdot 10^{-8}\} \text{ MPa}^{-1} \\ v_{l0} &= \{0.0003719; 0.0003875; 0.0004091; 0.0004467\} \text{ m}^3/\text{mol} \end{aligned}$$

Les résultats sont présentés sur Fig. 1.6.

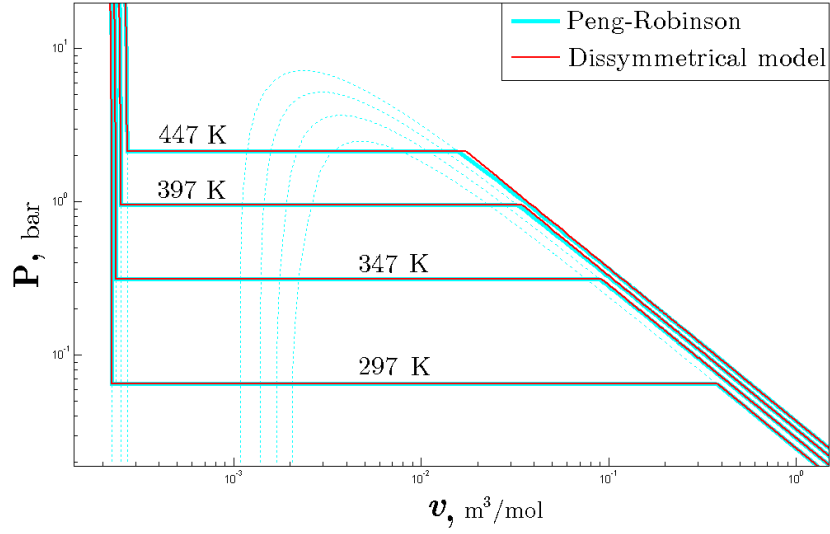


FIGURE 1.6 – Diagrammes de phase $P - v$ pour le decane en utilisant : le modèle dissymétrique (en rouge) et l’EOS de Peng-Robinson (en vert)

1.2.3 Ajustement au voisinage du point critique

La technique mise au point pour la détermination des paramètres donne des résultats insatisfaisants pour des températures proches du point critique. Dans ce domaine, de bien meilleurs résultats peuvent être obtenus si on utilise le volume de référence du liquide $v_{l0}(T)$ et la pression d’équilibre $P_{eq}(T)$ comme des paramètres connus. Ainsi, les paramètres inconnus du modèle dissymétrique sont $\beta(T)$ et $v_{l,eq}(T)$. Dans la technique proposée dans la section 1.2.1, le paramètre adimensionnel ξ est inconnu, Au lieu de cela, nous pouvons introduire deux nouveaux paramètres adimensionnels connus : $\zeta \equiv \frac{RT}{v_{l0}P_{eq}}$, $\eta \equiv \frac{P_0}{P_{eq}}$.

Il est facile d’obtenir le lien suivant entre ξ et ζ, η :

$$\xi = \zeta e^{\mathcal{Q}(1-\eta)} \quad (1.22)$$

Ainsi le système (1.19), (1.20) et (1.22) détermine trois fonctions : $\mathcal{P}(\zeta, \eta)$, $\mathcal{Q}(\zeta, \eta)$ et $\xi(\zeta, \eta)$.

Un exemple d’application de cette technique au voisinage du point critique est représenté sur Fig. 1.7 pour le heptane.

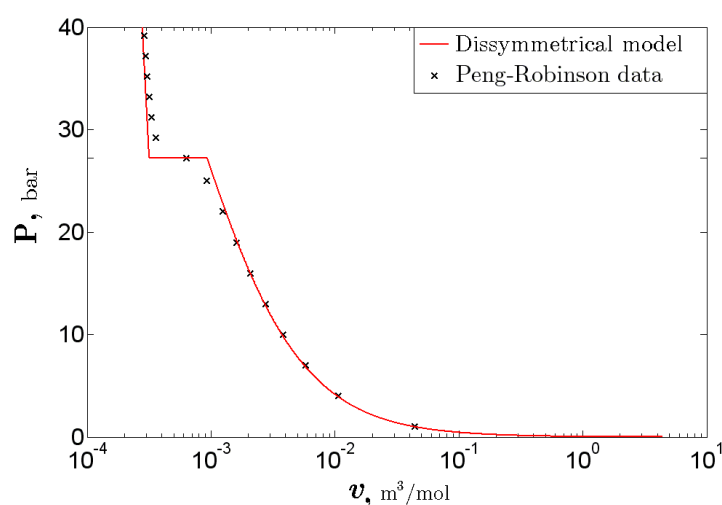


FIGURE 1.7 – Diagrammes de phase $P - v$ au voisinage du point critique pour le heptane en utilisant : le modèle dissymétrique (la ligne continue) et l'EOS de Peng-Robinson (les points)

Malgré l'approximation quantitative satisfaisante, les modèles dissymétriques ne peuvent pas être considérés comme un bon outil pour décrire le point critique. En effet, le véritable point critique est le point d'inflexion qui donne une dérivée nulle de la courbe réelle $P(v)$. Un tel comportement complexe est impossible à représenter par le point d'intersection des deux courbes monotones (pseudo-gaz et pseudo-liquide). L'approximation d'une telle courbe complexe par une courbe avec deux points de discontinuité comme on le voit sur Fig. 1.7 est la seule possibilité pour avoir un bon ajustement quantitatif.

Notez que pour les modèles dissymétriques, il est possible d'introduire un point critique formel, qui correspond à la situation où les surfaces positive et négative entre les deux courbes (EOS) disparaissent et deux points pseudo-critiques fusionnent en un seul point. A partir de la section 1.1.6, pour le gaz parfait et le liquide exponentiel, l'existence d'un seul point pseudo-critique correspond aux conditions (1.16). Cependant, l'introduction d'un tel point n'a pas d'importance ni pour la pratique ni pour la théorie.

1.3 Les conditions de consistance en tenant compte des forces capillaires

1.3.1 Relations générales d'équilibre

Lorsque les forces capillaires sont prises en compte, le problème de consistance des EOS individuelles avec l'équilibre entre deux phases devient légèrement différent. Les conditions d'équilibre pour un système d'un seul composant en présence de capillarité deviennent :

$$P_{g,eq} = P_{l,eq} + P_c; \quad P_c = \frac{2\sigma}{r}; \quad T_g = T_l \equiv T; \quad \mu_g(P_{g,eq}, T) = \mu_l(P_{l,eq}, T) \quad (1.23)$$

Où P_c est la pression capillaire, σ la tension superficielle, r le rayon de courbure moyen de l'interface gaz-liquide. En supposant que P_*^{II} est le deuxième point pseudo-critique, le système des équations d'équilibre (1.12) devient :

$$\int_{P_*^{II}}^{P_{g,eq}} (v_g(P, T) - v_l(P, T)) dP + \int_{P_{g,eq}-P_c}^{P_{g,eq}} v_l(P, T) dP = 0 \quad (1.24)$$

Pour une EOS de pseudo-gaz : $v_g = v_g(P_g, T)$ et de pseudo-liquide $v_l = v_l(P_l, T)$ données, l'équation (1.24) représente une équation non linéaire par rapport à la pression d'équilibre P_g .

La solvabilité de cette équation peut être interprétée graphiquement de la manière suivante. Le second terme de cette équation représente la surface grise sur la Fig. 1.8a. entre $P_{g,eq}-P_c$ et $P_{g,eq}$, il est toujours positif. Le premier terme représente la surface entre les deux courbes entre les points P_*^{II} et $P_{g,eq}$ composée de deux parties ; une partie positive (la surface jaune) située entre deux points pseudo-critiques, tandis que la seconde est négative (la surface bleue). La somme des surfaces grise et jaune doit être égale à la surface bleue, cela détermine le positionnement unique de la ligne de coexistence liquide-gaz ($P_{g,eq}$). En effet, en réduisant $P_{g,eq}$ nous pouvons augmenter de manière significative la surface bleue, alors que la grise augmente lentement, et que la surface jaune reste fixe. De cette manière, nous pouvons trouver la valeur de $P_{g,eq}$, pour laquelle la surface bleue devient suffisamment importante pour être égale à la somme des surfaces grise et jaune.

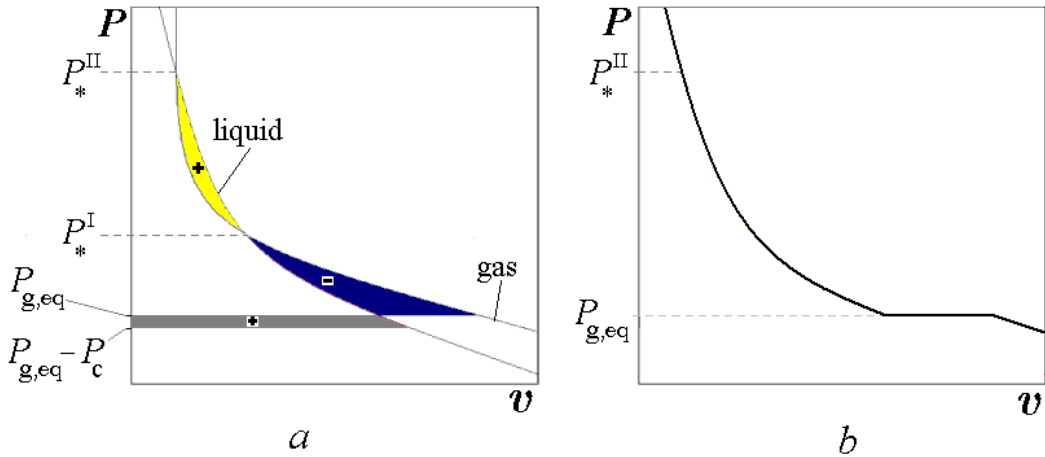


FIGURE 1.8 – La solution graphique de l'équation d'équilibre (1.24) « a ». Le diagramme de phase résultant P vs v « b ».

Formellement, dans ce cas, la consistance peut être satisfaite même avec un seul point d'intersection

entre les EOS de pseudo-liquide et pseudo-gaz. C'est le cas d'un liquide incompressible et un gaz parfait, pour lequel la ligne verticale $v_l = \text{const}$ coupe la courbe hyperbolique du gaz parfait en un seul point P_*^I . Lorsque le coefficient de compressibilité tend vers zéro, le deuxième point pseudo-critique P_*^{II} tend progressivement vers l'infini, mais la zone jaune devient de plus en plus mince ou disparaît complètement. Donc, la solvabilité de l'équation (1.24) signifie l'équivalence entre les surface grise et bleue, ce qui est possible de réaliser. Toutefois, lorsque P_c tend vers zéro l'équilibre gaz-liquide correspond au point pseudo-critique.

1.3.2 Condensation capillaire : équation de Kelvin

Prenons le cas d'un gaz parfait et un liquide incompressible selon Kelvin. Comme mentionné précédemment. L'EOS du liquide incompressible est la ligne verticale $v_l = \text{const}$ qui coupe toujours la courbe hyperbolique du gaz parfait, ce qui donne pour le point pseudo-critique :

$$v_l = \frac{RT}{P_*^I} \quad (1.25)$$

Donc, à partir de (1.24) on obtient par intégration : $RT \ln \frac{P_{g,eq}}{P_*^I} = v_l (P_{l,eq} - P_*^I)$

Cela donne :

$$\ln p = p - Ca - 1 \quad (1.26)$$

Où $p \equiv P_{g,eq}/P_*^I$, le nombre capillaire $Ca \equiv 2\sigma/(rP_*^I)$.

Cette équation a deux solutions non triviales, comme le montre la Fig. 1.9 où les côtés gauche et droit de l'équation (1.26) sont représentés. Elles correspondent aux points A et B. (Point $p = 1$ sur l'axe horizontal correspond à $P = P_*^I$).

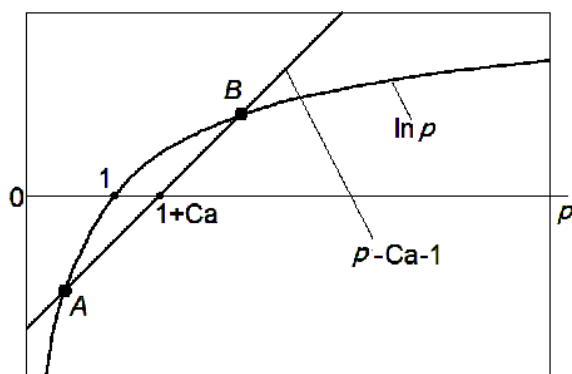


FIGURE 1.9 – Interprétation graphique de l'équation (1.26). La solution physique non triviale correspond au point A

Le point B n'a pas de sens physique puisque la valeur correspondante est supérieure à un $p_B > 1$, donc $P_{g,eq} > P_*^l$. Cela signifie que le volume molaire du liquide coexistant (à l'équilibre) est plus grand que celui du gaz ($v_{g,eq} = RT/P_{g,eq}$), ce qui est physiquement impossible. Donc la vraie solution correspond au point A .

On obtient la pression caractéristique P_A qui est inférieure à P_*^l pour laquelle le véritable gaz et le véritable liquide peuvent coexister. Ainsi le diagramme de phase prend la forme représentée sur Fig.1.8-b.

D'après Kelvin, pour une interface gaz-liquide plane, la pression capillaire est nulle, donc (1.26) donne : $\ln p = p - 1$, ce qui a une solution unique $p = 1$. Par conséquent, on peut considérer la pression $P_{g,eq} = P_*^l$ comme la pression de coexistence du gaz-liquide pour une capillarité nulle.

Lorsque la pression du gaz est proche de P_*^l , ou $p \rightarrow 1$ (c-à-d la capillarité est suffisamment faible), donc $\ln p \approx -Ca$, ou

$$\frac{P_{g,eq}}{P_*^l} \approx \exp\left(\frac{2\sigma}{rP_*^l}\right) = \exp\left(\frac{2v_l\sigma}{rRT}\right) \quad (1.27)$$

Cette équation est l'équation de Kelvin pour la condensation capillaire, qui relie la pression du gaz sous interface gaz-liquide courbée avec la pression sous une interface plane.

Remarks :

1° La fonction exponentielle (1.27) devrait être étendue à une série de Taylor.

2° La relation (1.26) est plus générale que (1.27).

3° Le cas où Ca est positif correspond à une bulle de gaz dans un liquide, ou à un milieu poreux mouillé plus par le liquide que par le gaz. Le cas contraire correspond à $Ca < 0$. Cependant Eq. (1.26) n'a pas de solution si $Ca < 0$, comme dans le cas où la ligne droite $p - Ca - 1$ est placé sous la courbe logarithmique dans la figure. 1.9. Cela signifie que des gouttelettes du liquide ne peuvent pas se former dans un gaz et que les deux phases sont donc instables.

1.4 Équilibre de phases des systèmes multi-composants

Supposons que le fluide soit constitué de " n " composants chimiques présents dans le gaz et le liquide. L'équilibre gaz-liquide serait maintenant de déterminer la composition de chaque phase et pas seulement la pression et les volumes d'équilibre.

L'exposant " k " correspond au composants chimiques ; l'exposant " $pure$ " se réfère à un composant considéré à l'état pur dans les mêmes conditions de pression et température que le mélange ; l'indice " eq " représente l'équilibre gaz-liquide. Les variables qui seront utilisées par la suite sont définies ci-après :

- c_{α}^k est la fraction molaire du composant k dans la phase α , qui sera aussi appelée « la concentration de phase » ;
- C^k est la fraction molaire du composant k dans le fluide entier, qui sera aussi appelée "concentration totale" ;
- μ_{α}^k est le potentiel chimique du composant k dans la phase α ;
- $\mu^{k,ideal}$ est le potentiel chimique du composant k dans le mélange si le mélange se comporte comme un gaz parfait ;
- $\mu_{pure}^{k,ideal}$ est le potentiel chimique du composant pur k s'il se comporte comme un gaz parfait ;
- $P_{g,eq}$ et $P_{l,eq}$ sont les pressions d'équilibre du gaz et du liquide respectivement ;
- P_c est la pression capillaire ;
- N_{α}^k est le nombre de moles de composant k dans la phase α ;
- V_{α} est le volume de la phase α ;
- $v_{\alpha}^k \equiv \frac{\partial V_{\alpha}}{\partial N_{\alpha}^k}$ est le volume molaire du composant k dans la phase α ;
- $v_{\alpha} \equiv \frac{\partial V_{\alpha}}{\partial N_{\alpha}}$ est le volume molaire total de la phase α ;
- $P_{*}^{I,k}$ and $P_{*}^{II,k}$ sont deux pressions pseudo-critiques du composant pur k ;
- P_{eq}^k est la pression de coexistence gaz-liquide pour le composant pur k ;
- $v_{g,eq}^{k,pure}$ est le volume molaire du composant pur k dans le gaz à l'équilibre ;
- $v_{l,eq}^{k,pure}$ est le volume molaire du composant pur k dans le liquide à l'équilibre ;
- γ^k est le coefficient d'activité.

1.4.1 Équations d'équilibre

Nous allons utiliser les équations d'équilibre d'un système multi-composants sous la forme suivante :

$$\int_0^{P_{g,eq}} (v_g^k - v_g^{k,pure}) dP - \int_0^{P_{l,eq}} (v_l^k - v_l^{k,pure}) dP + RT \ln \frac{c_g^k}{c_l^k} +$$

$$\int_{P_*^{II,k}}^{P_{g,eq}} v_g^{k,pure} dP - \int_{P_*^{II,k}}^{P_{l,eq}} v_l^{k,pure} dP = 0, \quad k = 1, \dots, n \quad (1.28a)$$

$$V_g = V_g(P_g, T, N_g^1, \dots, N_g^n); \quad (1.28b)$$

$$V_l = V_l(P_l, T, N_l^1, \dots, N_l^n); \quad (1.28c)$$

$$P_g = P_l + P_c(T, c_g^1, \dots, c_g^n, c_l^1, \dots, c_l^n) \quad (1.28d)$$

$$\sum_{k=1}^n c_g^k = 1, \quad \sum_{k=1}^n c_l^k = 1 \quad (1.28e)$$

Eq.(1.28a) est obtenue à partir de l'équivalence entre les potentiels chimiques, les équations (1.28b) et (1.28c) sont deux EOS et Eq. (1.28d) est l'équation d'équilibre capillaire. La preuve de (1.28a) est donnée dans l'ANNEX A.

Les volumes molaires v_i^k sont définis si les EOS (1.28b) et (1.28c) sont données, la pression capillaire P_c est considérée comme une fonction connue de tous ses arguments, les paramètres individuels des composants purs tels que les pressions pseudo-critiques $P_*^{II,k}$ sont les valeurs connues. la température est également fixée. Ainsi, le système de n d'équations (1.28a) contient $2n - 1$ variables inconnues : $2n - 2$ concentrations de phase c_g^k et c_l^k (en raison de (1.28e)), et une pression d'équilibre $P_{g,eq}$. Un tel système est non fermé et contient $n - 1$ variables indépendantes. Nous les sélectionnons comme P_{geq} et $n - 2$ concentrations de phases appelés indépendante. Ainsi, le système (1.28b) détermine n autres concentrations comme des fonctions de $P_{g,eq}$ et $n - 2$ concentrations de phase indépendantes.

Un système fermé qui a une solution unique peut être obtenu si nous complétons (1.28a) par n équations de bilan de masse :

$$C^k \equiv c_g^k S_g + c_l^k (1 - S_g), \quad k = 1, \dots, n \quad (1.29)$$

Où S_g est la fraction molaire du gaz. Les concentrations totales C^k devraient être connues a priori.

Ainsi, le système de $2n$ équations (1.28a) et (1.29), contenant $2n - 2$ concentrations de phase, une pression $P_{g,eq}$ et une saturation S_g comme variables inconnues, est fermé. Ainsi, pour un mélange de n -composant, la pression d'équilibre $P_{g,eq}$ dépend des concentrations totales C^k . Pour le cas de deux composants, nous n'avons qu'une seule valeur indépendante C^1 .

La consistance du système (1.28) est assurée si les conditions de consistance (1.11) sont vérifiées

pour tous les composants purs. Nous supposons que tous les diagrammes de phase individuels pour les composants purs sont bien ajustés aux données expérimentales en appliquant la technique décrite dans la section 1.2.

1.4.2 Diagramme de phase d'un fluide multi-composant

Le comportement attendu des diagrammes de phase des mélanges est facilement révélé par les équations d'équilibre (1.28a). Prenons un mélange binaire (le composant 1 est léger et le composant 2 est lourd) qui satisfait la condition du mélange idéal à la fois dans le liquide et dans le gaz (voir le paragraphe 1.4.4), alors $v_g^k = v_g^{k,\text{pure}}$ et $v_l^k = v_l^{k,\text{pure}}$. le système (1.28a) devient :

$$\underbrace{RT \ln \frac{c_g^k}{c_l^k}}_A + \underbrace{\int_{P_*^{II,k}}^{P_{g,\text{eq}}} (v_g^{k,\text{pure}} - v_l^{k,\text{pure}}) dP}_B + \underbrace{\int_{P_{g,\text{eq}} - P_c}^{P_{g,\text{eq}}} v_l^{k,\text{pure}} dP}_C = 0 \quad (1.30)$$

En comparant avec l'équation similaire pour les composants purs (1.24) on voit que la présence du nouveau terme A perturbe l'équilibre entre les termes B et C . Comme il a été expliqué pour l'équation (1.24), la somme $B + C$ représente graphiquement la somme d'une surface négative représentée sur Fig.1.8-a en bleu et deux surfaces positives (jaune et grise). Le terme A est aussi positif pour le composant léger, et augmente la contribution des surfaces positives. Pour équilibrer leur rôle, la surface négative bleue doit devenir plus grande que pour le composant léger pur. Cela signifie que la pression d'équilibre du mélange sera plus petite que celle de composant léger pur. De la même façon, il est possible de montrer qu'elle sera plus grande que la pression d'équilibre pour le composant lourd pur. Comme la pression d'équilibre d'un mélange $P_{g,\text{eq}}$ dépend de la concentration totale C^1 , alors $P_{g,\text{eq}}$ varie d'une manière continue entre $P_{g,\text{eq}}^2$ et $P_{g,\text{eq}}^1$.

Le diagramme de phase correspondant est représenté sur Fig. 1.10 à une température fixe. La surface jaune $BHGF$ correspond aux différents états diphasiques qui sont différents pour les différentes valeurs de C^1 . Sur ce graphique, la courbe $ABHD$ est le diagramme du composant lourd pur ($C^1 = 0$), tandis que $EFGD$ est le diagramme du composant léger pur ($C^1 = 1$).

Sur ce diagramme, la courbe rouge $P_{g,\text{eq}}^b(C^1)$ représente la courbe de bulle, elle est calculée à partir de (1.28a) lorsque $c_l^k \equiv C^k$. On obtient alors le système de deux équations à deux inconnues : c_g^1 et $P_{g,\text{eq}}(C^1)$. Respectivement, la courbe bleue $P_{g,\text{eq}}^d(C^1)$ représente la courbe de rosée, elle est calculée à partir de (1.28a) lorsque $c_g^k = C^k$.

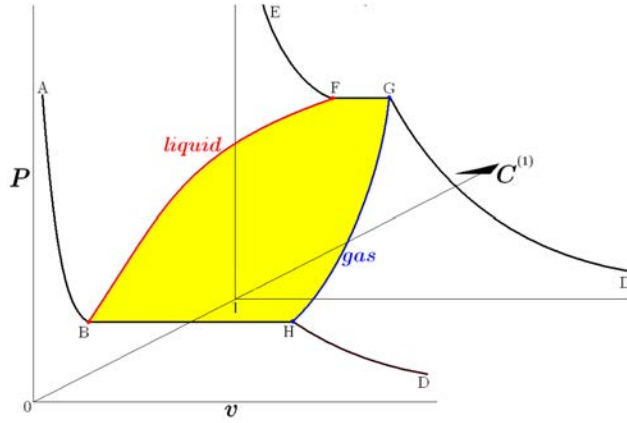


FIGURE 1.10 – Diagramme de phase tridimensionnel d'un mélange binaire : P est la pression, v le volume molaire, C^1 la fraction molaire du composant léger dans le mélange

1.4.3 Possibilité d'utiliser une même EOS d'un pseudo-gaz pour l'ensemble des composants purs

L'utilisation du même modèle de gaz parfait pour tous les composants individuels réduit de façon significative le nombre de paramètres qui doivent être ajustés. Vérifiant si une telle simplification est possible physiquement.

Ce cas est illustré sur Fig. 1.11 pour un fluide binaire sans tenir compte de la capillarité. Les deux courbes rouges correspondent à deux EOS pour deux composants purs dans un état pseudo-liquide, tandis que l'état pseudo-gaz est décrit par la même EOS de gaz parfait pour deux composants purs (la courbe bleue). Le composant 1 est le plus léger.

Les figures (a) et (b) illustrent la détermination graphique des pressions d'équilibre $P_{eq,1}$ et $P_{eq,2}$ suivant les équations d'équilibre des composants purs. La pression $P_{eq,1}$ est déterminée de telle sorte que la surface A soit égale à la surface B. La pression $P_{eq,2}$ est déterminée de telle sorte que la surface C soit égale à la surface D. Les résultats de ces constructions sont :

$$P_{eq}^2 < P_{eq}^1, \quad v_{g,eq}^2 > v_{g,eq}^1, \quad v_{l,eq}^2 > v_{l,eq}^1$$

Ce qui est correcte physiquement. en effet, la pression d'équilibre doit être plus faible pour le composant le plus lourd, tandis que les volumes molaires d'équilibre doivent être plus petits pour le composant léger.

En particulier, cela signifie que l'EOS d'un gaz parfait peut être utilisée pour deux ou plusieurs composants chimiques à l'état pur.

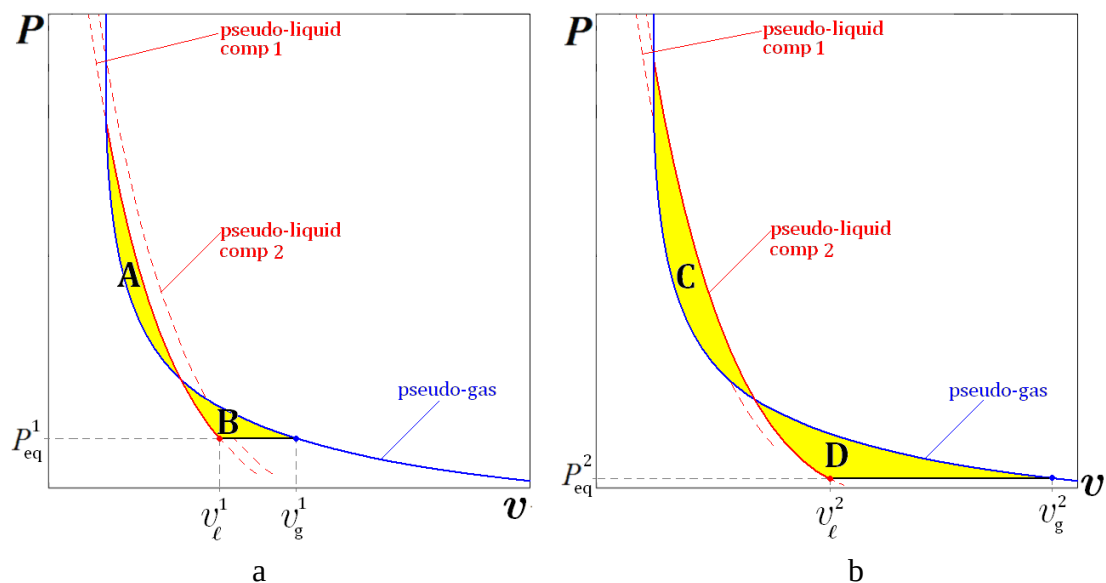


FIGURE 1.11 – Exemple de consistance d’une même EOS de pseudo-gaz pour l’ensemble des composants : détermination graphique de la pression d’équilibre $P_{eq,1}$ (a) et $P_{eq,2}$ (b)

1.4.4 Modèles des mélanges gazeux et liquides

L’EOS d’un mélange monophasique doit tenir compte de deux propriétés principales :

- la *compressibilité* : la dépendance du volume de la pression et de la température pour une composition fixe ;
- la *règle des mélanges* : la dépendance du volume de la composition de phase pour P, T fixes.

Nous allons considérer deux catégories de mélange : d’une part le mélange idéal pour la phase gazeuse, et d’autre part le mélange non-idéal pour la phase liquide basée sur l’expression NRTL (Non Random Two Liquid) pour l’énergie d’excès [16].

- Le mélange idéal suppose que le volume de mélange est la somme des volumes des composants purs prises dans les mêmes conditions P, T que le mélange. De cette définition, il est possible d’obtenir la propriété suivante pour une phase idéale α : $v_{\alpha}^k = v_{\alpha}^{k,pure}$ pour tout composant k (les définitions des variables sont données au début de la section 1.4).
- L’équation NRTL est l’une des méthodes les plus populaires et efficaces pour décrire un mélange non idéal. Ce modèle suppose que même dans les mélanges multi-composants, les interactions entre les molécules puissent être considérées comme des interactions deux à deux. Par conséquent, le modèle du système multi-composant ne contient que des paramètres d’ajustement binaires. L’équation NRTL est capable de décrire efficacement le comportement de différents mélanges, y compris ceux de nature hautement non-idéale.

Pour un mélange de n composants, l’équation NRTL est la suivante :

$$G^e = RT \sum_{i=1}^n N_i^j \frac{\sum_{j=1}^n c^j \tau_{ji} E_{ji}}{\sum_{j=1}^n c^j E_{ji}} \quad (1.31)$$

Où G^e correspond à l'énergie d'excès de Gibbs par rapport à celle d'un mélange idéal. Les autres paramètres sont définis comme suit :

$$\tau_{ji} = \frac{g_{ji} - g_{ii}}{RT}, \quad E_{ji} = e^{-\sigma_{ji} \tau_{ji}}, \quad (\sigma_{ji} = \sigma_{ji}, \quad \tau_{jj} = 0) \quad (1.32)$$

Où τ_{ji} et σ_{ji} sont des paramètres d'interaction adimensionnels et ajustables, g_{ij} est le potentiel caractéristique de l'interaction $i - j$, le paramètre σ est lié au mouvement non-aléatoire de la molécule dans le mélange. Le traitement des données expérimentales d'un grand nombre de systèmes binaires indique que σ varie entre 0,20 et 0,47.

Ainsi, nous pouvons introduire le volume d'excès V^e qui tient compte de la non-idéalité :

$$V = \sum_{k=1}^n V^{k,\text{pure}} + V^e \quad (1.33)$$

Où $V^{k,\text{pure}}$ est le volume occupé par le composant k à l'état pur dans les mêmes conditions de P, T . Pour un mélange idéal : $V^e \equiv 0$.

Selon la définition de l'énergie de Gibbs, le volume V^e est relié à l'énergie G^e par : $V^e = \partial G^e / \partial P$.

Ce qui donne les résultats suivants pour le volume molaire à partir de (1.33) :

$$v^k = v^{k,\text{pure}} + \frac{\partial}{\partial P} \left(\frac{\partial G^e}{\partial N^k} \right) \quad (1.34)$$

1.4.5 Le modèle d'un gaz parfait et un liquide décrit par l'équation NRTL

On considère un mélange liquide décrit par l'équation NRTL et un mélange gazeux idéal ($v_g^k = v_g^{k,\text{pure}}$). En appliquant les relations (1.34) pour la phase liquide, on obtient les équations d'équilibre suivantes à partir de (1.28a) :

$$\int_{P_*^{\text{II},k}}^{P_{g,\text{eq}}} v_g^{k,\text{pure}} dP - \int_{P_*^{\text{II},k}}^{P_{g,\text{eq}} - P_c} v_l^{k,\text{pure}} dP + RT \ln \frac{c_g^k}{c_l^k} - \left. \frac{\partial G_l^e}{\partial N_l^k} \right|_{P=P_{g,\text{eq}} - P_c} = 0, \quad k = 1, \dots, n$$

dans lesquelles nous avons introduit la pression capillaire définie par (1.28d).

Le terme $\left. \frac{\partial G_l^e}{\partial N_l^k} \right|_{P=0}$ disparaît. En effet, la valeur $\frac{\partial G_l^e}{\partial N_l^k}$ représente l'excédent de potentiel chimique par rapport à sa valeur pour un mélange idéal qui devient nulle à la pression zéro lorsque le pseudo-liquide est équivalent à un gaz parfait.

Pour l'excédent de potentiel chimique, la représentation par l'intermédiaire du nouveau paramètre thermodynamique appelé *le coefficient d'activité* du composant k , γ^k est fréquemment utilisé

$$\frac{\partial G^e}{\partial N^k} \equiv RT \ln \gamma^k$$

Pour le mélange idéal, les coefficients d'activité sont égales à 1.

Pour $k = 1, \dots, n$, les équations d'équilibre deviennent alors :

$$\int_{P_*^{\text{II},k}}^{P_{g,\text{eq}}} v_g^{k,\text{pure}} dP - \int_{P_*^{\text{II},k}}^{P_{g,\text{eq}} - P_c} v_l^{k,\text{pure}} dP + RT \ln \frac{c_g^k}{c_l^k} - RT \ln \gamma_l^k \Big|_{P=P_{g,\text{eq}}-P_c} = 0 \quad (1.35)$$

Utilisant (1.31) on obtient l'expression des coefficients d'activité en fonction des concentrations de phase :

$$\ln \gamma_l^k \equiv \frac{1}{RT} \frac{\partial G_l^e}{\partial N_l^k} = \frac{\sum_{j=1}^n c_l^j \tau_{jk} E_{jk}}{\sum_{m=1}^n c_l^m E_{mk}} + \sum_{i=1}^n \frac{c_l^i E_{ki}}{\sum_{m=1}^n c_l^m E_{mi}} \left(\tau_{ki} - \frac{\sum_{j=1}^n c_l^j \tau_{ji} E_{ji}}{\sum_{m=1}^n c_l^m E_{mi}} \right) \quad (1.36)$$

1.5 Calcul d'équilibre pour un mélange multi-composant avec effet capillaire

1.5.1 Modèle d'équilibre - EOS de viriel pour le gaz et EOS exponentielle pour le liquide

Soit un composant pur en équilibre dont le comportement est représenté par une EOS d'un liquide exponentiel et une EOS de viriel pour la phase gazeuse :

$$v_g^{k,\text{pure}} = \frac{RT}{P} + v_{g0}^k, \quad v_l^{k,\text{pure}} = v_{l0}^k e^{-\beta_k(P-P_0^k)} \quad k = 1, \dots, n \quad (1.37)$$

Où $v_{g0}^{k,\text{pure}}$, v_{l0}^k , β_k et P_{0k} sont les paramètres du modèle qui déterminent le comportement de l'enveloppe du diagramme de phase. Ils sont sélectionnés pour répondre aux données expérimentales et satisfaire aux conditions de consistance imposées par l'enveloppe (section 1.2). Pour un gaz parfait $v_{g0}^{k,\text{pure}} \equiv 0$.

Les équations d'équilibre (1.35) deviennent :

$$RT \ln \frac{c_g^k}{c_l^k} + v_{g0}^k (P_{g,\text{eq}} - P_*^{\text{II},k}) + RT \ln \frac{P_{g,\text{eq}}}{P_*^{\text{II},k}} - RT \ln \gamma_l^k + \frac{v_{l0}^k}{\beta_k} \left[e^{-\beta_k(P_{g,\text{eq}}-P_c-P_0^k)} - e^{-\beta_k(P_*^{\text{II},k}-P_0^k)} \right] = 0, \quad k = 1, \dots, n \quad (1.38)$$

Dans lesquelles les pressions pseudo-critiques $P_{*}^{\text{II},k}$ sont les solutions des équations de consistance :

$$\frac{RT}{P_{*}^{\text{II},k}} + v_{g0}^k = v_{l0}^k e^{-\beta_k(P_{*}^{\text{II},k} - P_0^k)}, \quad k = 1, \dots, n \quad (1.39)$$

Chaque équation (1.39) a deux solutions ; et $P_{*}^{\text{II},k}$ correspond à la valeur maximale pour chaque équation.

Ces équations prennent la forme adimensionnelle suivante :

$$\ln \frac{c_g^k}{c_l^k} + \alpha_{gk} (p - p_*^k) + \ln \frac{p}{p_*^k} - \ln \gamma_l^k + \alpha_{lk} \left[e^{-\varepsilon_k(p - \text{Ca} - \omega_k)} - e^{-\varepsilon_k(p_*^k - \omega_k)} \right] = 0 \quad (1.40)$$

Où

$$\alpha_{gk} \equiv \frac{v_{g0}^k P_0^k}{RT}, \quad \alpha_{lk} \equiv \frac{v_{l0}^k}{\beta_k RT}, \quad \varepsilon_k \equiv \beta_k P_0^k, \quad p_*^k \equiv \frac{P_{*}^{\text{II},k}}{P_0^1}$$

$$\omega_k \equiv \frac{P_0^k}{P_0^1}, \quad \text{Ca} \equiv \frac{P_c}{P_0^1}, \quad p \equiv \frac{P_{g,\text{eq}}}{P_0^1}$$

1.5.2 Calculs d'équilibre pour un système binaire

Pour un mélange binaire, les équations d'équilibre (1.40) prennent la forme suivante :

$$\begin{cases} \ln \frac{c_g^1}{c_l^1} + \alpha_{g1} (p - p_*^1) + \ln \frac{p}{p_*^1} + \alpha_{l1} \left[e^{-\varepsilon_1(p - \text{Ca} - 1)} - e^{-\varepsilon_1(p_*^1 - 1)} \right] - \ln \gamma_l^1 = 0, \\ \ln \frac{1 - c_g^1}{1 - c_l^1} + \alpha_{g2} (p - p_*^2) + \ln \frac{p}{p_*^2} + \alpha_{l2} \left[e^{-\varepsilon_2(p - \text{Ca} - \omega_2)} - e^{-\varepsilon_2(p_*^2 - \omega_2)} \right] - \ln \gamma_l^2 = 0 \end{cases} \quad (1.41)$$

Où l'exposant 2 représente le nombre de composant et pas "carré"

Le système (1.41) détermine deux concentrations c_g^1 et c_g^2 comme fonctions de la pression d'équilibre p .

Si on suppose que Ca puisse être considéré comme étant constant, ce système possède une solution analytique explicite pour les concentrations de phase $c_g^1(p, T)$ et $c_l^1(p, T)$ pour les deux cas : (i) mélange idéal dans les deux phases, et (ii) mélange idéal dans le gaz et mélange modérément non-idéal dans le liquide :

$$c_g^1(p, T) = \frac{1 - K_2}{1 - K_2/K_1} \quad \text{and} \quad c_l^1(p, T) = \frac{1 - K_2}{K_1 - K_2} \quad (1.42)$$

Où les valeurs K sont définies par : $K_k \equiv c_g^k/c_l^k$.

Pour un mélange idéal dans les deux phase, les K -values sont calculées directement à partir de (1.41)

(pour $k=1,2$) :

$$K_k = \frac{p_*^k}{p} \exp \left[-\alpha_{gk} \left(p - p_*^k \right) - \alpha_{lk} \left(e^{-\varepsilon_k(p-Ca-\omega_k)} - e^{-\varepsilon_k(p_*^k-\omega_k)} \right) \right] \quad (1.43)$$

Pour le liquide non-idéal, prenons l'hypothèse de la non-idéalité modérée qui stipule que les interactions entre les différentes molécules et les molécules identiques sont presque égales : $g_{12} \simeq g_{21} \simeq g_{11} \simeq g_{22}$, ce qui conduit à $\tau_{ji} \simeq 0$. donc les K -values dans (1.42) sont calculées comme suit :

$$K_k = \frac{p_*^k}{p} \left(1 + \ln \gamma_0^k \right) \exp \left[-\alpha_{gk} \left(p - p_*^k \right) - \alpha_{lk} \left(e^{-\varepsilon_k(p-Ca-\omega_k)} - e^{-\varepsilon_k(p_*^k-\omega_k)} \right) \right] \quad (1.44)$$

Où

$$\begin{aligned} \ln \gamma_0^1 &= (c_{l0}^2)^2 \left[\tau_{21} \left(\frac{E_{21}}{c_{l0}^1 + c_{l0}^2 E_{21}} \right)^2 + \frac{\tau_{12} E_{12}}{(c_{l0}^2 + c_{l0}^1 E_{12})^2} \right], \\ \ln \gamma_0^2 &= (c_{l0}^1)^2 \left[\tau_{12} \left(\frac{E_{12}}{c_{l0}^2 + c_{l0}^1 E_{12}} \right)^2 + \frac{\tau_{21} E_{21}}{(c_{l0}^1 + c_{l0}^2 E_{21})^2} \right], \\ c_{l0}^1 &= \frac{1 - K_{02}}{K_{01} - K_{02}}, \quad c_{l0}^2 = 1 - c_{l0}^1 \end{aligned}$$

Les coefficients K_{01} et K_{02} sont calculées à partir des formules (1.43). Cette solution est développée dans l' ANNEX B.

1.5.3 Calculs d'équilibre pour un système ternaire

Pour un système ternaire, trois équations d'équilibre contiennent quatre concentrations $c_g c_g^1, c_g^2, c_l^1$ et c_l^2 , ce qui signifie que l'une de ces concentrations est indépendante. Nous choisirons c_l^1 comme étant la variable indépendante. Donc, le système d'équilibre détermine les trois autres concentrations en fonctions de la pression, la température et c_l^1 . Les équations d'équilibre sous forme adimensionnelle sont les suivantes :

$$\left\{ \begin{aligned} \ln \frac{c_g^1}{c_l^1} + \alpha_{g1} (p - p_*^1) + \ln \frac{p}{p_*^1} + \alpha_{l1} \left[e^{-\varepsilon_1(p-Ca-1)} - e^{-\varepsilon_1(p_*^1-1)} \right] &= \ln \gamma_1, \\ \ln \frac{c_g^2}{c_l^2} + \alpha_{g2} (p - p_*^2) + \ln \frac{p}{p_*^2} + \alpha_{l2} \left[e^{-\varepsilon_2(p-Ca-\omega_2)} - e^{-\varepsilon_2(p_*^2-\omega_2)} \right] &= \ln \gamma_2, \\ \ln \frac{1 - c_g^1 - c_g^2}{1 - c_l^1 - c_l^2} + \alpha_{g3} (p - p_*^3) + \ln \frac{p}{p_*^3} + \alpha_{l3} \left[e^{-\varepsilon_3(p-Ca-\omega_3)} - e^{-\varepsilon_3(p_*^3-\omega_3)} \right] &= \ln \gamma_3 \end{aligned} \right. \quad (1.45)$$

1.5. Calcul d'équilibre pour un mélange multi-composant avec effet capillaire

Tout comme pour le cas binaire, ce système possède une solution analytique explicite pour les concentrations des phases dans deux cas : (i) mélange idéal partout et (ii) liquide modérément non-idéal :

$$\begin{aligned} c_g^1(p, T, c_l^1) &= K_1 c_l^1, & c_l^2(p, T, c_l^1) &= \frac{1-K_3}{K_2-K_3} - \frac{K_1-K_3}{K_2-K_3} c_l^1, \\ c_g^2(p, T, c_l^1) &= K_2 \left(\frac{1-K_3}{K_2-K_3} - \frac{K_1-K_3}{K_2-K_3} c_l^1 \right) \end{aligned} \quad (1.46)$$

Pour le mélange idéal dans les deux phases, on a obtenu pour K -valeurs ($k = 1, 2, 3$) :

$$K_k = \frac{p_*^k}{p} \exp \left[-\alpha_{gk}(p - p_*^k) - \alpha_{lk} \left(e^{-\varepsilon_i(p - Ca - \omega_k)} - e^{-\varepsilon_i(p_*^k - \omega_k)} \right) \right] \quad (1.47)$$

Pour un mélange liquide non idéal :

$$K_k = \frac{p_*^k}{p} (1 + \ln \gamma_{k0}) \exp \left[-\alpha_{gk}(p - p_*^k) - \alpha_{lk} \left(e^{-\varepsilon_k(p - Ca - \omega_k)} - e^{-\varepsilon_k(p_*^k - \omega_k)} \right) \right] \quad (1.48)$$

Où γ_{k0} sont calculés à partir de (1.36) dans lesquelles il faut utilisé c_{l0}^q à la place de c_l^q , pour tous q , c_{g0}^k , c_{l0}^k et K_{i0} sont calculées comme pour le mélange idéal en utilisant les formules (1.46) et (1.47).

Comme il a été mentionné dans la section 1.4.1, les équations d'équilibre doivent être complétées par n équations de bilan de masse (1.29) pour une composition totale C^k donnée. Cela permet de déterminer le paramètre c_l^1 considéré comme indépendant dans les équations d'équilibre :

$$\begin{cases} C^1 = c_l^1 [1 + (K_1 - 1)S_g] \\ C^2 = \left[\frac{1-K_3}{K_2-K_3} - \frac{K_1-K_3}{K_2-K_3} c_l^1 \right] [1 + (K_2 - 1)S_g] \end{cases} \quad (1.49)$$

Où S_g est la fraction molaire du gaz. On obtient alors deux équations à deux inconnues : c_l^1 et S_g .

L'enveloppe du domaine diphasique est calculée en utilisant les mêmes équations, dans lesquelles $c_l^1 = C^1$ pour la courbe de bulle (transition au domaine monophasique liquide) et $c_l^1 = C^1/K_1$ pour la courbe de rosée (transition au domaine monophasique gaz), ce qui se traduit à partir de (1.49) si $S_g = 0$ et $S_g = 1$ respectivement.

1.6 Comparaison avec les données expérimentales

1.6.1 Systèmes binaires

L'équilibre gaz-liquide pour un mélange de deux composants à température constante est souvent représenté sur le diagramme (Pression de gaz en fonction de la concentration globale du composant le plus léger) P_g vs C^1 . Pour les grandes valeurs de C^1 le système est gazeux tandis que pour des grandes valeurs de P_g le système est liquide, et un domaine diphasique existe entre ces deux situations.

Nous avons utilisé les données expérimentales pour les trois mélanges binaires publiés dans [3] :

- (i) 2-methylpentane et heptane ;
- (ii) 2-methylpentane et octane ;
- (iii) heptane et octane.

Les valeurs suivantes des paramètres de notre modèle ont été obtenues en ajustant avec les données expérimentales (pour une $T = 328.15K$) :

	v_{g0}	v_{l0} (mol/m ³)	β (bar ⁻¹)	P_0 (bar)	P_*^{II} (bar)	P_c (bar)
(1) 2-methylpentane	0	$131.602945 \cdot 10^{-6}$	$5.6335 \cdot 10^{-4}$	100	6137.1	15.8840
(2) heptane	0	$150.892814 \cdot 10^{-6}$	$5.6366 \cdot 10^{-4}$	100	6470.3	15.8840

Tableau 1.1 – Paramètres du mélange binaire 2-methylpentane - heptane

	v_{g0}	v_{l0} (mol/m ³)	β (bar ⁻¹)	P_0 (bar)	P_*^{II} (bar)	P_c (bar)
(1) 2-methylpentane	0	$131.602945 \cdot 10^{-6}$	$5.6335 \cdot 10^{-4}$	100	6137.1	16.6791
(2) octane	0	$171.118711 \cdot 10^{-6}$	$5.8525 \cdot 10^{-4}$	100	6442.9	16.6791

Tableau 1.2 – Paramètres du mélange binaire 2-methylpentane - octane

	v_{g0}	v_{l0} (mol/m ³)	β (bar ⁻¹)	P_0 (bar)	P_*^{II} (bar)	P_c (bar)
(1) heptane	0	$150.892814 \cdot 10^{-6}$	$5.6366 \cdot 10^{-4}$	100	6470.3	18.2806
(2) octane	0	$171.118711 \cdot 10^{-6}$	$5.8525 \cdot 10^{-4}$	100	6442.9	18.2806

Tableau 1.3 – Paramètres du mélange binaire heptane - octane

Les diagrammes de phase (les enveloppes de la zone diphasique) ont été construits en utilisant le modèle présenté dans ce chapitre en termes de P_g vs v (voir Fig. 1.12) et P_g vs C^1 (voir Fig. 1.13, 1.14 et 1.15). Comme nous n'avons pas pu trouver de données expérimentales , le diagramme $P_g - v$ a été

comparé avec les résultats de l'EOS de Peng-Robinson. Pour le diagramme $P_g - C^1$, nous avons utilisé des données expérimentales pour la comparaison.

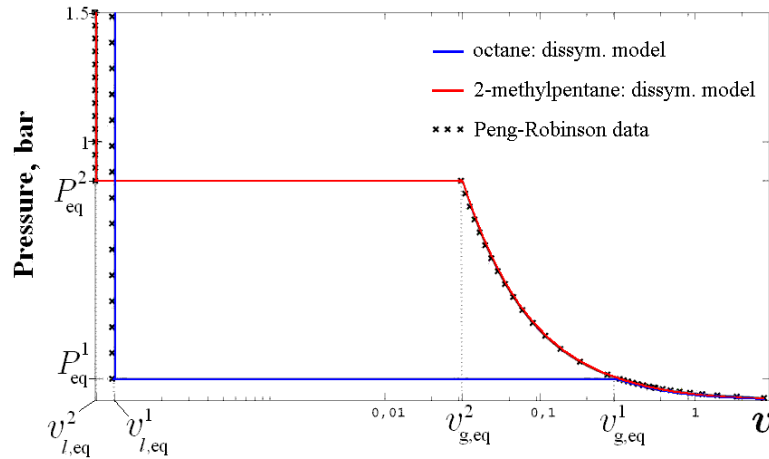


FIGURE 1.12 – Diagramme de phase binaire (2-methylpentane-octane) $P - \log(v)$ à $T=328.15^\circ\text{K}$

Dans Fig. 1.13, 1.14 et 1.15 Les courbes rouges sur ces diagrammes sont les résultats des calculs sans tenir en compte de l'effet capillaire (dans ce cas nous disposons des données expérimentales pour la comparaison), tandis que les courbes en bleu correspondent au cas avec effet capillaire (pas de données expérimentales). Les valeurs de P_c que nous avons utilisé sont propres à des milieux poreux naturels : pour les composants purs, ils ont été calculées par l'équation de Laplace en supposant que le rayon de courbure de l'interface liquide-gaz est du même ordre que le rayon des pores ($\sim 200\text{\AA}$). La tension superficielle de chaque composant a été calculée en utilisant le modèle de Brock et Bird. la pression capillaire du mélange a été estimée comme une valeur moyenne ($P_c \approx 0.5(P_{c1} + P_{c2})$).

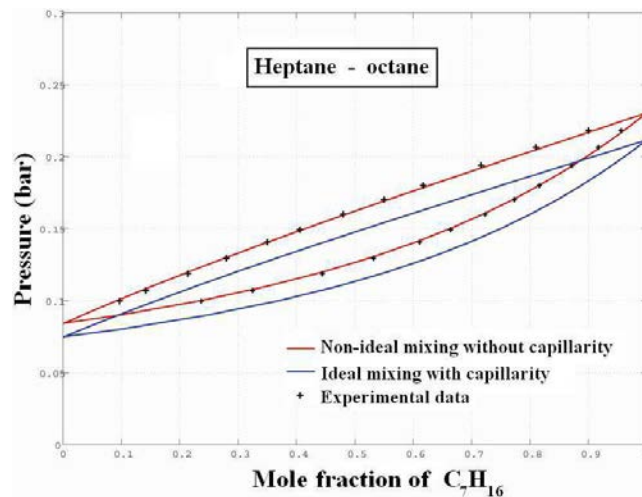


FIGURE 1.13 – Diagramme de phase binaire (Heptane-octane) $P - C_7$ à $T=328.15^\circ\text{K}$

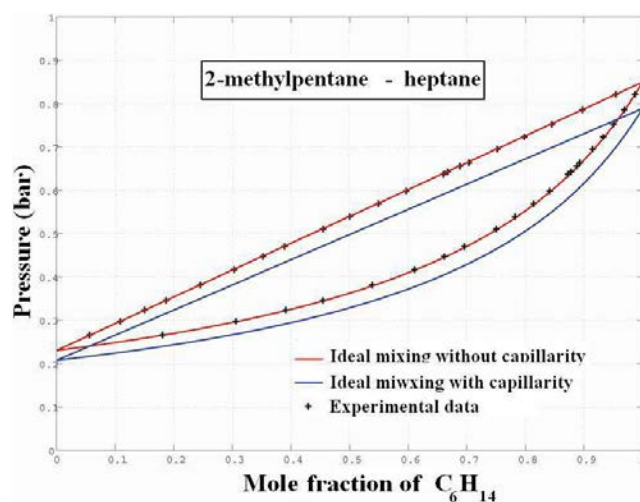


FIGURE 1.14 – Diagramme de phase binaire (2-methylpentane-heptane) $P - C_{C6}$ à $T=328.15^{\circ}\text{K}$

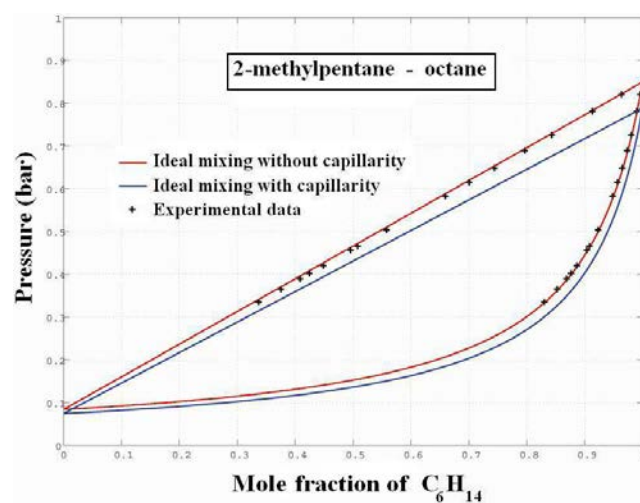


FIGURE 1.15 – Diagramme de phase binaire (2-methylpentane-octane) $P - C_{C6}$ à $T=328.15^{\circ}\text{K}$

1.6.2 Systèmes ternaires

L'équilibre gaz-liquide d'un mélange ternaire à température et pression constantes est souvent représenté sur un triangle équilatéral (diagramme ternaire). Sa hauteur est égale à l'unité. La composition de mélange est représentée par un point à l'intérieur du triangle et les fractions molaires des trois composants sont données par trois hauteurs abaissées à partir de ce point aux trois côtés de triangle.

Nous balayons tout le domaine des compositions avec un pas qu'on peut choisir, et pour chaque composition totale (C_1, C_2, C_3), les concentrations de phase sont calculées à partir de Eq.(1.46)-(1.49). Les points représentatifs de la phase liquide (courbe de bulle) et de la phase gaz (courbe de rosée) ont été construits pour le mélange ternaire 2-méthylpentane-heptane-octane :

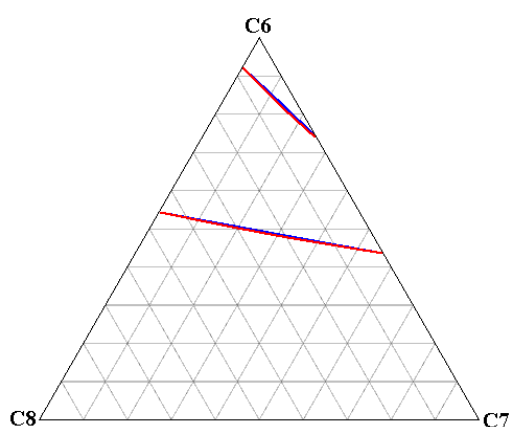


FIGURE 1.16 – Diagramme de phase ternaire 2-méthylpentane-heptane-octane ($P = 0.5$ bar et $T=328.15^\circ\text{K}$) sans effet capillaire. En rouge : mélange idéal, bleu : liquide non idéal

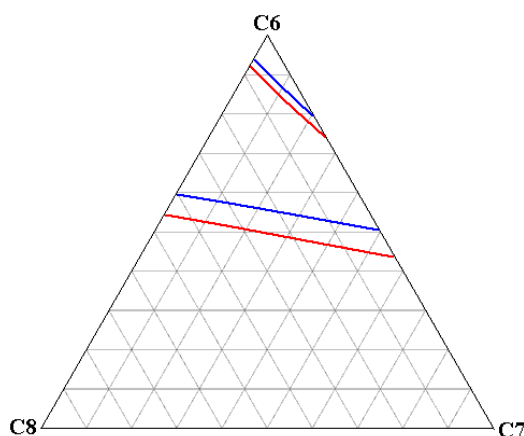


FIGURE 1.17 – Diagramme de phase ternaire 2-méthylpentane-heptane-octane ($P = 0.5$ bar et $T=328.15^\circ\text{K}$). En rouge : liquide non-idéal sans effet capillaire, bleu : liquide non-idéal avec effet capillaire

1.7 Conclusion

L'utilisation des EOS différentes pour le gaz et le liquide nous a obligé à introduire quelques nouveaux concepts comme le pseudo-gaz, le pseudo-liquide, le point pseudo-critique et les conditions de consistance. Les conditions de consistance, qui déterminent la solvabilité des équations d'équilibre, sont les principaux éléments de cette théorie et constituent sa nouveauté.

Nous avons obtenu les équations théoriques exactes qui déterminent la pression pseudo-critique (1.5) et la pression d'équilibre (1.9). Dans le cas d'un gaz parfait et un liquide exponentiel, elles s'écrivent sous la forme (1.15) et (1.17) respectivement.

Dans la section 1.5, nous avons présenté le raisonnement mathématique permettant l'utilisation des relations (1.15) et (1.17) pour déterminer les paramètres ajustables des deux EOS des composants purs y compris au voisinage du point critique.

Dans des cas particuliers, nous avons montré que le modèle du gaz parfait pour tous les composants purs est consistant et peut être utilisé pour calculer l'équilibre gaz-liquide, tandis que le modèle du liquide incompressible est inconsistent.

Nous avons prouvé que la condition de consistance signifie graphiquement que deux courbes $P(v)$ pour le gaz et le liquide se croisent en deux points (P_*^I et P_*^{II}) et que la surface entre ces courbes située entre les points (P_*^I et P_*^{II}) doit être équivalente à la surface située entre les points P_{eq} and P_*^{II} comme on le voit sur Fig. 1.3-a. Cette construction graphique détermine la pression d'équilibre P_{eq} et représente l'analogue de la règle de Maxwell (Maxwell equal area rule) mais dans le sens inverse.

Dans le cas multi-composant, nous avons montré qu'un modèle dissymétrique donne des relations analytiques explicites pour les concentrations de phases avec un degré de précision satisfaisant, ce qui constituait l'objectif de cette étude.

Nous avons illustré l'approche développée en utilisant l'exemple du gaz parfait et du liquide non-idéal décrit par l'équation NRTL. Pour les composants purs, nous avons utilisé le modèle de l'EOS de viriel pour le gaz et le liquide exponentiellement compressibles qui remplissent les conditions de l'auto-consistance.

Plusieurs exemples de calculs présentés en fin de chapitre montrent : 1) la cohérence des résultats obtenus avec les données expérimentales 2) que la méthode représente un moyen simple et efficace pour introduire la pression capillaire dans les modèles d'équilibres de phases.

Une application pratique de cette approche est le domaine de l'ingénierie pétrolière. La simulation des écoulements multiphasiques compositionnels telle qu'elle est actuellement est entravée par le temps nécessaire pour effectuer les calculs thermodynamiques.

Les avantages de l'utilisation de la théorie développée plutôt que celle basée sur des EOS uniformes pour les deux phases sont les suivants :

- d'une part, elle nous permet d'inclure les effets capillaires dans les systèmes multi-composants et de généraliser l'équation de Kelvin (la condensation capillaire) pour le cas multi-composants ;
- d'autre part, cette approche simplifie significativement les calculs en conduisant à des relations

analytiques explicites pour les concentrations de phase, même pour les mélanges non idéaux multi-composants et en tenant compte des effets capillaires.

Chapitre 2

La méthode de saturations négatives

Le déplacement compositionnel d'un fluide monophasique par un autre dans un milieu poreux conduit à l'apparition d'un fluide diphasique entre le fluide injecté et le fluide en place. Ainsi, le milieu poreux est divisé en différentes zones avec différent nombre de phase séparées entre elles par des interfaces spécifique appelées « *interfaces de transition de phase (IPT)* ». Un tel comportement est fréquent dans la récupération assistée du pétrole, la séquestration du CO₂ et la génération d'hydrogène dans les déchets radioactifs...

Notez que l'écoulement dans les zones monophasiques et diphasiques est décrit par deux systèmes d'équations différentes et complètement indépendantes, ce qui signifie que la position des interfaces entre ces zones doit être détectée avant la résolution des équations différentielles d'écoulement afin de déterminer quand et où chacun des deux modèles doit être utilisé.

Toutefois, il n'est pas possible de le faire sauf dans quelques cas simples. Pour surmonter ce problème, on propose de remplacer les fluides dans les différentes zones par un fluide diphasique fictif. En étendant le concept de la saturation en acceptant les valeurs négatives et supérieures à un, le déplacement de ce fluide fictif peut être décrit par un système uniforme d'équations diphasiques classiques. Les interfaces de transition de phase peuvent être détectées lors de la simulation lorsque la saturation étendue passe par les valeurs zéro et un.

Dans ce chapitre, la méthode est présentée pour le cas d'un écoulement diphasique multi-composants en acceptant que le seul mécanisme de déplacement soit la convection pure et en négligeant l'effet des réactions chimiques, adsorption, capillarité, gravité et la variation de température.

2.1 Interface de transition de phase

La figure 2.1-a ci-dessous montre un système de chenaux occupés par deux phase 1 et 2 respectivement. L'interface apparaît à l'échelle macroscopique sur Fig.2.1-b lorsque le fluide diphasique à droite peut être considéré comme deux continus qui coexistent en chaque point de l'espace. On observe que la phase 1 reste continue à travers l'interface, donc l'interface de transition ou de disparition de phases représente l'enveloppe macroscopique des points de disparition de la deuxième phase. Au même temps, une telle surface macroscopique peut être aussi une interface à l'échelle du pore si la composition de la phase continue 1 est différente dans la zone monophasique et la zone diphasique.

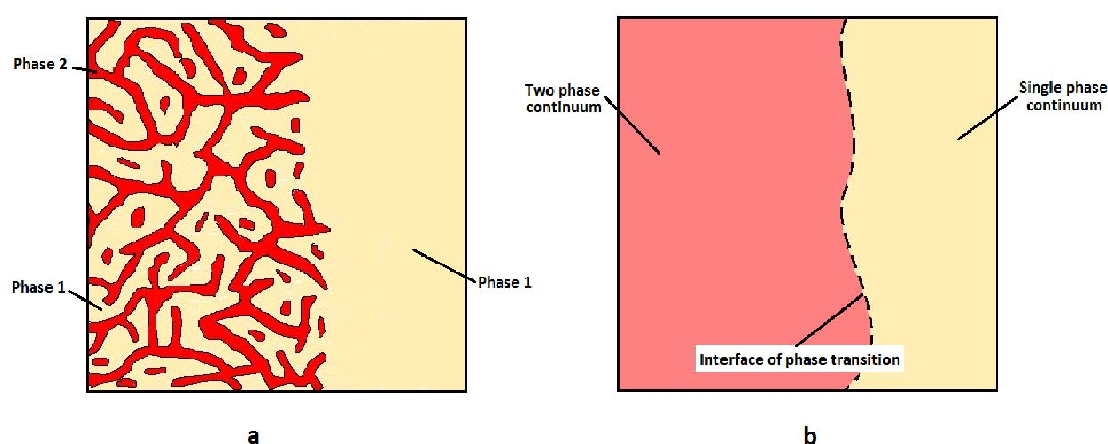


FIGURE 2.1 – Interface de transition de phase à l'échelle de pore (a) et à l'échelle macroscopique (b)

2.2 État d'équilibre et de déséquilibre des phases

Considérons un fluide constitué de N composants chimiques. Ce fluide peut former différentes phases (gaz et liquide) en fonction de la domination des composants : légers, lourds, ou neutres. Si la composition du fluide est hétérogène dans l'espace alors nous pouvons obtenir différents domaines dans lesquels le nombre de phases co-existantes est différent : des zones monophasiques peuvent alterner avec des zones diphasiques .

Comme mentionné précédemment, la détermination du nombre de phases en chaque point et la détection des interfaces de transition de phase est un sérieux défi dans la modélisation numérique des processus de récupération assistée du pétrole. Le principal problème technique est lié au comportement qualitatif différent des fluides monophasiques et diphasiques.

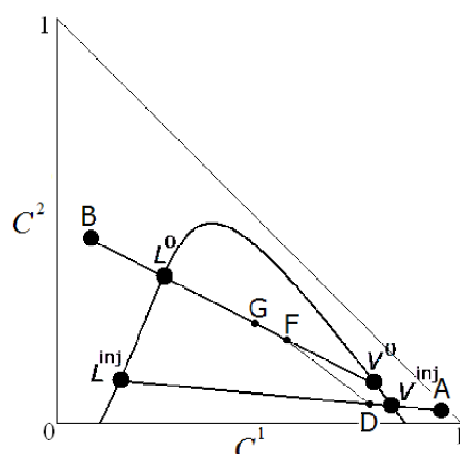


FIGURE 2.2 – États d'équilibre et de déséquilibre sur un diagramme de phase

À l'échelle du pore, un fluide diphasique représente le système de fines inclusions d'une phase dispersées dans une autre. Le modèle macroscopique d'un tel fluide est l'ensemble des continus inter-pénétrants, chacun d'entre eux existe en tout point et chaque continuum correspond à une phase. L'interaction entre ces continus détermine les échanges de masse entre eux c-à-d la composition de chaque phase. Ces échanges sont supposés être très rapides dans un mélange finement dispersés, de sorte que les phases sont en équilibre chimique à chaque instant. Par conséquent la composition d'un système diphasique est contrôlée par des équations thermodynamiques d'équilibre chimique.

Cela est qualitativement différent pour un fluide monophasique dont la composition n'est pas contrôlée par la thermodynamique (sauf le cas particulier où le fluide monophasique est placé juste à la limite entre la zone monophasique et la zone diphasique sur le diagramme de phase). C'est pourquoi les d'équations qui régissent les zones diphasiques et monophasiques sont qualitativement différentes et ne peuvent pas être obtenues les unes des autres par une simple réduction des saturations des phases à zéro.

Cette situation est illustrée sur la fig. 2.2 qui représente le diagramme ternaire cartésien de Gibbs d'un fluide composé de trois éléments chimiques : (1) le composant léger (CO_4), (2) intermédiaire (CO_2) et (3) lourd ($C_{10}H_{22}$).

La composition d'un mélange est représentée par un point à l'intérieur du triangle, de telle sorte que les concentrations totales (fractions molaires totales) des trois composants C^1 , C^2 et C^3 sont données par trois hauteurs abaissées à partir de ce point sur les trois côtés du triangle. La zone diphasique correspond à la zone centrale délimitée par l'enveloppe courbée. Le gaz monophasique est sur la droite, le liquide est sur la gauche, le fluide supercritique au sommet. La ligne sur laquelle la composition des phases est constante est appelé « tie line ». Il a été prouvé dans la théorie que ces lignes sont droites.

Le gaz injecté peut être représenté par le point A ou V^{inj} . Le gaz V^{inj} appartient simultanément à la zone monophasique et à la zone diphasique, c'est pourquoi son comportement est contrôlé par les

équations diphasiques d'équilibre . Cet état peut être obtenu à partir des équations diphasiques par la dégénérescence continue de la saturation (la fraction volumique de liquide tend vers zéro). En revanche, le gaz A n'est pas contrôlé par l'équilibre chimique, par conséquent, il est impossible de l'obtenir à partir des équations d'équilibre .

Une situation similaire concerne la phase liquide initiale, les points B ou L^0 . Le point L^0 correspond à l'équilibre chimique avec le gaz injecté, ce qui n'est pas le cas du point B .

Cela signifie que nous ne pouvons pas utiliser les mêmes équations diphasiques pour le fluide total et s'attendre à ce que les zones monophasiques de déséquilibre peuvent être automatiquement capturées par la dégénérescence continue des saturations des phases . Pour les zones de déséquilibre, nous devons utiliser des équations différentes, ce qui rend le problème trop compliqué.

2.3 Concept de la méthode Neg-Sat

La méthode des saturations négatives propose de remplacer le véritable fluide monophasique par un fluide diphasique fictif et par conséquent, le nombre de phases dans toutes les zones est identique. Ainsi, le fluide dans l'ensemble du domaine peut être décrit par les mêmes équations hydrodynamiques et thermodynamiques. Les propriétés du fluide fictif sont définies de telle sorte que ses équations diphasiques seraient équivalentes aux équations monophasiques du fluide réel.

Soit deux zones différentes, séparées par une interface de disparition de phase, existent dans le réservoir : dans la zone A le fluide représente le mélange de deux phases, alors qu'il est monophasique dans la zone B . La température est constante et on considère que la convection comme mécanisme de déplacement et on néglige les effets capillaires ($P_g = P_l = P$) .

L'écoulement du fluide monophasique (zone B) est décrit par le système d'équations de bilan de masse suivant :

$$\phi \frac{\partial \rho C^i}{\partial t} = \text{div} \left(\frac{K \rho C^i}{\mu} \nabla P \right), \quad i = \overline{1, N} \quad (2.1a)$$

$$\sum_{i=1}^N C^i = 1 \quad (2.1b)$$

Où ϕ représente la porosité, K la perméabilité intrinsèque, C^i la fraction molaire du composant i dans le fluide, P , ρ et μ sont la pression, la densité molaire [mol/m^3] et la viscosité du fluide monophasique.

Ce système doit être complété par : une équation d'état et une équation rhéologique, données sous leurs formes générales par :

$$\rho = \rho(P, C^1, \dots, C^N) \quad (2.2a)$$

$$\mu = \mu(P, C^1, \dots, C^N) \quad (2.2b)$$

Dans la zone A , le fluide est diphasique et est constitué de N composants chimiques dissous dans les deux phases. La phase j est identifiée par sa fraction volumique (ou saturation) S_j , tandis que le composant i dans la phase j est identifié par sa fraction molaire (ou concentration de phase) c_j^i .

Le déplacement de ce fluide est décrit par les d'équations de bilan de masse et d'équilibre chimique suivantes :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} \left(\sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j \right) = \text{div} \left(K \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} \nabla P \right), i = \overline{1, N} \quad (2.3a)$$

$$v_g^i(P, c_g^1, \dots, c_g^N) = v_l^i(P, c_l^1, \dots, c_l^N), \quad i = \overline{1, N} \quad (2.3b)$$

$$\sum_{i=1}^N c_j^i = 1, \quad j \in \{g, l\}; \quad \sum_{j=g,l} S_j = 1 \quad (2.3c)$$

Où v_j^i est le potentiel chimique du composant i dans la phase j . La signification physique des autres fonctions est la même que pour le fluide monophasique. Les composants chimiques sont supposés être dans l'ordre croissant avec en premier le composant le plus léger.

Le système (2.3) devrait être complété par une équation d'état et une équation rhéologique pour chaque phase, ainsi que des relations pétrophysiques des perméabilités relatives, pour $j \in \{g, l\}$:

$$\rho_j = \rho_j(P, c_j^1, \dots, c_j^N), \quad (2.4a)$$

$$\mu_j = \mu_j(P, c_j^1, \dots, c_j^N), \quad (2.4b)$$

$$k_{rj} = k_{rj}(S_g, S_l), \quad (2.4c)$$

2.4 Principe d'équivalence

Notre objectif est de remplacer le fluide monophasique par un mélange diphasique. Donc, il est nécessaire de prouver qu'un tel remplacement est possible.

Prenons un fluide diphasique fictif décrit par les équations (2.3), dans lesquelles les propriétés du réservoir ϕ et K sont vraies et connues, tandis que les densités des phases ρ_j et les mobilités k_{rj}/μ_j sont fictives et inconnues et qui doivent être déterminées de telle sorte que ce système serait équivalent à (2.1).

Le système (2.3) de $2N + 2$ équations est fermé par rapport à $2N + 2$ variables : P , S_g (ou S_l) et c_j^i .

En utilisant la solution de ce système, nous allons introduire les nouvelles fonctions C^i comme suit :

$$C^i \rho = \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j, \quad i = \overline{1, N} \quad (2.5)$$

Où ρ est la même fonction que dans (4.2a).

Les $N + 1$ variables P et C^i sont les solutions du système d'équations monophasiques (2.1) si et seulement si les propriétés fictives sont définies comme suit :

$$\frac{k_{rj}}{\mu_j} = \frac{S_j}{\mu}, \quad (2.6a)$$

$$\sum_{j=g,l} \rho_j S_j = \rho \quad (2.6b)$$

Où ρ et μ sont les mêmes fonctions que dans (2.2).

Ces conditions représentent le principe d'équivalence, pour lequel le système d'équations hydrodynamiques et thermodynamiques diphasiques est équivalent au système d'équations hydrodynamiques monophasiques .

2.4.1 Signification du principe d'équivalence

Les résultats qui découlent du principe d'équivalence déterminent sa signification physique :

1. Un fluide monophasique dont la composition n'est pas contrôlée par la thermodynamique, peut être remplacé par un fluide diphasique fictif dont la composition des phases est régie par les équations d'équilibre (2.3b).
Pour cette raison, le fluide dans l'ensemble du domaine peut être décrit par le même système d'équations diphasiques (2.3). Les propriétés de ce fluide sont déterminées en utilisant les relations thermodynamiques et pétrophysiques (2.4) si ce fluide est réellement diphasique et le principe d'équivalence (2.6) si ce fluide est monophasique en réalité.
2. Les mobilités des phases fictives sont déterminées par la relation (2.6a) d'une manière unique.
3. Les densités molaires des phases fictives ρ_j sont déterminées par une seule équation (2.6b). Par conséquent, leur définition est non unique, ce qui signifie qu'une seule phase liquide peut être remplacée par plusieurs fluides diphasiques. Cela donne une certaine liberté dans le choix des densités des phases de façon à obtenir des simplifications supplémentaires. En particulier, il est possible de les définir comme suit :

$$\rho_j = \rho, \quad \forall j \quad (2.7)$$

Et la définition (2.5) des variables C^i devient explicite :

$$C^i = \sum_{j=g,l} c_j^i S_j, \quad i = \overline{1, N} \quad (2.8)$$

(alors que (2.5) est non linéaire et implicite parce que ρ dépend de C^i).

4. L'une des saturations du fluide diphasique fictif est négative si la composition du fluide monophasique correspondant est loin de la zone d'équilibre thermodynamique. En effet, considérons le gaz monophasique qui est remplacé par un fluide diphasique fictif, la relation (2.8) pour le composant léger ($i = 1$) donne le résultat suivant pour la saturation de la phase liquide fictive : $S_l = -\frac{C^1 - c_g^1}{c_g^1 - c_l^1}$. Si le gaz monophasique est en déséquilibre avec le véritable fluide diphasique, donc il est plus léger que le gaz à équilibre : $C^1 > c_g^1$, ainsi, $S_l < 0$ car le numérateur et le dénominateur sont positifs.
5. La détection du nombre réel des phases est basée sur les valeurs des saturations S_j : si la saturation S_j devient supérieure à 1, le fluide réel représente la monophasique j et les propriétés du fluide diphasique deviennent alors fictives. Si toutes les saturations S_j sont comprises entre 0 et 1, le fluide réel est diphasique et les propriétés réelles des deux phases sont donc utilisées.

2.4.2 Preuve d'équivalence

la suffisance des conditions (2.6) est prouvée en les substituant dans le système (2.3a) :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} \left(\sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j \right) = \text{div} \left(\frac{K}{\mu} \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j \nabla P \right), \quad i = \overline{1, N} \quad (2.9)$$

En utilisant la définition (2.5), on obtient les équations monophasiques (2.1).

la nécessité est prouvée de la façon suivante :

1. En comparant les systèmes (2.1) et (2.3a), on en déduit les égalités suivantes qui doivent être nécessairement remplies pour obtenir l'équivalence entre le fluide diphasique fictif et fluide monophasiques réel :

$$\sum_{j=g,l} \frac{\rho_j c_j^i k_{rj}}{\mu_j} = \frac{\rho C^i}{\mu}, \quad i = \overline{1, N}, \quad (2.10a)$$

$$\sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j = \rho C^i, \quad i = \overline{1, N}, \quad (2.10b)$$

$$\sum_{i=1}^N C^i = 1 \quad (2.10c)$$

2. Nous pouvons éliminer les concentrations C^i des N premières relations de ce système, ce qui donne au final :

$$\sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i \left(\frac{k_{rj} \mu}{\mu_j} - S_j \right) = 0, \quad i = \overline{1, N}, \quad (2.11a)$$

$$\sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j = \rho C^i, \quad i = \overline{1, N}, \quad (2.11b)$$

$$\sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i = \rho \quad (2.11c)$$

Dans le système obtenu (2.11) les variables S_j et c_j^i sont définis comme les solutions du système (2.3). Les fonctions ρ et μ sont données à partir de (2.2). Ainsi, le système de $2N + 1$ équations non linéaires (2.11) détermine $N + 4$ variables : $\{C^i\}_{i=1}^N, \{\rho_j\}_{j=g,l}$ et $\{k_j/\mu_j\}_{j=g,l}$

Pour $N > 3$ le nombre de ces équations est supérieur au nombre de variables, ce qui signifie que l'existence des solutions de système (2.11) est non évidente. Cependant, il est possible de montrer que ce système a toujours une solution et que cette solution n'est pas unique par rapport aux variables ρ_j .

3. En effet, le sous-système (2.11a) représente le système linéaire homogène de N équations par rapport aux deux variables $X_\alpha \equiv \rho_\alpha \left(\frac{k_{r\alpha} \mu}{\mu_\alpha} - S_\alpha \right)$:

$$\sum_{j=g,l} c_j^i X_j = 0, \quad i = \overline{1, N} \quad (2.12)$$

Qui a toujours une solution triviale : $X_j = 0, \forall j$ et quel que soit le nombre de composants N . Cela permet de déterminer les variables k_j/μ_j d'une manière unique. On obtient donc les conditions (2.6a).

4. Le sous-système de N relations qui restent (2.11b) est équivalent à la définition (2.5) de N variables C^i . En raison de (2.11c) la somme de ces variables est égal à un comme dans (2.1).

5. La relation (2.11c) est équivalente à la condition (2.6b), qui donne deux variables ρ_j d'une manière non unique .

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la méthode de saturation négative pour le cas particulier où le mouvement du fluide est provoqué uniquement par les gradients de pression (pure convection).

La méthode consiste à remplacer les fluides dans les différentes zones par un fluide diphasique fictif. La possibilité d'un tel remplacement est basée sur le principe d'équivalence qui détermine les conditions nécessaires et suffisantes de l'équivalence entre le véritable fluide monophasique dont le comportement n'est pas contrôlé par les conditions d'équilibre et le fluide diphasique fictif dont les phases sont en équilibre chimique. En se basant sur ce principe, nous avons déterminé les propriétés du fluide fictif à savoir les densités et les mobilités.

Dans les chapitres qui vont suivre, nous allons développer cette méthode pour le cas général lorsque le mouvement du fluide est régi par la diffusion des composants et la gravité et en tenant compte des effets capillaires.

Chapitre 3

Théorie analytique de résolution d'un problème de déplacement

Tout d'abord, un système d'équations de bilan de masse pouvant être résolu analytiquement a été dérivé du modèle Neg-Sat développé dans le chapitre précédent en considérant des hypothèses simplificatrices. Les principales hypothèses sont les suivantes :

- (i) mélange idéal (le volume occupé par un composant dans le mélange est considéré égal au volume occupé à l'état pur dans des conditions de pression et de température identiques) et
- (ii) les concentrations de phase sont des fonctions constantes par morceaux.

Par conséquent, le processus de déplacement est caractérisé par un ensemble d'équations hyperboliques formulées en terme de concentrations, qui complétées par des conditions initiales et d'injections constituent un problème de Riemann qui peut être résolu analytiquement ou graphiquement.

En utilisant le concept de saturation étendue, ce système a été remplacé par une seule équation de "buckley-levrett " quel que soit le nombre de composants ou de phases et un ensemble de conditions de "Rankin-Hugoniot" au niveau des chocs.

Enfin, la solution du problème de Riemann a été construite en utilisant à la fois la méthode Neg-Sat et la théorie classique et comparée pour le cas d'un mélange de trois composants.

3.1 Revue de la littérature

Dans le cas d'un système diphasique compositionnel le problème de Riemann a des solutions analytiques qui ont une structure assez simple.

[Buckley et Leverett 1941] ont développé les premières solutions analytiques pour l'écoulement mono-dimensionnel de deux phase immiscibles (huile-eau) dans un milieu poreux. Les phases étaient également considérées comme incompressibles. Les auteurs ont construit la solution graphique-analytique.

[Welge 1952] a simplifié le problème du déplacement eau-huile, en montrant que les conditions du choc ont une interprétation graphique, représentée par une droite tangente à la fonction de débit fractionnaire ($F(S)$) sur le diagramme F vs S . Cette tangente est connue sous le nom de *la tangente de Welge*.

Dans [Helfferich 1979], la théorie analytique générale basée sur la méthode des caractéristiques pour un déplacement diphasique multicomposant a été présentée. L'analyse de l'injection du gaz miscible et de surfactant dans l'huile était initialement limitée aux systèmes ternaires (trois composants chimiques) : [Helfferich 1982 ; Hirasaki 1981 ; Larson, 1979 ; Wachman 1964 ; Zanotti et al. 1983]. Le modèle de trois composants représente deux équations différentielles, hyperboliques et non-linéaires formulées en fonction des concentrations totales de deux composants. La solution est basée sur le fait que les concentrations de phases sont constantes par morceau et ne peuvent varier que d'une manière discontinue. Une telle propriété a conduit à l'introduction du concept de *tie-lines* qui sont des lignes de compositions de phases constantes sur le diagramme de phase. Chaque onde de raréfaction de la concentration totale dans la structure de la solution a été représentée pour correspondre à une concentration de phase invariable ou à une *tie-line* fixe. Les chocs entre les ondes de raréfaction sont donc des chocs entre deux *tie lines*.

Le système ternaire diphasique détermine les propriétés principales de la solution du problème de Riemann. Elle est caractérisée par deux *tie-lines* externes : une correspond à la composition du fluide injecté, tandis que la deuxième représente la composition du fluide initialement présent dans le réservoir. Les deux *tie lines* externes sont imposées par les conditions de Riemann. La variation de la composition de phases se produit soudainement sous la forme d'un choc reliant deux *tie lines*. Ces chocs déterminent le choc de la composition totale et de la saturation du liquide. Il a également été montré que dans la zone de composition de la phase invariable, la composition totale (et la saturation) peuvent aussi avoir des chocs, ce qui est singulier. Ces principes de construction de la solution ont été utilisés par la suite dans le cas multicomposant.

La solution Unidimensionnelle du problème de Riemann pour le cas diphasique, avec quatre composants chimiques et plus, a été proposée par [Bedrikonetsky, Chumak 1992]. Pour un fluide composé de N composants chimiques, ils ont montré que la variation de la composition de phase entre la *tie line* d'injection et la *tie line* initiale se passe à travers $(N - 3)$ *crossover tie lines*.

Peu plus tard, la méthode des caractéristiques a été utilisée pour résoudre les problèmes diphasiques avec un nombre arbitraire de composants [Johns 1992 ; Dindoruk et al. 1992 ; Yuan 2003 ; Wang 1998 ; Jessen et al. 1999 ; Pires et al. 2004 ; Yuan et Johns 2002]. Un grand nombre de documents ont été consa-

crés au cas d'un fluide initial monophasique (une huile liquide). Le cas d'un fluide initial diphasique a été analysée dans [Lac 1989 ; Jessen et Orr, 2003 ; Bedrikovetsky et al. 1996].

[Wang 1998] a utilisé le fait que les tie lines doivent se croiser, pour développer un algorithme rapide et efficace pour obtenir des solutions analytiques pour les systèmes multi-composants avec un nombre arbitraire de composants.

En conséquence de cette théorie, le concept de *trajectoire de la composition* est devenu important dans la technique de construction de la solution. Il a été montré que la solution du problème de Riemann avec l'alternance des ondes de raréfaction, des chocs et de plateaux a une image bijective sur le diagramme de phase sous la forme d'une trajectoire reliant les tie lines correspondantes. Une telle trajectoire est quantitativement informative, comme ses sommets déterminent les concentrations devant et derrière les chocs correspondants. Il suffit alors de construire la trajectoire pour déterminer la structure de la solution entière.

3.2 Formulation du problème

Le système d'équations de bilan de masse obtenu dans le chapitre précédent ne peut pas être résolu analytiquement et quelques hypothèses simplificatrices sont nécessaires :

3.2.1 Mélange idéal

Dans la théorie de transport, la règle de mélange idéal est très fréquemment appliquée. Le mélange idéal des composants dans une phase, signifie que les composants ne changent pas de volume lorsqu'ils transfèrent d'une phase à une autre. Par conséquent, le volume global de chaque phase est égal à la somme des volumes de tous les composants à l'état pur.

Considérons un mélange de N composants à P et T fixes. Soit $V^{i,pure}$ le volume occupé par le composant i à l'état pur dans les mêmes conditions P et T que le mélange. Selon la définition du mélange idéal, on a : $V = \sum_{i=1}^N V^{i,pure}$.

Divisons cette relation par le volume total V :

$$1 = \sum_{i=1}^N \frac{V^{i,pure}}{V} \quad (3.1)$$

Cela ressemble à la somme des concentrations qui est toujours égal à 1. Ainsi, nous pouvons introduire les fractions volumiques (ou *concentrations*) :

$$\hat{c}^i = \frac{V^{i,pure}}{V}, \quad \sum_{i=1}^N \hat{c}^i = 1 \quad (3.2)$$

Ce sont des concentrations uniquement pour le cas où le mélange est idéal. Pour un mélange réel, leur somme est inférieure ou supérieure à 1. Dans ce cas, ils ne peuvent pas être considérées comme des concentrations.

La relation entre les fractions molaires c^i et les fractions volumique $\hat{c}^i$ est donnée par :

$$\hat{c}^i = \frac{v^{i,pure} N^i}{vN} = \frac{\rho c^i}{\rho^{i,pure}} \quad (3.3)$$

Où $v^{i,pure}$ et $\rho^i = 1/v^{i,pure}$ sont le volume molaire et la densité molaire du composant pur i . ρ est la densité molaire du mélange et N le nombre de moles.

Pour les concentrations totales $\hat{C}^i$ on écrit :

$$\hat{C}^i = \frac{V_g^{i,pure} + V_l^{i,pure}}{V} = \frac{\hat{c}_g^i V_g + \hat{c}_l^i V_l}{V} = \hat{c}_g^i S_g + \hat{c}_l^i (1 - S_g), \quad S_g \equiv \frac{V_g}{V} \quad (3.4)$$

Avec S_g la fraction volumique (saturation) de la phase gazeuse .

Remarques :

- La relation (3.4) représente une ligne droite sur le plan $\hat{C}^i$ vs S_g si la composition des phases est constante.
- Dans le présent chapitre, seules les fractions volumiques seront utilisées, nous omettrons le symbole « chapeau » au dessus de c et C afin de simplifier les notations.

Selon la loi du mélange idéal, les densités des phases disparaissent dans les équations (2.3a) en remplaçant les fractions molaires par les fractions volumiques. Divisons les équations (2.3a) par ρ^i , on obtient dans un espace mono-dimensionnel :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} \left(\sum_{j=g,l} c_j^i S_j \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\sum_{j=g,l} c_j^i v_j \right) = 0, \quad i = \overline{1, N} \quad (3.5)$$

Où v_j est la vitesse d'écoulement de la phase j donnée par la loi de Darcy :

$$v_j = -\frac{K k_{rj}}{\mu_j} \frac{\partial P}{\partial x}, \quad j \in \{g, l\} \quad (3.6)$$

3.2.2 Introduction des débits fractionnaires

Nous introduisons les débits fractionnaires comme suit :

$$v_j = f_j v, \quad j \in \{g, l\} \quad (3.7)$$

Où f_j est le débit fractionnaire de la phase j défini comme $f_j = v_j/v$, avec v la vitesse totale $v = v_g + v_l$. Les débits fractionnaires sont données par :

$$f_j = \frac{\lambda_j}{\sum_{j=g,l} \lambda_j} \quad \text{et} \quad \lambda_j = \frac{k_{rj}}{\mu_j} \quad (3.8)$$

Au final, les équation du bilan de masse auront la forme simplifiée suivante :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} \left(\sum_{j=g,l} c_j^i S_j \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(v \sum_{j=g,l} c_j^i f_j \right) = 0, \quad i = \overline{1, N} \quad (3.9)$$

A partir de Eq.(3.1), pour un mélange idéal, la somme des concentrations est égale à 1. Additionnons (3.9) on obtient :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} (S_g + (1 - S_g)) + \frac{\partial}{\partial x} (v[f_g + (1 - f_g)]) = 0 \quad (3.10)$$

Ou

$$\frac{\partial v}{\partial x} = 0, \quad \text{donc} \quad v = v(t) \quad (3.11)$$

Ainsi, la vitesse d'écoulement totale ne varie pas dans l'espace. On accepte qu'elle est tout simplement constante.

3.2.3 Forme adimensionnelle

Les équations (3.9) peuvent être écrites sous forme adimensionnelle en introduisant les variables adimensionnelles suivantes :

$$x_D = \frac{x}{L}, \quad t_D = \frac{v_{inj} t}{\phi L}, \quad v_D = \frac{v}{v_{inj}} \quad (3.12)$$

Où L est la longueur caractéristique (la longueur du réservoir), v_{inj} est la vitesse d'écoulement du fluide injecté.

Sous l'hypothèse d'un mélange idéal, la vitesse d'écoulement totale est constante et égale à la vitesse d'injection ($v_D = 1$). Les équations de bilan de masse (adimensionnelles) finales sont données par :

$$\frac{\partial C^i}{\partial t_D} + \frac{\partial F^i}{\partial x_D}, \quad i = \overline{1, N} \quad (3.13)$$

Où C^i et F^i sont la concentration totale et le débit fractionnaire total du composant i respectivement, définis par (pour $i = \overline{1, N}$) :

$$C^i = \sum_{j=g,l} c_j^i S_j, \quad F^i = \sum_{j=g,l} c_j^i f_j \quad (3.14)$$

Les équations (3.13) peuvent être appliquées pour tout le domaine et l'équivalence entre les fluides réels et fictifs est assuré par les conditions d'équivalences (2.6a) définies auparavant. Le modèle (3.13) est appelé *Le modèle canonique* dans la théorie des écoulements diphasiques miscibles.

3.3 Le déplacement diphasique d'un mélange ternaire

Les mélanges ternaire à température et pression constantes présentent un intérêt particulier . Des tels systèmes sont basiques dans la théorie de la récupération assistée du pétrole (EOR). La technique EOR consiste à injecter un gaz monophasique dans un réservoir d'huile dans le but de : (i) le mélanger avec l'huile afin de modifier les propriétés de ce dernier (réduire sa viscosité), (ii) maintenir la pression à un niveau constant suffisant pour pousser l'huile vers le puits de production, (iii) déplacer mécaniquement l'huile à partir des puits injecteurs aux puits producteurs. La pression presque constante est imposée par la technique. La température constante est une propriété naturelle des réservoirs souterrains (à l'exception des cas où l'on injecte de la chaleur).

3.3.1 Les diagrammes de phases ternaires

3.3.1.1 Diagramme de phases de Gibbs

L'équilibre gaz-liquide d'un mélange de trois composants à température et pression constantes est souvent représenté sur un triangle équilatéral. Sa hauteur est égale à l'unité. Pour un point arbitraire M , les fractions volumiques des trois composantes sont données par trois hauteurs abaissées de ce point sur les trois côtés du triangle(Fig.3.1a). Considérons un système ternaire contenant : deux phases (gaz et liquide

ou huile), et trois composants (1) le composant léger , (2) le composant intermédiaire et (3) le composant lourd . Pour des conditions isothermes et presque isobares ($P, T = \text{const}$) ,ce système peut être décrit par des diagrammes de phases ternaires.

3.3.1.2 Diagramme de phase cartésien

Les diagrammes ternaires de Gibbs sont utilisés en ingénierie. Dans la théorie, on préfère utiliser les diagrammes ternaires cartésiens qui peuvent être facilement obtenus à partir des diagrammes de Gibbs par des transformations linéaires (rotation et inclinaison).

Deux axes de ce triangle représentent la fraction volumique totale du composant léger et du composant intermédiaire. La fraction du troisième composant (lourd) est calculée le long de la la ligne bissectrice de l'angle droit. L'origine de l'axe C^3 est placé sur l'hypoténuse du triangle. Fig.3.1b.

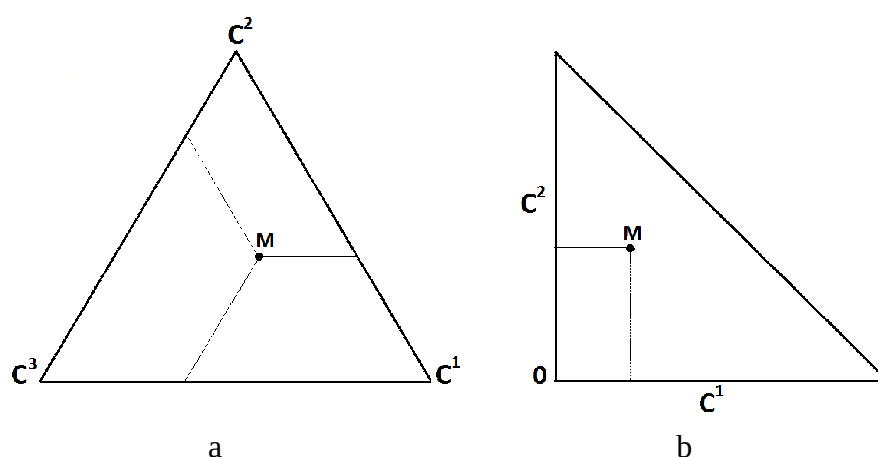


FIGURE 3.1 – -a- diagramme de phases de Gibbs ; -b- diagramme de phase cartésien

La structure interne des diagrammes ternaires est représentée sur la Fig.3.2. Elle comprend la zone diphasique qui sépare les zones monophasiques liquide et gaz. La zone d'une forte concentration de composant léger 1 et faible présence des composants lourds et intermédiaire correspond à l'état gazeux. La zone de domination du composant lourd 3 correspond à l'état liquide . Un point de l'enveloppe représente le point critique (P_{cr}). Au-dessus de ce point, le fluide est à l'état supercritique. l'emplacement de la zone diphasique change à l'intérieur du triangle en fonction de : la nature chimique des composants , la pression et la température .

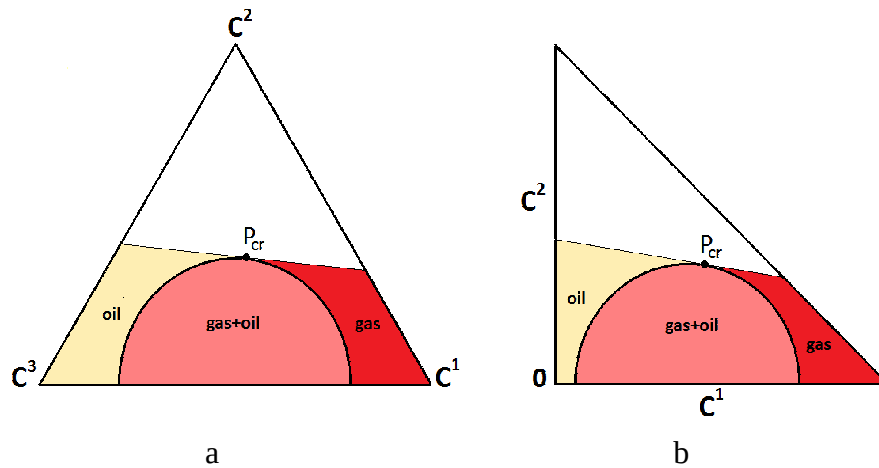


FIGURE 3.2 – Structure interne des diagrammes ternaires : -a- diagramme de phases de Gibbs ; -b- Diagramme de phase cartésien

3.3.2 Composition de phases

Le nombre de paramètre thermodynamique qui caractérise un état d'équilibre est appelé : *variance*.

La variance v d'un système diphasique de N composants est donnée par la règle de Gibbs.

$$v = \text{nombre de variables thermodynamiques} - \text{nombre d'équations}$$

- Les équations qui décrivent l'équilibre diphasique sont :
 - N équations d'équilibre de phase (le potentiel chimique du i -ème composant dans le gaz est égal au potentiel chimique de ce composant dans le liquide (pour chaque composant) ;
 - 2 équations de "normalisation" : la somme de toutes les concentrations dans le gaz égale à 1 ; la somme de toutes les concentrations dans le liquide égale à 1.
- Les variables thermodynamiques qui entrent dans ce système sont : $P, T, \{c_g^i\}_{i=1}^N$ et $\{c_l^i\}_{i=1}^N$.

La variance donc est donnée par la relation :

$$v = (2N + 2) - (N + 2) = N \quad (3.15)$$

Dans un système avec $P, T = \text{const}$, les seules variables qui peuvent changer sans changer le nombre de phases sont les concentrations de phases :

$$v = N - 2 \quad (3.16)$$

Pour un système ternaire $v = 1$, c.à.d un seul paramètre est responsable de la composition des phases et toutes les autres variables thermodynamiques dépendent de ce paramètre. Nous désignerons ce paramètre par α .

Le paramètre α peut être défini comme l'une des concentrations de phases c_g^i ou c_l^i ou une combinaison entre eux. Cela signifie qu'une concentration de phase peut varier tout en gardant l'état d'équilibre diphasique. Ainsi, l'injection d'un gaz ternaire dans une huile ternaire peut conduire à une variation de la composition d'huile.

A partir de (3.4), la relation entre les concentrations totales et les concentrations de phase est donnée par (pour $i = \overline{1,3}$) :

$$C^i = c_g^i S_g + c_l^i (1 - S_g) \quad (3.17)$$

Il est possible d'éliminer S_g par une simple transformation arithmétique et d'obtenir la relation entre C^1 et C^2 :

$$C^2 = \alpha C^1 + \beta \quad (3.18)$$

Où

$$\alpha \equiv \frac{c_g^2 - c_l^2}{c_g^1 - c_l^1}, \quad \beta \equiv c_l^2 - c_l^1 \alpha = \frac{c_g^1 c_l^2 - c_l^1 c_g^2}{c_g^1 - c_l^1} \quad (3.19)$$

Cela signifie que pour une composition de phase fixe, la dépendance entre C^2 et C^1 est linéaire. Cela correspond sur le diagramme de phase à une ligne droite MN qui passe par la zone diphasique (Fig.3.3). Une telle ligne de composition constante est appelée : *tie line*.

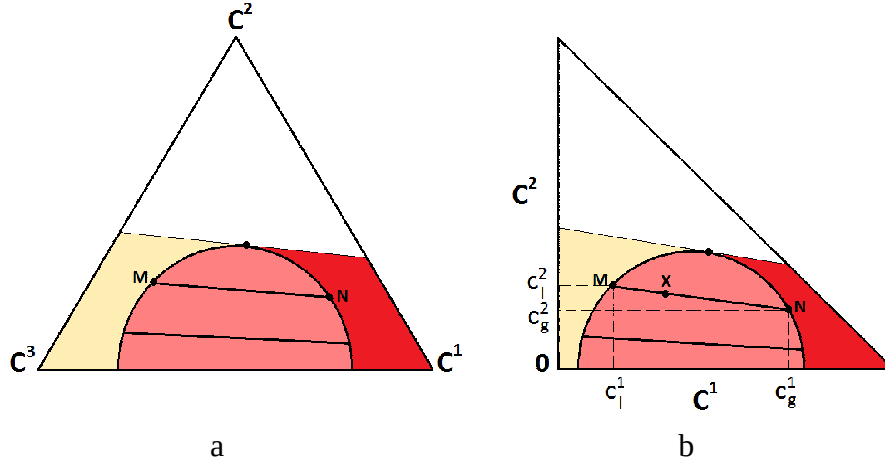


FIGURE 3.3 – Tie Lines

Tous les points placés sur une tie line MN ont une même composition de la phase liquide qui correspond au point M et une même composition de la phase gazeuse qui correspond au point N . Plus la tie line est proche du point critique plus la différence entre la composition du liquide et du gaz est faible. La dernière tie line touche l'enveloppe au point critique (la dernière tie line est un point).

A partir de Eq.(3.17), la saturation du gaz peut être déterminée par :

$$S_g = \frac{C^1 - c_l^1}{c_g^1 - c_l^1} \quad (3.20)$$

Pour une composition de phase fixe, la saturation en gaz varie proportionnellement à la concentration totale du composant léger. Ainsi, la saturation est variable le long d'une tie line.

Pour un point arbitraire X à l'intérieur du domaine diphasique (Fig.3.3), le numérateur dans (3.20) correspond au segment XM , tandis que le dénominateur correspond au NM et on trouve : $S_g = \frac{XM}{NM}$.

3.3.2.1 Paramètre responsable de la composition de phase (α)

Les paramètres α et β dans (3.18) dépendent uniquement de la composition de phase et pas de la composition totale. Ils correspondent à la tangente d'une tie line et le point d'intersection avec l'axe vertical sur le diagramme ternaire respectivement.

Le paramètre α peut être positif ou négatif en fonction des composants. La valeur $|\alpha|$ est plus grande pour tie-line 1 que pour tie-line 2 (Fig.3.4).

Lorsque la valeur $|\alpha|$ augmente, le gaz devient plus lourd tandis que le liquide devient plus léger, comme le montre Fig.3.4. Cela signifie que le système se rapproche du point critique quand $|\alpha|$ augmente.

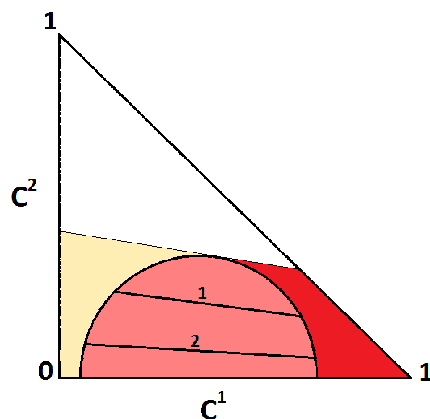


FIGURE 3.4 – Comparaison entre deux tie lines

La valeur maximale de $|\alpha|$ correspond à la dernière tie line tangente à l'enveloppe diphasique au point critique.

A partir de Eq.(3.16), la variance du mélange ternaire à P, T fixe est égale à 1, cela veut dire qu'une seule variable décrivant la composition de phase est indépendant. Il est possible de choisir α ou $|\alpha|$ comme variable indépendante.

Le paramètre β aussi doit être fonction de α : $\beta = \beta(\alpha)$. Cette fonction est appelée : *la fonction de répartition*.

Habituellement, la construction du système des tie-lines se fait de tel sorte que l'augmentation de $|\alpha|$ s'accompagne avec l'augmentation de β comme le montre la figure 3.4. En outre, la tie-line horizontale est placée sur l'axe horizontal c.à.d $\beta = 0$ lorsque $\alpha = 0$. Cela signifie que la fonction de répartition $\beta = \beta(\alpha)$ est monotone croissante et passe par zéro.

Nous allons approcher cette fonction par une ligne droite :

$$\beta = -\gamma\alpha, \quad \gamma = \text{const} > 0 \quad (3.21)$$

Dans la majorité des cas, ce coefficient est supérieur à 1 :

$$\gamma > 1 \quad (3.22)$$

Eq.(3.22) signifie qu'une faible variation de α conduit à des variations importantes de β .

3.3.3 La théorie classique de construction de la solution

3.3.3.1 Problème de Riemann

Les équations de conservation pour un système de trois composants sont les suivantes :

$$\frac{\partial C^1}{\partial t_D} + \frac{\partial F^1}{\partial x_D} = 0 \quad (3.23a)$$

$$\frac{\partial C^2}{\partial t_D} + \frac{\partial F^2}{\partial x_D} = 0 \quad (3.23b)$$

Avec

$$C^i = c_g^i S_g + c_l^i (1 - S_g) \quad (3.24a)$$

$$F^i = c_g^i f_g + c_l^i (1 - f_g) \quad (3.24b)$$

L'équation (3.18) détermine la relation linéaire entre deux concentrations totales le long d'une tie line. Une relation similaire entre F^1 et F^2 peut être obtenue en éliminant f_g des deux relations (3.24b)

$$F^2 = \alpha F^1 + \beta \quad (3.25)$$

Nous considérons le problème de déplacement où nous devons spécifier la composition initiale du fluide en place (indice « *init* ») et la composition du fluide injecté (indice « *inj* ») :

$$C^1|_{t_D=0} = C_{init}^1, \quad C^2|_{t_D=0} = C_{init}^2 \quad (3.26a)$$

$$C^1|_{x_D=0} = C_{inj}^1, \quad C^2|_{x_D=0} = C_{inj}^2 \quad (3.26b)$$

A l'instant initial, ces conditions sont incompatibles au point d'injection $x_D = 0$. En d'autres termes, ces conditions imposent le choc initial de la concentration totale. Ce choc sera ensuite transporté par l'écoulement du fluide et probablement modifié ou même décomposé en plusieurs chocs. Le système d'équations (3.23) complété par les conditions (3.26) forment : *le problème de Riemann*.

Le système canonique (3.23) a d'autres formes équivalentes qui peuvent être utilisées dans les sections suivantes. A partir de (3.18) et (3.25) on trouve :

$$\begin{cases} \frac{\partial C^1}{\partial t_D} + \frac{\partial F^1}{\partial x_D} = 0 \\ \frac{\partial \alpha C^1 + \beta}{\partial t_D} + \frac{\partial \alpha F^1 + \beta}{\partial x_D} = 0 \end{cases} \quad (3.27)$$

En différenciant la deuxième équation par parties et en la soustrayant de la première, on obtient :

$$\begin{cases} \frac{\partial C^1}{\partial t_D} + \frac{\partial F^1}{\partial x_D} = 0 \\ \frac{\partial \alpha}{\partial t_D} + W \frac{\partial \alpha}{\partial x_D} = 0, \quad W \equiv \frac{F^1 + \dot{\beta}}{C^1 + \dot{\beta}} = \frac{F^1 - \gamma}{C^1 - \gamma} \end{cases} \quad (3.28)$$

Avec $\dot{\beta} \equiv \frac{d\beta}{d\alpha}$.

3.3.3.2 Le débit fractionnaire total

Le comportement du processus est déterminé par la structure des fonctions F^1 qui dépendent de la composition de phase (paramètre α) et de la saturation en gaz S_g . Au lieu de la saturation en gaz, qui n'entre pas explicitement dans les équations (3.28), nous pouvons introduire la concentration totale C^1 en utilisant la relation (3.20). Ainsi F^1 sera fonction de α et C^1 .

Pour une composition de phase fixe, F^1 est une fonction linéaire de f_g , sa structure est présentée sur Fig.3.5.

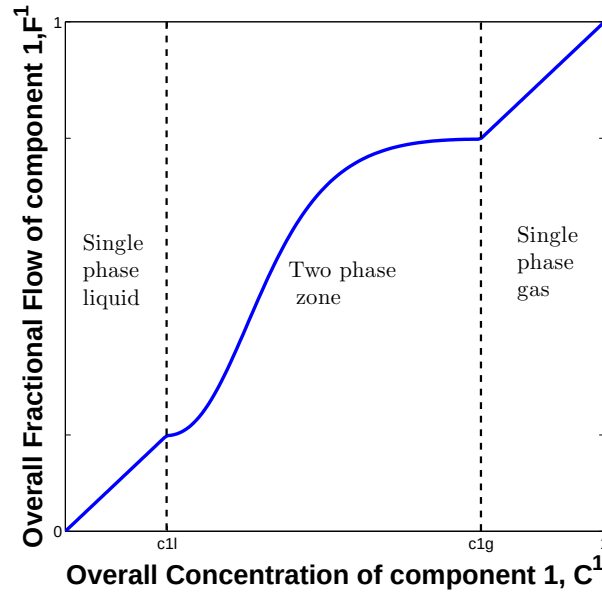


FIGURE 3.5 – Représentation graphique du débit fractionnaire total

A l'intérieure des zones monophasiques, on trouve à partir de (3.24) :

- Pour $S_g = 0 \Rightarrow f_g = 0 \Rightarrow F^1 = c_l^1 = C^1$
- Pour $S_g = 1 \Rightarrow f_g = 1 \Rightarrow F^1 = c_g^1 = C^1$

Dans ce cas, la dépendance entre F^1 et C^1 est linéaire (la diagonale sur Fig.3.5).

Considérons deux compositions de phase différentes représentées par deux tie-lines «1» et «2» sur Fig.3.6.

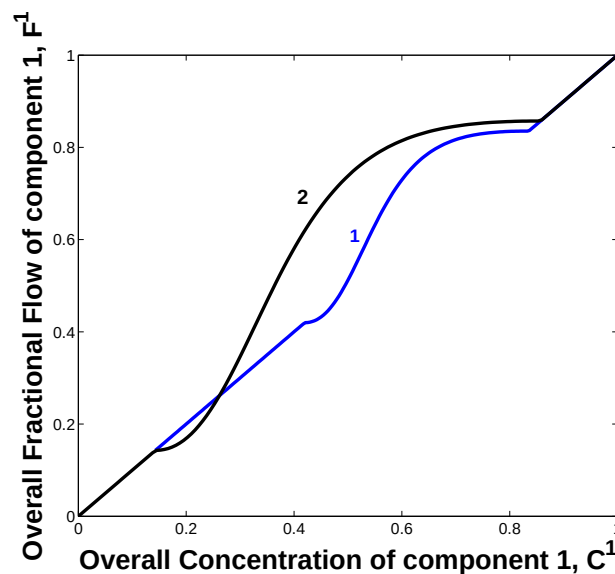


FIGURE 3.6 – Débit fractionnaire total de deux différentes compositions de phase

Lorsque les tie-lines s'approchent du point critique, la zone diphasique devrait se contracter sur la courbe $F^1(C^1)$. Les fluides critiques et supercritiques sont représentés par une diagonale .

3.3.3.3 Le comportement constant par morceaux de la composition de phases

La deuxième équation (3.28) est linéaire si nous supposons que le paramètre W est indépendant des concentrations de phases. Dans ce cas, la solution de cette équation est une valeur constante. Si la solution est discontinue, elle sera constante par morceaux.

Nous supposons que le comportement par morceaux de la composition de phase (paramètre α) est observé dans tous les cas. Cela nous permet de considérer un nombre limité de courbes $F^1(C^1)$ qui correspondent aux différentes valeurs de α .

Le comportement constant par morceaux de la composition de phases signifie que les tie-lines sont reliées les unes aux autres uniquement par l'intermédiaire des chocs, ce qui simplifie considérablement la construction de la solution.

3.3.3.4 Équations des chocs

La solution du problème considéré contient le choc initial. Son évolution dans le temps et dans l'espace représente un grand intérêt comme il représente le front de déplacement de l'huile par le gaz. Les équations différentielles de conservation de masse ne sont pas valides au voisinage, donc il est nécessaire de les écrire sous une autre forme. Ces équations sont appelées les « *les conditions de Rankine-Hugoniot* ». Elles peuvent être obtenues en utilisant la règle mnémonique suivante :

Si l'équation différentielle de transport est donnée par :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial F}{\partial x} = 0 \quad (3.29)$$

Alors, les conditions de Rankine-Hugoniot associées à ce transport sont :

$$\Lambda_s = \frac{(F^- - F^+)}{(C^- - C^+)} \quad (3.30)$$

Où Λ_s est la vitesse réelle du choc.

Par analogie, on obtient à partir de Eq.(3.28) (ou (3.27)) :

$$\Lambda_s = \frac{(F^{1-} - F^{1+})}{(C^{1-} - C^{1+})} \quad (3.31a)$$

$$\Lambda_s = \frac{([\alpha^- F^{1-} + \beta^-] - [\alpha^+ F^{1+} + \beta^+])}{([\alpha^- C^{1-} + \beta^-] - [\alpha^+ C^{1+} + \beta^+])} \quad (3.31b)$$

Condition de stabilité ou d'entropie

Pour qu'un choc soit stable, il faut qu'il soit attaché à une onde de raréfaction. La condition de stabilité est donnée par :

$$\Lambda_s = \frac{\partial F^1}{\partial C^1} |^-, \quad \text{Pour une onde simple derrière le choc} \quad (3.32a)$$

$$\Lambda_s = \frac{\partial F^1}{\partial C^1} |^+, \quad \text{Pour une onde simple devant le choc} \quad (3.32b)$$

3.3.3.5 Catégorie des chocs admissibles

En respectant les conditions d'Hugoniot et de stabilité, seuls deux types de chocs sont autorisés :

- **C-choc** : la concentration C^1 est discontinue à travers ce choc, mais la composition de phase α est continue.
- **C α -choc** : la concentration totale C^1 et la composition de phase α sont discontinues.

3.3.3.6 C-choc

Soit α continu à travers le choc : $\alpha^+ = \alpha^- \Rightarrow \beta^+ = \beta^-$.

A partir de la condition (3.31b) :

$$\Lambda_s \alpha^- (C^{1-} - C^{1+}) = \alpha^- (F^{1-} - F^{1+}) \quad (3.33)$$

C'est la même que (3.31a).

Donc un C-choc est déterminé par une seule condition d'Hugoniot :

$$\Lambda_s = \frac{F^{1-} - F^{1+}}{C^{1-} - C^{1+}} \quad (3.34)$$

et une condition de stabilité (3.32a) ou (3.32b).

Interprétation graphique : Pour une composition de phase α fixe, un C-choc est représentée par la droite qui coupe la courbe $F^1(C^1)$ en deux points «+» et «-» (Fig.3.7). La condition de stabilité impose que cette droite soit tangente à la courbe $F^1(C^1)$ aux points «+» ou «-».

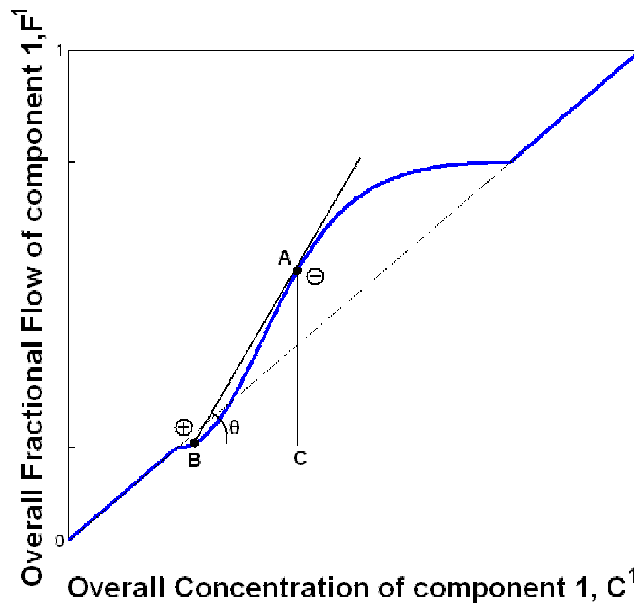


FIGURE 3.7 – Interprétation graphique d'un C-choc

- Les coordonnées horizontales de ces points donnent les concentrations totales C^{1-} et C^{1+} derrière et devant ce choc.
- La tangente de cette ligne ($tg\theta$) est égale à la vitesse adimensionnelle de choc Λ_s .

Démonstration :

Supposons que les points A et B correspondent aux points derrière et devant le choc respectivement. Construisons le triangle ABC . Il s'en suit que :

$$tg\theta = \frac{AC}{CB} = \frac{F^{1-} - F^{1+}}{C^{1-} - C^{1+}} \quad (3.35)$$

Cela correspond à la partie droite de l'équation (3.34). A partir de la même équation, $tg\theta$ est égale à Λ_s . Du fait que la ligne AB est tangente à la courbe $F^1(C^1)$ au point $(-)$, cela donne la condition de stabilité (3.32a).

Il s'agit du choc classique de Buckley-Leverett décrivant le déplacement purement mécanique.

Remarques :

Dans plusieurs situations le C -choc ne peut pas être tangent à la courbe $F^1(C^1)$. Ceci n'est acceptable que dans le cas où toutes les autres possibilités ne peuvent être vérifiées.

3.3.3.7 $C\alpha$ -choc

Soit α discontinu à travers le choc : $\alpha^+ \neq \alpha^-$. Multiplions (3.31a) par α^+ et soustrayons de (3.31b) :

$$\Lambda_s([\alpha^- - \alpha^+]C^{1-} + [\beta^- - \beta^+]) = ([\alpha^- - \alpha^+]F^{1-} + [\beta^- - \beta^+]) \quad (3.36)$$

ou

$$\Lambda_s(C^{1-} + C_p) = (F^{1-} + C_p), \quad C_p = \frac{\beta^+ - \beta^-}{\alpha^- - \alpha^+} \quad (3.37)$$

En utilisant (3.21) on obtient :

$$C_p = \frac{\beta^+ - \beta^-}{\alpha^- - \alpha^+} = \frac{-\gamma\alpha^+ + \gamma\alpha^-}{\alpha^- - \alpha^+} = \gamma \quad (3.38)$$

Les propriétés de γ sont données par (3.21) et (3.22).

Donc un $C\alpha$ -choc est déterminé par deux conditions d'Hugoniot :

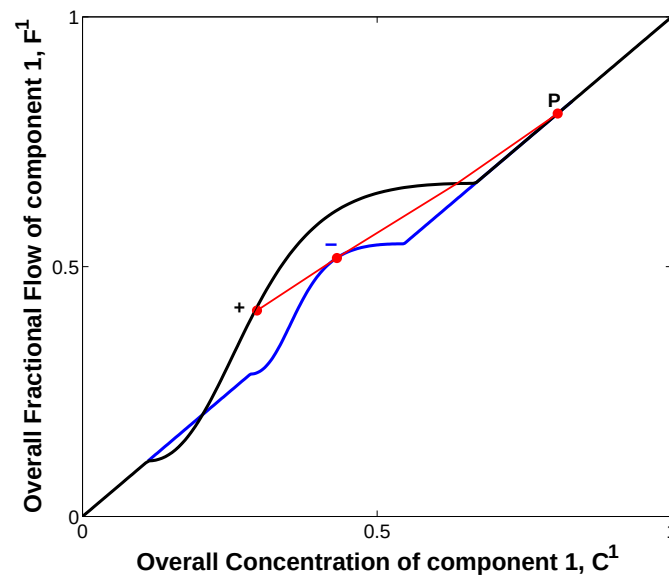
$$\Lambda_s = \frac{F^{1-} - F^{1+}}{C^{1-} - C^{1+}} \quad (3.39a)$$

$$\Lambda_s = \frac{F^{1-} - C_p}{C^{1-} - C_p}, \quad C_p \equiv \frac{\beta^+ - \beta^-}{\alpha^- - \alpha^+} = \gamma > 0, \quad \gamma > 1 \quad (3.39b)$$

et une condition de stabilité (3.32a) ou (3.32b).

- La première condition (3.39a) signifie que le choc correspond à une ligne droite qui traverse les courbes F^1 vs C^1 en deux points (–) et (+). Il est clair que ces points doivent être situés sur deux courbes différentes.
- La deuxième condition (3.39b) signifie que cette même ligne passe par le point $P = (C_p, C_p)$. Ce point est situé sur la diagonale et à l'extérieur du diagramme, tel que $C_p = \gamma > 1$.
- la condition (3.39a) ou (3.39b) signifie que cette ligne est tangente à la courbe $F^1(C^1, \alpha^-)$ lorsque le choc est précédé par une onde de raréfaction (Fig.3.8a), ou à la courbe $F^1(C^1, \alpha^+)$ lorsque le choc est suivi par une onde de raréfaction (Fig.3.8b).

Interprétation graphique : Prenons deux courbes $F^1(C^1, \alpha^+)$ et $F^1(C^1, \alpha^-)$ qui correspondent à des compositions de phase différentes et qui représentent les compositions derrière et devant le choc examiné (Fig.3.8).



a

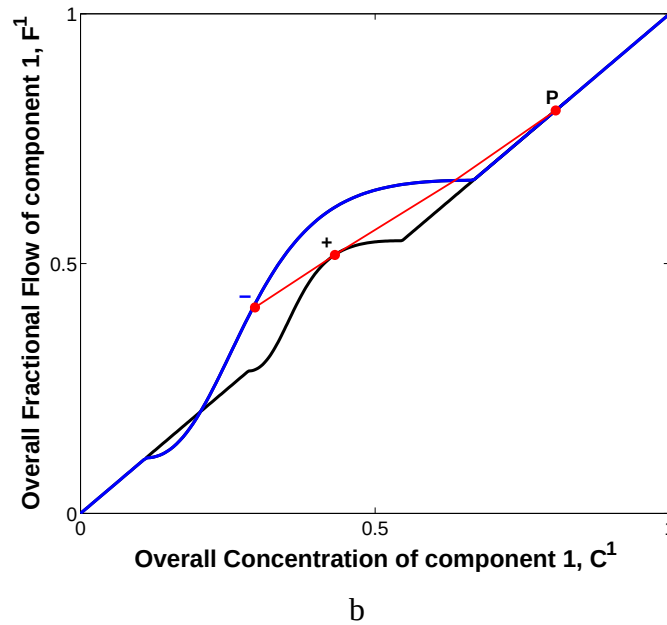


FIGURE 3.8 – Interprétation graphique d'un $C\alpha$ -choc : -a- l'onde de raréfaction est devant le choc ; -b- l'onde de raréfaction est derrière le choc

Le $C\alpha$ -choc est représenté par une ligne droite qui :

- Coupe la courbe $F^1(C^1, \alpha^+)$ en un point qui détermine les paramètres devant le choc ;
- Coupe la courbe $F^1(C^1, \alpha^-)$ en un point qui détermine les paramètres derrière le choc ;
- Coupe le "pole" $P = (F^1, C^1) = (C_p, C_p)$ placé sur la diagonale à l'extérieur du diagramme.

Remarques :

1. La construction graphique introduit un nouveau point appelé : *le Pole* :

$$P = (C_p, C_p) \quad (3.40)$$

2. Le $C\alpha$ -choc est tangent à la courbe $F^1(C^1)$ de la tie-line la plus courte.

3.3.3.8 Choc de transition de phase

Un choc de transition de phase est un choc qui traverse la surface qui sépare un fluide diphasique d'un fluide monophasique (situé loin de la zone diphasique) sur le diagramme de phase. Un tel fluide monophasique a une composition différente de celle requise par les conditions d'équilibre.

Si on considère le cas particulier d'injection d'un gaz léger dans un réservoir contenant de l'huile et du gaz riche, ce fluide monophasique injecté est dit en déséquilibre ou sur-saturé en composants légers ou sous-saturés en composants lourds.

Le contact d'un gaz sur-saturé avec un fluide diphasique conduit à une transition de phase au niveau de la surface de contact. C'est pourquoi ces surfaces sont appelés : les fronts (ou chocs) de *transition de phase*.

Les chocs de transition de phase possèdent des propriétés particulières qui ne sont pas équivalentes à celles des C-chocs ou $C\alpha$ -choc.

On distingue deux types :

- Le choc de vaporisation : le contact d'un gaz monophasique sur-saturée avec un fluide diphasique.
- Le choc de condensation : le contact d'un gaz monophasique sous-saturée avec un fluide diphasique.

Conditions d'Hugoniot pour un choc de transition de phase Soit un choc qui sépare un gaz pur derrière «-» d'un mélange diphasique devant «+». Il s'agit d'un choc de vaporisation. Deux différentes conditions peuvent être satisfaites au niveau de ce choc :

1. Le gaz monophasique «-» est situé sur l'extention de la tie-line qui représente la composition de système diphasique «+». Si une telle tie-line existe, on écrit :

$$C^{2-} = \alpha^+ C^{1-} + \beta^+ \quad (3.41)$$

2. La vitesse adimensionnelle du choc est égale à l'unité si une telle tie line n'existe pas :

$$\Lambda_s = 1 \quad (3.42)$$

Démonstration :

- Pour le gaz monophasique (-) on a : $F^{1-} = C^{1-}$ et $F^{2-} = C^{2-}$. Alors , au lieu des conditions générales d'Hugoniot (3.31) on peut obtenir par analogie :

$$\begin{aligned} \Lambda_s(C^{1-} - C^{1+}) &= (C^{1-} - F^{1+}) \\ \Lambda_s(C^{2-} - \alpha^+ C^{1+} - \beta^+) &= (C^{2-} - \alpha^+ F^{1+} - \beta^+) \end{aligned} \quad (3.43)$$

(noter que $C^{2-} \neq (\alpha^- C^{1-} + \beta^-)$ comme cet état est monophasique).

- multiplions la première équation par α^+ et soustrayons de la deuxième, on obtient :

$$\begin{aligned}\Lambda_s(\beta^+ - C^{2-} + \alpha^+ C^{1-}) &= (\beta^+ - C^{2-} + \alpha^+ C^{1-}) \\ (\Lambda_s - 1)(C^{2-} - \alpha^+ C^{1-} - \beta^+) &= 0\end{aligned}\tag{3.44}$$

A partir de ces relations, on déduit soit (3.41) ou (3.42).

La représentation graphique d'un choc de transition de phase sur la courbe F^1 vs C^1 est montrée sur Fig.3.11

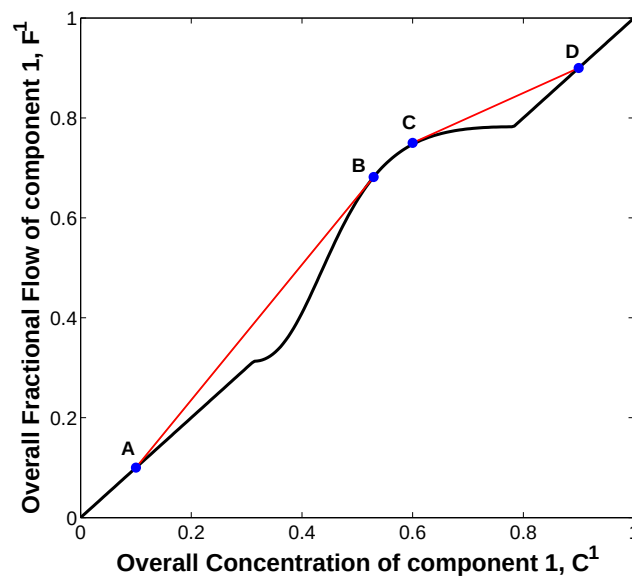


FIGURE 3.9 – Choc de transition de phase : AB entre un liquide et un fluide diphasique ; CD entre un gaz et un fluide diphasique

3.3.3.9 Construction de la solution

Prenons l'injection d'un gaz sec composé essentiellement des composants légers, représenté par le point A sur Fig.??, dans une huile monophasique à l'état initial B.

Les deux points A et B sont situés sur l'extension de deux tie lines α^{init} et α^{inj} . Ce diagramme détermine la composition totale des deux fluides.

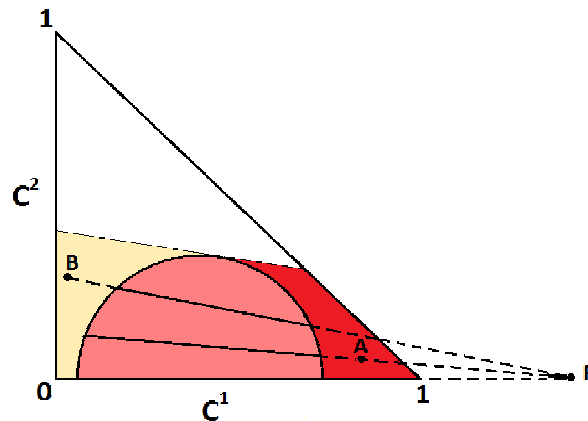


FIGURE 3.10 – Problème de déplacement par un gaz sec : A gaz injecté ; B h'huile initiale

Les deux courbes de fractional flow pour les deux valeurs de α sont supposé donnés, ils sont présentés sur Fig.3.11.

La fonction $\beta(\alpha)$ peut être construite et estimée par la ligne droite (3.21). Donc le paramètre γ est déterminé.

Algorithme de construction de la solution : La trajectoire de la solution doit relier les points initial et d'injection.

Pour construire une solution à ce problème, il suffit de déterminer les chocs entre les différentes tie lines, et si oui ou non ces chocs sont reliés par des ondes de raréfaction le long de la même tie line.

La variation le long de la même tie-line doit satisfaire la gègle de vitesse « *la composition la plus rapide doit se trouver en aval de la plus lentes* ». Lorsque cette règle n'est pas respectée, des chocs sont nécessaires.

Tout choc doit satisfaire au même temps les conditions d'Hugoniot la condition d'entropie (stabilité) . Un choc qui satisfait la contrainte d'entropie doit avoir une vitesse égale à la vitesse d'onde $\frac{\partial F^1}{\partial C^1}$ sur un côté du choc.

1. Tracer les éléments structurels généraux :

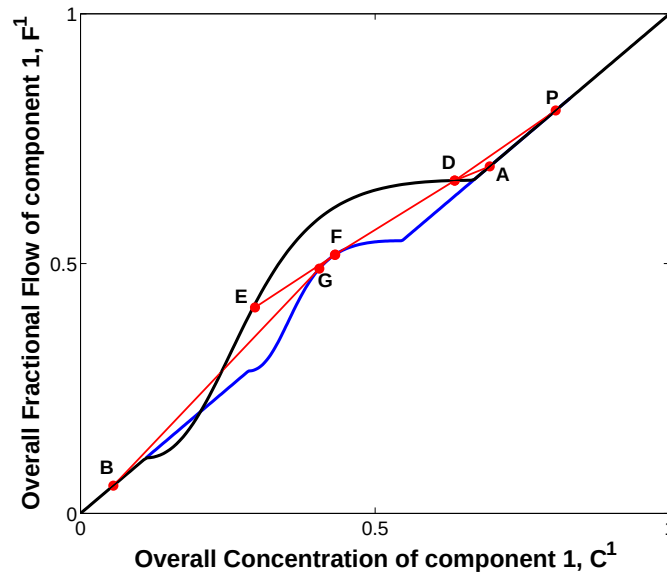


FIGURE 3.11 – Construction graphique de la solution du problème de déplacement par un gaz sec

- Tracer les points A et B sur le diagramme $F^1(C^1)$, comme montré sur Fig.3.11.
- Tracer le pôle P en utilisant (3.40).
- Tracer la ligne droite PF qui est tangente à la courbe initiale et coupe la courbe d'injection au point D . Cette ligne correspond au $C\alpha$ - choc.

La ligne tangente à la courbe d'injection est interdite car elle ne peut pas traverser la deuxième courbe, ce qui n'est pas conforme à l'image graphique d'un $C\alpha$ -choc.

À cette étape, notre objectif n'est pas de déterminer immédiatement l'emplacement de $C\alpha$ -choc, mais de déterminer les éléments de base de la structure de la solution.

2. Tracer le premier choc après le point d'injection. On commence à sélectionner les différentes possibilités en rejetant les variantes qui sont interdites. Ainsi, la sélection se fait par la méthode des « *trials and errors* » :
 - Supposons que le premier segment est l'onde de raréfaction allant du point A . Si on se déplace le long de la courbe noire AD , on ne respecte pas la contrainte de la vitesse. Ainsi, au lieu de ce segment, il est nécessaire d'introduire un choc.
 - Le premier choc sera le choc de transition de phase (vaporisation). Si ce choc est tangent à la courbe noire, donc il sera impossible après de changer de tie line. Ainsi, il sera impossible de retourner à la composition initiale.

- la dernière possibilité est de tracer ce choc à travers le point D . La ligne droite AD permet de déterminer tous les paramètres du choc de transition de phase. On remarque que la vitesse de ce choc est lent.
3. Le prochain élément de la solution peut être une onde de raréfaction le long de la courbe noire DE ou un $C\alpha$ -choc DF . Si nous passons le long de l'onde DE , on obtient une forte réduction de la vitesse de transport au point D , ce qui viole la contrainte de vitesse.

Ainsi, l'élément suivant de la solution sera le $C\alpha$ -choc DF . Cela ne peut pas être le choc DE comme la ligne droite qui correspond au $C\alpha$ -choc doit relier deux courbes $F^1(C^1)$ différentes.

4. La vitesse de ce choc augmente fortement au point D par rapport à la vitesse de choc AD . Cela signifie que, entre ces deux chocs, nous aurons un plateau.

Nous sommes maintenant situés sur la tie line initiale (la courbe bleue). Le déplacement se fera sans modification de la composition de phase.

5. Après le point F le mouvement le long de la courbe FG est autorisée, cela correspondra à l'onde de raréfaction.
6. A partir du point d'inflexion situé sur la courbe bleue, la vitesse de transport le long de cette courbe va diminuer, ce qui est interdit. Donc, nous devrions introduire le nouveau choc à la place de cette partie. Ce choc sera évidemment le C -choc (comme la composition de phase ne change pas) ou un choc de transition de phase (condensation). Si ce choc passe par le point B , alors c'est le choc de condensation. L'autre point de ce choc est le point de tangence de la droite venant de B avec la courbe bleue (point G).

Ainsi, le troisième choc est un choc de condensation et est présenté par la ligne GB . Le passage de l'onde de raréfaction au choc au Point G est lisse, cela signifie qu'il n'y a pas de plateau au point G .

Les profils de la concentration totale C^1 et de la saturation en liquide S_l sont présentés dans (Fig.3.12). (Le profil de la saturation de gaz a la même forme que celui de la concentration totale C^1).

Remarque :

- La courbe $ADFGB$ sur Fig.3.11 est appelée : « la trajectoire de la solution » ou « path ».
- La même trajectoire peut être facilement construits sur le diagramme de phase.

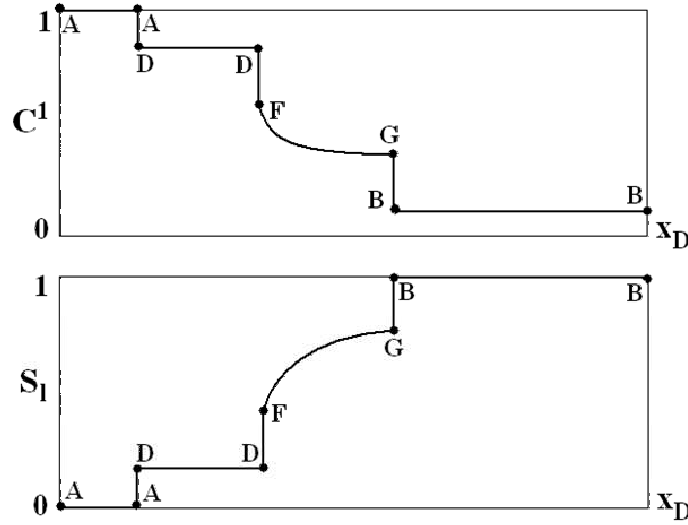


FIGURE 3.12 – Profile de la concentration totale C^1 et de la saturation en liquide S_l

3.4 La théorie analytique basée sur la méthode de saturations négatives

3.4.1 Modèle canonique

Lorsque la variation de la composition se produit le long d'une tie line, il s'agit de *tie line path*. Et comme la composition est constante le long d'une même tie line, la solution ne dépend que de la saturation S_g . Étant donné que les concentrations de phase sont des fonction constantes par morceaux, les tie lines sont reliés par des chocs.

Les équations (3.13) deviennent :

$$(c_g^i - c_l^i) \frac{\partial S_g}{\partial t_D} + (c_g^i - c_l^i) \frac{\partial f_g}{\partial x_D} = 0 \quad (3.45)$$

Et finalement on obtient :

$$\frac{\partial S_g}{\partial t_D} + \frac{\partial f_g}{\partial x_D} = 0 \quad (3.46)$$

Les conditions initiales et d'injection (3.23) prennent la forme :

$$S_g = S_{g,inj} \quad (x_D > 0) \quad (3.47)$$

$$S_g = S_{g,init} \quad (x_D \leq 0) \quad (3.48)$$

Où $S_{g,inj}$ et $S_{g,init}$ sont déterminés à partir de (3.20) et (3.26). La vitesse d'onde est tout simplement la vitesse de buckley-levrett $\left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g}\right)$.

En effet, résoudre un problème de déplacement se réduit à résoudre une équation de Buckley-Levrett sur chaque tie line, quel que soit le nombre de composants ou des phases, et un ensemble des conditions de Rankine-Hugoniot entre les tie lines.

Comme pour la méthode classique, la trajectoire de la solution est un ensemble des ondes de raréfaction et des chocs qui relient les points initial et d'injection.

3.4.2 Débit fractionnaire

Le comportement du processus est déterminée par la structure de la fonction f_g qui dépend de la saturation étendue en gaz S_g . Nous acceptons les valeurs négatives et les valeurs supérieures à 1 de la saturation qui correspondent aux fluides monophasiques liquide et gaz respectivement (Fig.3.13).

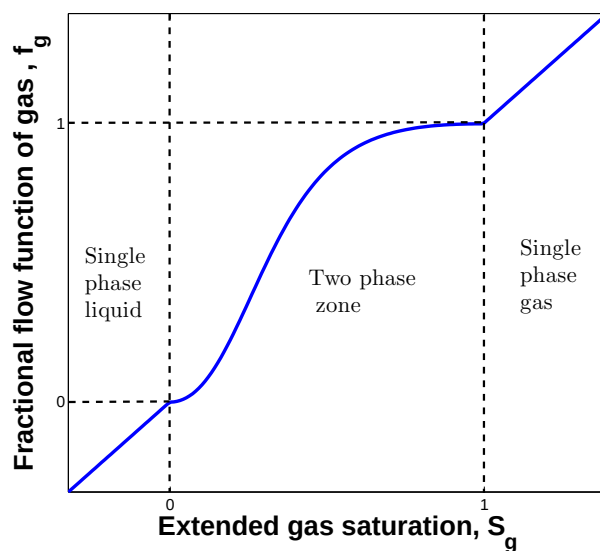


FIGURE 3.13 – Structure de la fonction de débit fractionnaire

Noter que maintenant, toutes les tie lines sont représentés par la même courbe f_g vs S_g .

3.4.3 Equations des chocs

La variation de la saturation le long des tie line paths doit respecter la règle de la vitesse, sinon des chocs sont nécessaires. Tout choc le long d'une même tie-line ou entre différentes tie-lines doit satisfaire en même temps les conditions d'Hugoniot du bilan de masse et la condition d'entropie.

$$\Lambda_s = \frac{f_g^- - f_g^+}{S_g^- - S_g^+} \quad (3.49)$$

et

$$\left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^- \leq \Lambda_s \leq \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^+ \quad (3.50)$$

En respectant ces contraintes, la solution contient deux types de chocs :

3.4.3.1 Chocs de transition de phase (ou C-choc)

les saturations initiale et d'injection sont représentées par les points *A* et *B* sur la courbe de débit fractionnaire $f_g(S_g)$ sur Fig.3.14. Tous les points clés, les onde et les chocs sont représentés sur la même courbe $f_g(S_g)$.

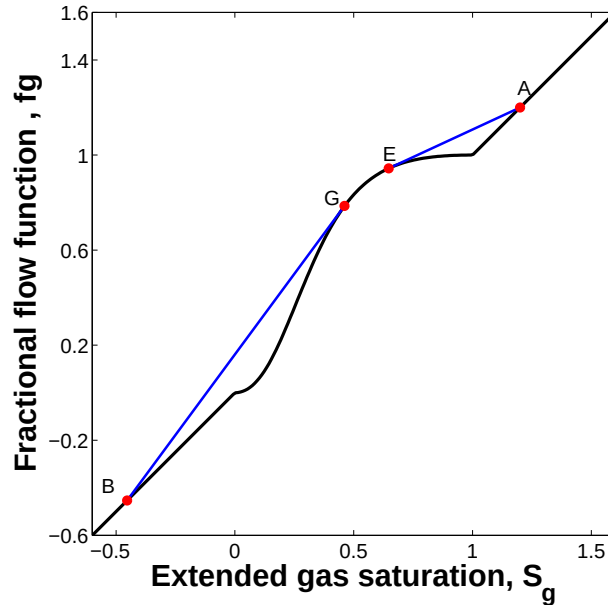


FIGURE 3.14 – Choc de transition de phases

La vitesse d'onde est égale à 1 pour une composition monophasique ($f_g = S_g$) et égale à zéro sur la limite entre la les zones monophasique et diphasique. Quelconque point à l'intérieur de la zone diphasique a une vitesse d'onde supérieure à zéro. Ainsi, une variation continue de point A au point B doit violer la contrainte de la vitesse et donc un choc doit se former.

Cela signifie que la trajectoire de la solution peut entrer ou quitter la région diphasique seulement via un choc (*chocs de transition de phase*).

D'après la contrainte d'entropie, souvent, un choc de transition de phase est un semi-choc (un choc tangent) avec une vitesse égale à la vitesse de buckley-levrett du point correspondant dans la zone diphasique (Fig.3.14)

$$\Lambda_s = \frac{f_g^- - f_g^+}{S_g^- - S_g^+} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right). \quad (3.51)$$

3.4.3.2 Les chocs intermédiaires (ou $C\alpha$ -chocs)

Deux tie lines α_1 et α_2 relié par un choc se croisent en un point P (voir [28],[29] et [30]). Les tie lines peuvent se croiser seulement en un point qui se trouve dans la zone monophasique. A partir de (3.20), ce point donne deux saturations par rapport à deux tie lines.

Réorganisant Eq.(3.6), les deux saturations sont données par :

$$S_g^{\alpha_1} = \frac{C_P^i - (c_l^i)^{\alpha_1}}{(c_g^i)^{\alpha_1} - (c_l^i)^{\alpha_1}} \quad \text{and} \quad S_g^{\alpha_2} = \frac{C_P^i - (c_l^i)^{\alpha_2}}{(c_g^i)^{\alpha_2} - (c_l^i)^{\alpha_2}} \quad i = 1, \dots, 3 \quad (3.52)$$

Le choc entre deux tie line relie deux points " D " sur la tie line α_1 et " F " sur la tie line α_2 (Fig.3.15), leur vitesse est donnée par :

$$\Lambda_s = \frac{(F^i)^F - (F^i)^D}{(C^i)^F - (C^i)^D} = \frac{S_g^{\alpha_1} - (f_g)^D}{S_g^{\alpha_1} - (S_g)^D} = \frac{S_g^{\alpha_2} - (f_g)^F}{S_g^{\alpha_2} - (S_g)^F} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^{F \text{ or } D} \quad (3.53)$$

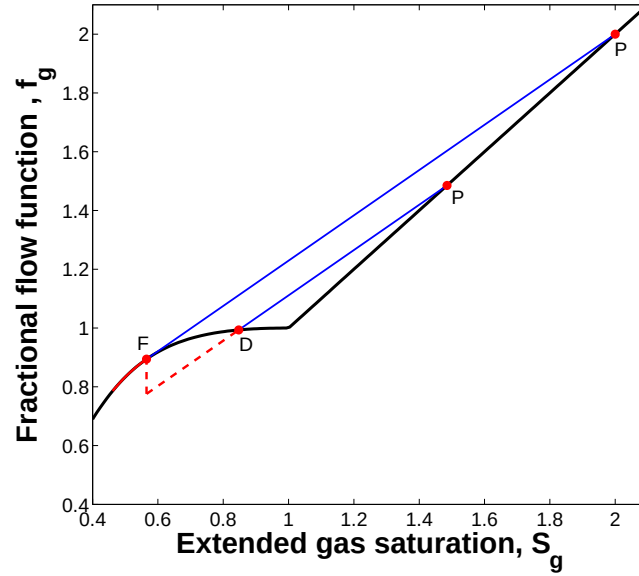


FIGURE 3.15 – Choc intermédiaire

3.4.4 Algorithme de construction de la solution

Nous considérons le même exemple d'injection d'un gaz sec, le point A sur Fig.3.16 dans une huile initiale monophasique (point B).

1. Tracer les éléments structurels généraux :

- Tracer les points A et B sur la courbe $f_g(S_g)$ comme le montre la Fig.3.16.
- Tracer les deux poles P_{inj} et P_{init} en utilisant (3.52).
- Tracer à partir de la plus grande valeur P_{inj} ou P_{init} une ligne tangente à la courbe $f_g(S_g)$ au point F. Dans notre cas, cela correspond à la ligne $P_{init}F$.
- Tracer à partir du point P_{inj} une ligne droite parallèle à $P_{init}F$ jusqu'au point D situé sur la courbe $f_g(S_g)$.

La ligne FD correspondent au $C\alpha$ -choc

2. La trajectoire de la solution entre ou quitte la zone diphasique via un choc. nous construisons à partir des points "A" et "B" deux semi-chocs dans la zone diphasique. les points correspondants sont "G" et "E" qui sont des points tangents. Les vitesses des deux chocs de transition de phases sont donnés par :

$$\Lambda_s^{BG} = \frac{S_g^B - f_g^G}{S_g^B - S_g^G} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^G \text{ Choc entre un liquide monophasique et un fluide diphasique} \quad (3.54)$$

Et

$$\Lambda^{AE} = \frac{S_g^A - f_g^E}{S_g^A - S_g^E} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^E \text{ Choc entre un gaz monophasique et un fluide diphasique (3.55)}$$

3. Une onde de raréfaction peut se produire le long de la tie line, si une variation continue entre les points "E" et "D" et entre les point "G" et "F" satisfait la règle de la vitesse.

Une onde de raréfaction entre les points "E" et "D" viole la contrainte de vitesse, donc un chocs non tangent est construit à partir du point "A" jusqu'au point "D".

$$\Lambda^{AD} = \frac{S_g^A - f_g^D}{S_g^A - S_g^D} \quad (3.56)$$

4. La vitesse du choc FD augmente fortement au point D par rapport à la vitesse de choc AD . Cela signifie que, entre les deux chocs, nous aurons un plateau.
5. Une variation continue le long de la courbe $f_g(S_g)$ jusqu'au point B devra violer la contrainte de la vitesse, car à partir du point d'inflexion la vitesse de transport diminue, ce qui est interdit. Donc, nous devrions introduire le nouveau choc à la place de cette partie. C'est le choc de condensation BG qui relie le point B au point de tangente G .

Le passage de l'onde de raréfaction FG au choc au point G est lisse, donc aucun plateau n'apparaît pas dans la solution.

La structure finale de la solution est représentée sur la Fig.3.16 en rouge .

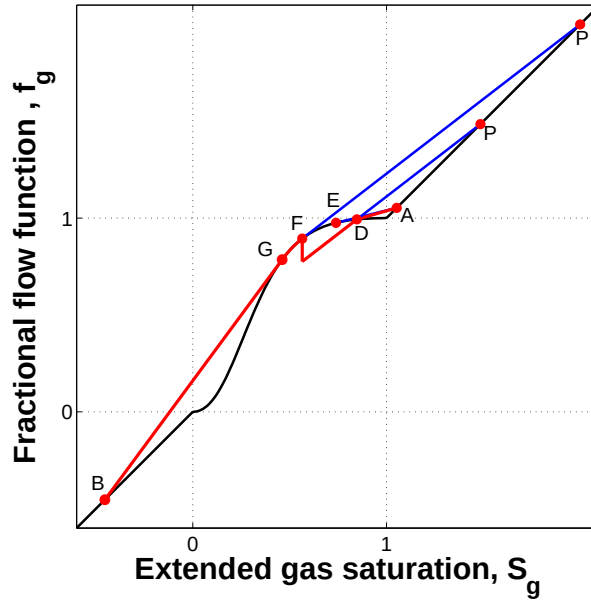


FIGURE 3.16 – Trajectoire de la solution

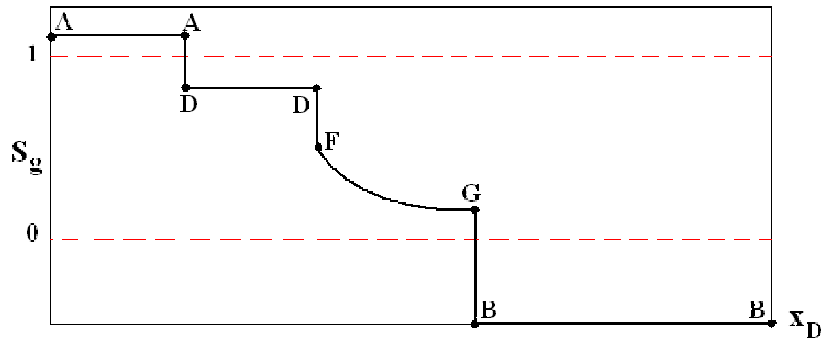


FIGURE 3.17 – Profile de la saturation en gaz

3.5 Comparaison entre les deux méthodes

On considère le déplacement d'un mélange d'huile de composition : (1)- $C^{CH_4} = 0.1$, (2)- $C^{CO_2} = 0.5$, (3)- $C^{C_{10}} = 0.4$, par un gaz pur CH_4 , K-values ($K_i = c_g^i / c_l^i$) sont considérés comme étant indépendantes de la composition (K-values constantes) $K_1 = 2.5$, $K_2 = 0.5$ et $K_3 = 0.05$.

Les viscosités des phases sont supposés constants $M = \mu_o / \mu_g = 5$, Les perméabilités relatives sont donnés par le modèle de Corey $k_{rg} = (S_g)^2$ et $k_{rl} = (1 - S_g)^2$

On choisit S_g et c_l^1 comme variables indépendantes. Tout point (composition) sur la trajectoire de la solution peut être décrit par ces deux variables.

$$C^1 = c_l^1 (1 + (K_1 - 1)S_g) \quad (3.57a)$$

$$C^2 = \left(\frac{1 - K_1}{K_2 - K_3} \frac{K_1 - K_3}{K_2 - K_3} c_l^1 \right) (1 + (K_2 - 1)S_g) \quad (3.57b)$$

$$C^3 = 1 - C^1 - C^2 \quad (3.57c)$$

La composition des points clés est donnée dans le tableau 3.5.

	C_{CH4}	C_{CO2}	C_{C10}	c_l^1	S_g
<i>a</i>	0.1000	0.5000	0.4000	0.3129	-0.4536
<i>b</i>	0.5294	0.3135	0.1570	0.3129	0.4614
<i>c</i>	0.5781	0.2924	0.1295	0.3129	0.5651
<i>d</i>	0.8806	0	0.1194	0.3878	0.8473
<i>e</i>	0.8178	0	0.1822	0.3878	0.7395
<i>f</i>	1.0000	0	0	0.3878	1.0526
P_{init}	1.2516	0	-0.2516	0.3129	2.0000
P_{inj}	1.2516	0	-0.2516	0.3878	1.4852

Tableau 3.1 – Parcours de la solution

La trajectoire de la solution est représentée sur la courbe de débit fractionnaire total (théorie classique) Fig.3.18 et sur les courbes de débit fractionnaire (Neg-Sat méthode) fig.3.19. Le profil de la saturation en fonction de la vitesse adimensionnelle x_D/t_D est représenté sur figure 3.20.

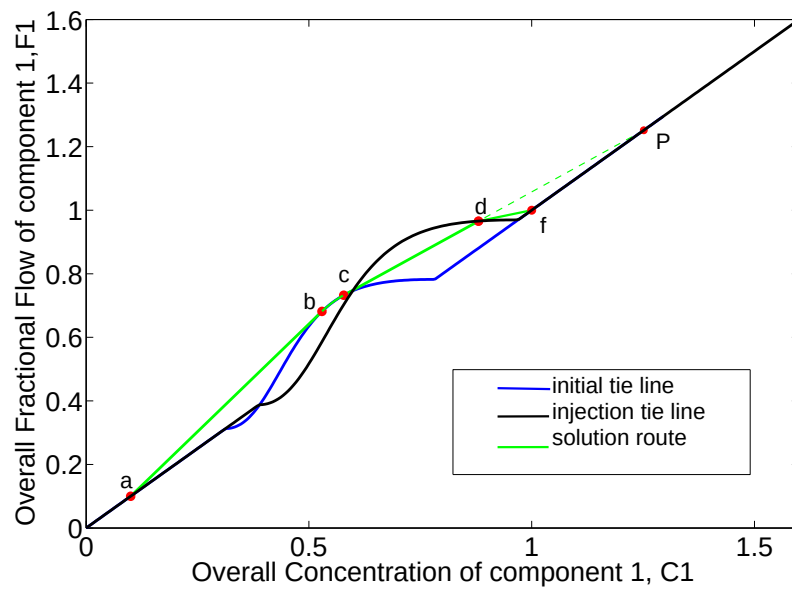


FIGURE 3.18 – Méthode classique

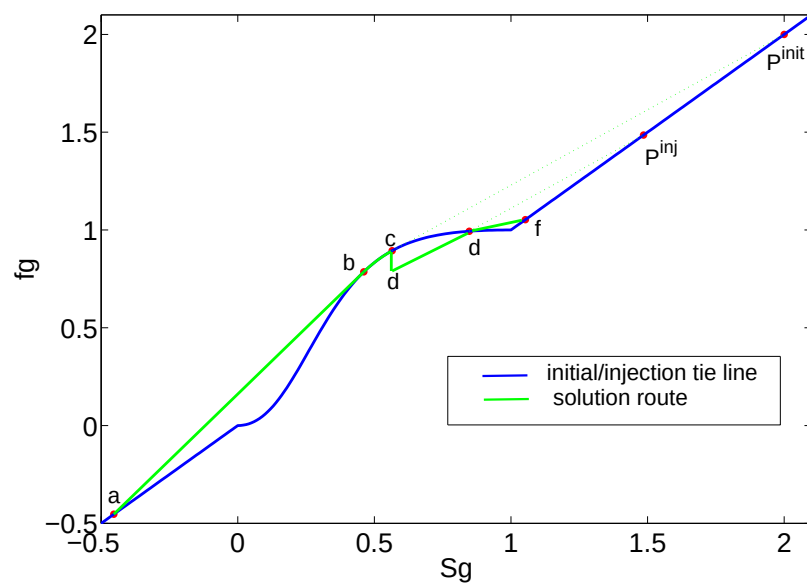


FIGURE 3.19 – Méthode de Neg-Sat

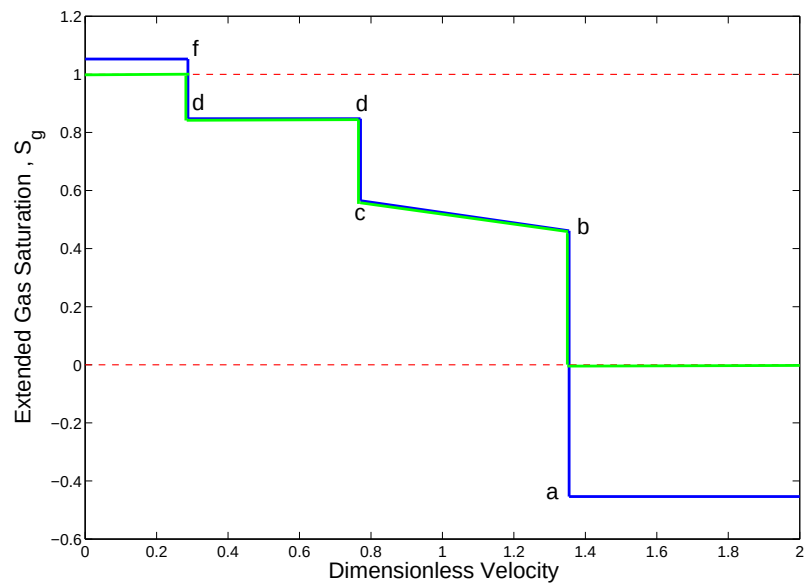


FIGURE 3.20 – Profile de la saturation en gaz

Les deux méthodes donnent des résultats similaires pour les profils de concentrations totales. Pour le profil de la saturation, les valeurs de la méthode Neg-Sat dépassent les valeurs physiques 1 et 0, donc nous ne considérerons que la partie de la solution qui se situe entre les deux lignes rouge sur Fig.??

3.6 Les systèmes multi-composants

Lorsque un nombre arbitraire de composantes ($N > 3$) sont présents dans le gaz injecté et les fluides initiales, en plus des tie line d'injection et initiale, $N - 3$ tie lines intermédiaires sont présentes. Le parcours de la solution doit traverser toutes ces tie lines.

3.6.1 Identification des tie lines

Les tie lines d'injection et initiale peuvent être identifiés en effectuant un négative flash calculation. Dans un système de plus de trois composantes, la nécessité que les tie lines reliés entre eux par un choc doivent se croiser semble très utile. En plus de déterminer les vitesses des chocs, elle permet l'identification des tie lines intermédiaires (crossover tie lines).

Considérons le cas particulier où le gaz injecté ne contient qu'un seul composant et le fait qu'un composant disparaît dans chaque choc, les tie lines intermédiaires peuvent être identifiés de manière séquentielle.

La première tie line intermédiaire est déterminée en considérant que le composant le plus léger 1 doit disparaître dans le choc qui connecte cette tie line avec la tie line initiale et donc le point d'intersection des deux tie lines doit également avoir une fraction zéro de ce composant 1. Par conséquent, la saturation sur la tie line initiale au point d'intersection est donnée par :

$$S_{g,1} = \frac{1}{1 - K_1} \quad (3.58)$$

Où $K_i = c_g^i / c_l^i$ et la K-value du composant i . La composition du point d'intersection (Pole) P_1 est donnée par :

$$C_{P_1}^1 = 0 \quad (3.59a)$$

$$C_{P_1}^i = c_{l,1}^i \left(\frac{K_i - K_1}{1 - K_1} \right), \quad i = \overline{2, N} \quad (3.59b)$$

Les concentrations de phase du premier crossover tie line (2) ainsi que la saturation du point d'intersection sur cette tie line peut être déterminée par un negative flash ou en résolvant le système d'équations suivant :

$$C_{P_1}^i = c_{l,1}^i (1 + (K_i - 1)S_{g,1}), \quad i = \overline{2, N} \quad (3.60)$$

Le composant pur injecté "k" est présent sur toutes les tie lines :

- Si $j \leq k$, au point d'intersection de la tie line j avec la tie line $j - 1$, le composant $j - 1$ disparaît, on a donc :

$$C_{P_{j-1}}^i = 0, \quad i = \overline{1, j-1} \quad (3.61a)$$

$$C_{P_{j-1}}^i = c_{l,j-1}^i (1 + (K_i - 1)S_{g,j-1}), \quad i = \overline{j, N} \quad (3.61b)$$

$$S_{g,j-1} = \frac{1}{1 - K_{j-1}} \quad (3.61c)$$

La composition et la saturation en gaz au point d'intersection sur la j^{ime} tie line peuvent être calculées à partir de :

$$C_{P_{j-1}}^i = c_{l,j}^i (1 + (K_i - 1)S_{g,j}), \quad i = \overline{j, N} \quad (3.62)$$

- Si $j \geq k$, le composant $j + 1$ disparaît au point d'intersection entre les tie lines j et $j + 1$, on écrit :

$$C_{P_j}^i = 0, \quad i = \overline{1, k-1}, \quad i = \overline{k+1, j+2} \quad (3.63a)$$

$$C_{P_j}^i = c_{l,j}^i (1 + (K_i - 1)S_{g,j}), \quad i = k, \quad i = \overline{j+2, N} \quad (3.63b)$$

$$S_{g,j} = \frac{1}{1 - K_j} \quad (3.63c)$$

$$C_{P_j}^i = c_{l,j+1}^i (1 + (K_i - 1)S_{g,j+1}), \quad i = k, \quad i = \overline{j+2, N} \quad (3.64)$$

3.6.2 Construction de la solution

La solution au problème d'injection d'un gaz constitué d'un seul composant dans une huile multicomposant est construite de la manière suivante :

1. Identification de toutes les tie lines et les point d'intersection entre deux tie line voisine (voir la section précédente).
2. identifié la tie line la plus courte. la solution commence à partir de cette tie line dans la direction de la tie line d'injection et la tie line initiale.
3. une onde de raréfaction se produit toujours sur cette tie line et qui est reliée aux deux tie lines voisines via des chocs.

Soit A le point correspondant de l'un de ces chocs sur la tie line la plus courte, et le point B le point correspondant sur la tie line voisine j . La vitesse du choc ainsi que les points A et B sont déterminés à partir du point intersection P_1 entre ces deux tie lines qui donne deux saturations par rapport à chaque tie line $S_g^{P_1}$ et $S_g^{P'_1}$ respectivement :

$$\Lambda_s^{AB} = \frac{S_g^{P_1} - f_g^A}{S_g^{P_1} - S_g^A} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^A \quad (3.65)$$

and

$$\Lambda_s^{AB} = \frac{S_g^{P'_1} - f_g^B}{S_g^{P'_1} - S_g^B} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^B \quad (3.66)$$

4. La tie line j est connectée à la tie line k par un choc, les deux point correspondants sont : le point C sur j et le point D sur k , qui peuvent être déterminé par :

$$\Lambda_s^{CD} = \frac{S_g^{P_2} - (f_g)^C}{S_g^{P_2} - (S_g)^C} = \frac{S_g^{P'_2} - (f_g)^D}{S_g^{P'_2} - (S_g)^D} = \left(\frac{\partial f_g}{\partial S_g} \right)^{CorD} \quad (3.67)$$

Où $S_g^{P_2}$ et $S_g^{P'_2}$ correspondent au point d'intersection P_2 entre les tie lines j et k .

5. Une onde de raréfaction peut exister sur la tie line j si le déplacement du point B au point C respecte la règle de la vitesse, sinon un choc relie directement le point B au point D (le point C n'apparaîtra pas dans la solution).

$$\Lambda_s^{BD} = \frac{f_g^B - f_g^D}{f_g^B - (S_g)^D} \quad (3.68)$$

6. Les étapes 4 et 5 sont répétées pour chaque paire de tie line dans la direction des tie lines initiale et d'injection en partant de la tie line la plus courte.

3.7 Conclusion

La théorie classique de la construction de la solution a été présentée brièvement en début de chapitre. Ensuite, en utilisant le concept de saturation étendue (on accepte des valeurs de saturation négatives et supérieures à un) nous avons montré que le problème de déplacement pouvait être réduit en une seule équation de "buckley-levrett ", quel que soit le nombre de composants ou des phases et un ensemble de

conditions de "Rankin-Hugoniot" au niveau des chocs. Ensuite, les deux théories, classique et NegSat ont été comparées pour un système de trois composants.

Enfin, la théorie Neg-Sat a été généralisée pour le déplacement diphasique multicomposant qui consiste en l'injection d'un gaz pur dans un réservoir d'huile.

Chapitre 4

La méthode *Neg-Sat* pour un écoulement régé par diffusion et capillarité

Dans le présent chapitre, le modèle Neg-Sat a été développé pour prendre en compte l'effet de la diffusion. Dans ce cas, un nouveau terme proportionnel au gradient de saturation apparaît dans le modèle uniforme Neg-Sat obtenu dans le chapitre 2. Ceci est équivalent à l'apparition d'un nouveau tenseur de diffusion pour le fluide diphasique fictif, appelé « *Extra-Diffusion* ».

Le terme extra-diffusion est responsable de la diffusion des composants chimiques dans les zones monophasiques ainsi qu'entre les zones monophasiques et diphasique (au niveau des interfaces de transition). À l'intérieur de la zone diphasique cet effet est égal à zéro, ce qui provoque la dégénérescence du terme d'extra-diffusion. Cela signifie que les équations uniformes de transport changent de type dans les différentes zones : elles sont paraboliques dans les zones monophasiques et hyperboliques dans les zones diphasiques.

Ce facteur peut avoir des influences sur la modélisation numérique de ces équations. Pour éviter la dégénérescence locale, nous avons introduit une diffusion fictive à la dégénérescence locale. Une autre possibilité est d'introduire l'effet de la capillarité qui remplace le terme extra-diffusion à l'intérieur de la zone diphasique.

Le modèle obtenu a été appliqué pour simuler la migration d'hydrogène dans les déchets radioactifs souterrains.

4.1 Formulation du modèle

L'écoulement d'un fluide monophasique en négligeant l'effet de la gravité et de la capillarité et en prenant en compte l'effet de la diffusion est décrit par les équations suivantes :

$$\phi \frac{\partial \rho C^i}{\partial t} = \text{div} \left(\frac{K \rho C^i}{\mu} \nabla P + \phi \rho D^i \nabla C^i \right), \quad i = \overline{1, N} \quad (4.1)$$

Complétées par les relations de fermeture suivantes :

$$\rho = \rho(P, C^1, \dots, C^N) \quad (4.2a)$$

$$\mu = \mu(P, C^1, \dots, C^N) \quad (4.2b)$$

Où D^i est le coefficient de diffusion de l' i -ème composant. La diffusion devra disparaître dans le bilan de masse total, ce qui conduit à la contrainte : $\sum_{i=1}^N D^i \nabla C^i = 0$. En particulier, cette contrainte est satisfaite si :

$$D^i = D, \quad \forall i \quad (4.3)$$

Ce modèle de diffusion identique pour tous les composants est fréquemment utilisé dans la pratique.

4.1.1 Equations diphasiques du fluide fictif

Dans le cas où la diffusion est prise en compte le principe d'équivalence entre le fluide monophasique et le fluide diphasique fictif ne peut être prouvé en terme des équations diphasiques classiques .

L'équivalence conduit forcément à l'apparition d'un terme supplémentaire que nous avons appelé « *extra-Diffusion* » dans les équations d'écoulement diphasique . Le principe d'équivalence nous permet d'établir la nouvelle forme des équations diphasiques, ainsi que les conditions supplémentaires d'équivalence.

Les équations diphasiques d'un fluide fictif qui remplacent les équation monophasique (4.1) sont : (pour $i = \overline{1, N}$)

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j = & \text{div} \left(K \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} \nabla P + \phi \sum_{j=g,l} D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i \right) \\ & + \text{div} \left(\underbrace{\phi \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i D_j^i \nabla S_j}_{\text{extra-diffusion}} \right) \end{aligned} \quad (4.4)$$

Complétées par les équations d'équilibre (2.3b) et (2.3c).

Pour le fluide fictif, les densités de phase ρ_i et les mobilités k_{rj}/μ_j sont déterminées par les conditions d'équivalence (2.7) et (2.6a) respectivement (et pas par les équations d'état et les corrélations pétrophysiques).

En ce qui concerne les coefficients de diffusion D_j^i , nous avons la liberté de choisir. Nous les avons choisis comme suit :

$$D_j^i = D^i, \quad \forall i, j \quad (4.5)$$

L'origine mathématique de l'apparition de l'extra-diffusion $I = \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i D_j^i \nabla S_j$ est le suivant : Le remplacement, d'un flux de diffusion monophasique $J = D^i \nabla C^i$ par la somme des flux de diffusion des deux phases imaginaires $\tilde{J} = \sum_{j=g,l} D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i$ dans lesquelles les coefficients de diffusion D_j^i sont définis comme dans (4.5), est impossible si les directions des vecteurs J et $\tilde{J}$ sont différentes. Le rôle du nouveau flux I est de faire tourner le vecteur $\tilde{J}$ et le rendre colinéaire avec J .

4.1.2 Démonstration de l'équivalence

Pour prouver le principe d'équivalence, il suffit de substituer les conditions d'équivalence (2.6),(2.7),(2.8) et (4.5) dans (4.4).

1. Terme d'accumulation :

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j &= \{\text{en utilisant Eq.(2.7)}\} = \phi \frac{\partial}{\partial t} \rho \sum_{j=g,l} c_j^i S_j = \\ & \{\text{en utilisant Eq.(2.8)}\} = \phi \frac{\partial}{\partial t} \rho C^i \end{aligned} \quad (4.6)$$

2. Terme de convection :

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \left(K \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} \nabla P \right) &= \{ \text{en utilisant Eq.(2.6a) et Eq.(2.7)} \} = \\ \operatorname{div} \left(K \frac{\rho}{\mu} \sum_{j=g,l} c_j^i S_j \nabla P \right) &= \{ \text{en utilisant Eq.(2.8)} \} = \operatorname{div} \left(\frac{K \rho C^i}{\mu} \nabla P \right) \end{aligned} \quad (4.7)$$

3. Terme de diffusion :

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \left(\phi \sum_{j=g,l} D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i \right) + \operatorname{div} \left(\phi \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i D_j^i \nabla S_j \right) &= \{ \text{en utilisant Eq.(2.7) et Eq.(2.5)} \} = \\ \operatorname{div} \left(\phi D^i \rho \left[\sum_{j=g,l} S_j \nabla c_j^i + c_j^i \nabla S_j \right] \right) &= \{ \text{en utilisant Eq.(2.8)} \} = \operatorname{div} \left(\phi D^i \rho \nabla C^i \right) \end{aligned} \quad (4.8)$$

La somme de ces termes donne le modèle monophasique (4.1) .

4.1.3 Le modèle diphasique uniforme

Soit un fluide en déplacement dans un milieu poreux de sorte que deux IPT mobiles existent. Le domaine global Ω est donc séparé en une zone monophasique Ω_g occupée par le gaz sursaturé en composant légers, une zone diphasique Ω_{gl} et une zone monophasique Ω_l occupée par le liquide sous-saturé. En se basant sur le principe d'équivalence, les équation diphasiques uniformes applicables à l'ensemble du domaine sont données par :

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j &= \operatorname{div} \left(K \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} \nabla P + \phi \sum_{j=g,l} D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i \right) \\ &+ \delta(S_g) \operatorname{div} \left(\phi \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i D_j^i \nabla S_j \right) \end{aligned} \quad (4.9)$$

Dans lesquelles nous avons introduit une fonction δ devant le terme extra-diffusion qui tient compte du fait que ce terme disparaît quand le fluide réel est diphasique.

$$\delta = \begin{cases} 0 & \text{si } 0 \leq S_j \leq 1 \\ 1 & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.10)$$

En même temps, les propriétés du gaz et du liquide sont différentes dans les différentes zones. Les propriétés d'équivalence propres à chaque zone sont données dans le tableau 4.1 .

	gaz	liquide	Zone diphasique
ρ_g	$\tilde{\rho}_l$	$\tilde{\rho}_g$	$\hat{\rho}_g$
ρ_l	$\hat{\rho}_l$	$\hat{\rho}_g$	$\hat{\rho}_l$
μ_g	$\tilde{\mu}_l$	$\tilde{\mu}_g$	$\hat{\mu}_g$
μ_l	$\hat{\mu}_l$	$\hat{\mu}_g$	$\hat{\mu}_l$
D_g	$\tilde{D}_l$	$\tilde{D}_g$	$\hat{D}_g$
D_l	$\hat{D}_l$	$\hat{D}_g$	$\hat{D}_l$
k_{rg}	S_g	S_g	k_{rg}
k_{rl}	$1 - S_g$	$1 - S_g$	k_{rl}

Tableau 4.1 – Propriétés d'équivalence

Les paramètres avec le symbole « tilde » dans Tab.4.1 correspondent aux paramètres monophasiques fictifs. Les paramètres avec le symbole « chapeau » correspondent aux paramètres diphasiques réels .

Les IPT correspondent aux surfaces où la saturation étendue S_j est égale à zéro ou un. Par conséquent, l'algorithme de la solution détecte automatiquement toutes les zones et leur emplacement relatif dans l'espace.

Remarque : Dans le cas où la diffusion est prise en compte, le problème du déplacement ne peut être résolu analytiquement et l'avantage important de la méthode « Neg-Sat » est que les équations d'écoulement diphasique gardent leur forme originale ,plus un terme supplémentaire, cela signifie que tous les simulateurs diphasiques existants peuvent être appliqués pour simuler l'apparition de l'interface de transition de phase par l'ajout d'un simple sous-programme .

4.2 Comportement des interfaces de transition

Pour tester l'efficacité de notre modèle (4.9) à détecter les *IPT* ainsi que leur comportement et leur structure, des séries de simulations numériques ont été réalisées.

Pour mettre en évidence que les *IPT* et exclure l'apparition des chocs internes au sein de la zone diphasique, nous présentons les résultats obtenus pour les mélanges binaires. Pour un nombre arbitraire de composants, les chocs supplémentaires peuvent apparaître à l'intérieur du domaine diphasique. Selon la théorie classique des déplacements miscibles, [30], [23] : « le système diphasique de N composants est caractérisée par l'existence de $N - 2$ chocs internes de concentration et saturation ». Donc, pour un système de deux composants, les chocs internes ne peuvent pas apparaître.

Prenons un déplacement unidimensionnel et supposons que le mélange est idéal dans chaque phase . Le système d'équations (4.9) peut être réécrit comme suit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(c_g^1 S_g + c_l^1 (1 - S_g)) = & \frac{\partial}{\partial x} \left(\left(\frac{K k_{rg} c_g^1}{\phi \mu_g} + \frac{K k_{rl} c_l^1}{\phi \mu_l} \right) \frac{\partial P}{\partial x} + D_g^1 S_g \frac{\partial c_g^1}{\partial x} + D_l^1 (1 - S_g) \frac{\partial c_l^1}{\partial x} \right) \\ & + \delta(S_g) \frac{\partial}{\partial x} \left((c_g^1 D_g^1 - c_l^1 D_l^1) \frac{\partial S_g}{\partial x} \right) \end{aligned} \quad (4.11a)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(c_g^2 S_g + c_l^2 (1 - S_g)) = & \frac{\partial}{\partial x} \left(\left(\frac{K k_{rg} c_g^2}{\phi \mu_g} + \frac{K k_{rl} c_l^2}{\phi \mu_l} \right) \frac{\partial P}{\partial x} + D_g^2 S_g \frac{\partial c_g^2}{\partial x} + D_l^2 (1 - S_g) \frac{\partial c_l^2}{\partial x} \right) \\ & + \delta(S_g) \frac{\partial}{\partial x} \left((c_g^2 D_g^2 - c_l^2 D_l^2) \frac{\partial S_g}{\partial x} \right) \end{aligned} \quad (4.11b)$$

1. Les densités molaires des phases disparaissent de ce système après la division de (4.9) par ρ^1 et ρ^2 , et le remplacement des fractions molaires par des fractions volumiques (voir section 3.2.1).
2. La somme de ces deux équations donne :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(\varphi \frac{\partial P}{\partial x} \right) = 0; \quad \varphi = \varphi_g + \varphi_l; \quad \varphi_j = k_{rj} / \mu_j \quad (4.12)$$

L'intégration de cette équation donne :

$$\frac{\partial P}{\partial x} = \frac{-1}{\varphi} \quad (4.13)$$

Par conséquent, le gradient de pression peut être retiré de (4.11).

3. Pour un mélange binaire, les concentrations de phase sont fonctions uniquement de la pression. En Considérant une variation de pression faible ($\Delta P \ll 1$), on peut garder seulement les principaux termes dans le développement de Taylor de la concentration de la phase et de sa dérivée :

$$c_j^i = \text{const} + O(\Delta P), \quad c_j'^i = \text{const} + O((\Delta P)^2) \quad (4.14)$$

Le système d'équations (4.11) complété par les conditions d'équivalence (4.1) peut être transformée en une équation de transport quasi-linéaire dégénérée du second ordre avec un terme non-linéaire discontinu :

$$\frac{\partial S_g}{\partial t} + \frac{\partial F(S_g)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D(S_g) \frac{\partial S_g}{\partial x} \right) \quad (4.15)$$

Où

$$F(S_g) = F_c(S_g) + F_d(S_g) \quad (4.16a)$$

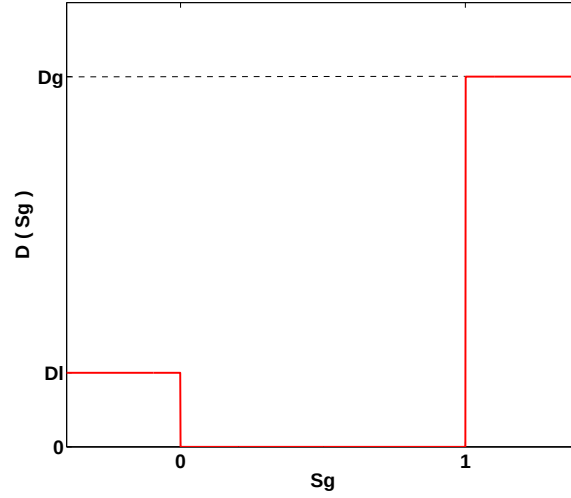
$$F_c(S_g) = \frac{c_g^1 f_g + c_l^1 (1 - f_g)}{c_g^1 - c_l^1}, \quad f_g(S_g) = \frac{\phi_g}{\phi} \quad (4.16b)$$

$$F_d(S_g) = \frac{D_g^1 c_g'^1 S_g + D_l^1 c_l'^1 (1 - S_g)}{(c_g^1 - c_l^1) \phi} \quad (4.16c)$$

$$D(S_g) = \delta(S_g) \frac{c_g^1 D_g^1 - c_l^1 D_l^1}{c_g^1 - c_l^1} \quad (4.16d)$$

- La fonction F_c est la fraction de composant 1 dans le débit global déterminé uniquement par convection (le débit fractionnaire totale).
- La fonction F_d est la contribution de la diffusion au terme de convection, qui représente un effet de couplage diffusion-convection . Un tel effet est non-trivial et se passe implicitement par l'intermédiaire des concentrations de phase. En effet, les concentrations de phase dans la zone diphasique dépendent strictement de la pression. Donc si la diffusion influe sur les concentrations de phases, cela influence sur le champ de pression et par conséquent, cela modifie la vitesse de transport par convection.
- La fonction $F(S_g)$ est représentée sur la figure 3.5. Elle a la même structure que la fonction de débit fractionnaire. Elle est continue mais non différentiable aux points $S_g = 0$ et $S_g = 1$.
- Le paramètre d'extra-diffusion $D(S_g)$ est représenté sur la figure 4.1. Il est discontinu et dégénère entre $0 \leq S_g \leq 1$. Il est responsable de la diffusion des composants chimiques dans les zones monophasiques ainsi que entre les zones monophasique et la zone diphasique à travers les PT-interfaces. Dans la zone diphasique cet effet est nul, ce qui provoque la dégénérescence de la partie droite de Eq.(4.15).

La dégénérescence du paramètre D signifie que l'équation de transport (4.15) change le type dans les différentes zones : elle est parabolique dans les zones monophasique et hyperbolique dans la zone diphasique.


 FIGURE 4.1 – Extra-diffusion $D(S_g)$

4.2.1 Problème de Riemann « *Influence de la diffusion* »

4.2.1.1 Discrétisation de l'équation de transport

L'équation (4.15) sous forme adimensionnelle devient :

$$\frac{\partial S}{\partial t_D} + \frac{\partial F(S)}{\partial x_D} = \frac{\partial}{\partial x_D} \left(D(S) \frac{\partial S}{\partial x_D} \right); \quad S \equiv S_g \quad (4.17)$$

Avec les paramètres adimensionnels :

$$\mu_j = \frac{\mu_j}{\mu_0}; D_j^1 = \frac{D_j^1}{D_0}; x_D = \frac{x}{L}; t_D = \frac{t}{t_*}$$

Où D_0, μ_0, L et t_* sont des paramètres caractéristiques.

Pour résoudre numériquement Eq.(4.17) on utilise la méthode des volumes finis. On se donne une subdivision de l'intervalle $[0, 1]$ en volumes de contrôle $K_i, i = 1, \dots, N_x$, où N_x est le nombre de mailles, avec $K_i =]x_{i-\frac{1}{2}}, x_{i+\frac{1}{2}}[$.

On considère un maillage régulier et centré. Pour chaque volume de contrôle K_i , on se donne un point $x_i = 1/2(x_{i+\frac{1}{2}}, x_{i-\frac{1}{2}})$ et on note $\Delta x = x_{i+\frac{1}{2}} - x_{i-\frac{1}{2}}$ (voir Fig4.2).

L'intégration de Eq.(4.17) sur le volume de contrôle K_i donne :

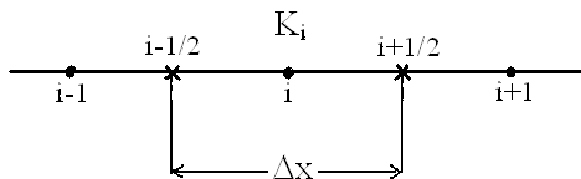


FIGURE 4.2 – Schématisation d'un schéma volume finie centrée où les faces des cellules se trouvent au milieu des noeuds

$$\int_{x_{i-\frac{1}{2}}}^{x_{i+\frac{1}{2}}} \left[\frac{\partial S}{\partial t_D} + \frac{\partial F(S)}{\partial x_D} - \frac{\partial}{\partial x_D} \left(D(S) \frac{\partial S}{\partial x_D} \right) \right] dx = 0 \quad (4.18)$$

Eq.(4.18) peut être réécrite sous la forme discrète suivante :

$$\frac{S_i^{n+1} - S_i^n}{\Delta t} + \frac{F_i^n - F_{i-1}^n}{\Delta x} = D_{i+\frac{1}{2}}^{n+1} \frac{S_{i+1}^{n+1} + S_i^{n+1}}{\Delta x} - D_{i-\frac{1}{2}}^n \frac{S_i^{n+1} + S_{i-1}^{n+1}}{\Delta x} \quad (4.19)$$

Où la discrétisation temporelle est implicite en saturation. Les termes d'advection et de diffusion sont discrétisés en utilisant "<one-point upstream>" et "<two-point block centered spatial discretization>" respectivement. Afin de simplifier l'écriture, nous acceptons $F_i^n = F(S_i^n)$ et $D_i^n = D(S_i^n)$.

Tout schéma implicite peut être écrit sous la forme suivante :

$$DS^{n+1} = F \quad (4.20)$$

Où D est une matrice tridiagonale de dimension $N_x \times N_x$ contenant les paramètres d'extra-diffusion et F un vecteur colonne de dimension N_x contenant le flux convectif. En général, les schémas implicites peuvent être plus précis que des schémas explicites mais plus difficile à mettre en œuvre et nécessitent des calculs beaucoup plus longs que les schémas explicites.

Puisque la matrice résultante est symétrique, un grand nombre de solveurs linéaires rapides peuvent être utilisés. Dans nos exemples, le système linéaire symétrique est résolu par la méthode PCG (Preconditioned Conjugate Gradient) en utilisant le préconditionneur incomplet de Cholesky, ou par la méthode de Gauss-Seidel.

La matrice D et le vecteur F contiennent des coefficients non linéaires et discontinus, nous proposons quelques méthodes pour le traitement des non-linéarités et des discontinuités.

4.2.1.1.1 Traitement de la discontinuité : On considère les cellules de telle sorte que la discontinuité de D est située à l'interface entre deux cellule i et $i + 1$. Les flux numériques de diffusion sont donnés par :

$$f_{i+\frac{1}{2}} = D_{i+\frac{1}{2}} \frac{S_{i+1} - S_i}{\Delta x}, \quad \text{avec} \quad D_{i+\frac{1}{2}} = \begin{pmatrix} D_i & \text{if } x_{i+\frac{1}{2}} < x_{k+\frac{1}{2}} \\ D_{i+1} & \text{if } x_{i+\frac{1}{2}} > x_{k+\frac{1}{2}} \end{pmatrix} \quad (4.21)$$

Avec $x_{k+\frac{1}{2}}$ est la position de l'interface discontinue. Il faut donc calculer le flux numérique $f_{k+\frac{1}{2}}$. Nous introduisons une inconnue auxiliaire $S_{k+\frac{1}{2}}$ que l'on peut éliminer par la suite et on écrit la discrétisation du flux des deux côtés de l'interface.

$$f_{k+\frac{1}{2}} = D_i \frac{S_{k+\frac{1}{2}} - S_k}{\frac{\Delta x}{2}}$$

$$f_{k+\frac{1}{2}} = D_{i+1} \frac{S_{k+1} - S_{k+\frac{1}{2}}}{\frac{\Delta x}{2}}$$

La conservation du flux à travers l'interface nous permet de calculer l'inconnu $S_{k+\frac{1}{2}}$

$$D_i \frac{S_{k+\frac{1}{2}} - S_k}{\frac{\Delta x}{2}} = D_{i+1} \frac{S_{k+1} - S_{k+\frac{1}{2}}}{\frac{\Delta x}{2}}$$

Donc,

$$S_{k+\frac{1}{2}} = \frac{D_i S_k + D_{i+1} S_{k+1}}{D_i + D_{i+1}}$$

En remplaçant $S_{k+\frac{1}{2}}$ dans l'expression du flux $f_{k+\frac{1}{2}}$, on obtient :

$$f_{k+\frac{1}{2}} = \frac{2D_i D_{i+1}}{D_i + D_{i+1}} \left(\frac{S_{i+1} - S_i}{\Delta x} \right)$$

Le flux est calculé, en utilisant la moyenne harmonique de D_i et D_{i+1} :

$$D_{k+\frac{1}{2}} = \frac{2D_i D_{i+1}}{D_i + D_{i+1}} \quad (4.22)$$

Notez que lorsque $D_i = D_{i+1}$, on trouve le flux d'habitude.

4.2.1.1.2 Traitement de la non-linéarité : Dans l'équation discrétisée (4.20) nous utilisons le schéma strictement implicite, cela pose un problème car les coefficients intervenant dans l'équation sont eux-mêmes des fonctions de la fonction recherchée.

$$D(S^{n+1})S^{n+1} = F(S^n) \quad (4.23)$$

$D(S^{n+1})$ est fonction de S^{n+1} que nous cherchons. En effet, le traitement est effectué entre des pas de temps (n) et $(n + 1)$ et donc nous devons prendre en considération la valeur de $D(S)$ entre $D(S^n)$ et $D(S^{n+1})$.

L'Eq.(??) est linéarisée par l'hypothèse suivante :

$$D(S^{n+1})S^{n+1} = D(S^n)S^{n+1} \quad (4.24)$$

Cette méthode de linéarisation peut être interprétée comme la première itération de la méthode de Newton pour l'équation à coefficients implicites. Le processus itératif de la méthode de Newton classique est défini par :

$$D(S^v)S^{v+1} = F(S^v) \quad v = 0, 1, \dots; S^0 = S^n \quad (4.25)$$

On résout ce système pour plusieurs itérations jusqu'à ce que la solution converge vers S^{n+1} avec une certaine précision fixe. Cette technique implique de résoudre un système matriciel à plusieurs reprises pour passer du pas de temps (n) au pas de temps $(n + 1)$.

4.2.1.2 Conditions initiales et aux limites

Pour définir le système, les conditions initiales et aux limites doivent être précisées. L'état initial est défini en spécifiant la saturation S^{init} à l'instant initial. Les valeurs de saturation sur les deux limites sont données par les conditions de Dirichlet : $S_1^n = S^{inj}$ et $S_{N_x} = S^{init}$.

4.2.1.3 Application (Injection de gaz dans un réservoir d'huile)

Nous considérons le cas d'injection de CO_2 dans un réservoir d'huile. Les paramètres des fluides sont données dans le tableau 4.2.

Un résultat typique des simulations numériques est présenté sur Fig.4.3 pour $t_D = 0.2$. Les courbes rouges correspondent au cas sans diffusion alors que les courbes bleues représentent le cas avec diffusion. Le déplacement est dirigé vers la droite.

	gaz injecté	huile initiale	unité
CO_2	0.9815	0.4756	
$C_{10}H_{22}$	0.0185	0.5244	
D	$5 \cdot 10^{-8}$	10^{-8}	m^2/s
μ	$3 \cdot 10^{-4}$	10^{-2}	$Pa.s$
ρ	500	850	kg/m^3
S	$S^{inj} = 1.4$	$S^{init} = -0.4$	

Tableau 4.2 – Propriétés des fluides

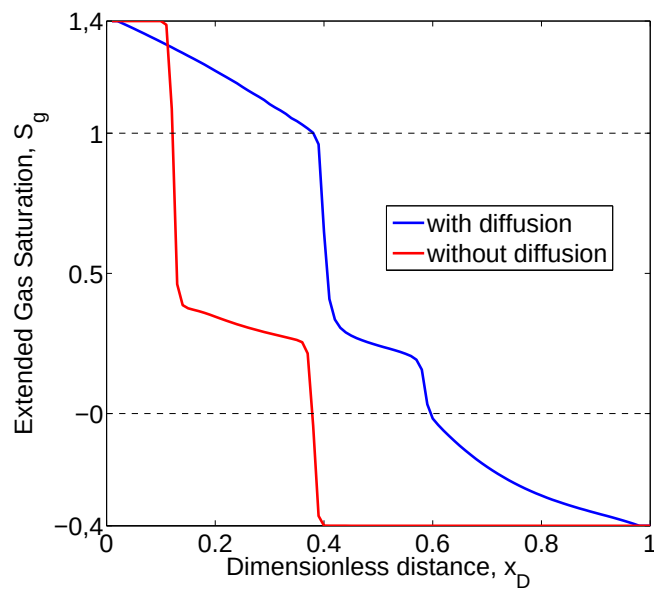


FIGURE 4.3 – Solution numérique du problème de Riemann

En comparant les deux courbes, nous pouvons remarquer deux effets significatifs de la diffusion :

a. Influence sur la vitesse des chocs

la structure de la solution est la même pour les deux cas, mais les vitesses des chocs sont différentes . Comme le terme F_d , qui représente la contribution de la diffusion au terme convectif , est positif, les deux chocs de transition se déplacent plus rapidement dans le cas où la diffusion est prise en compte. La diffusion a tendance à accélérer les fronts de déplacement.

b. Transformation des chocs en faibles discontinuités

Un autre effet est observé sur le comportement des chocs. A cause de l'extra-diffusion, les chocs de transition de phase sont transformés en faibles discontinuités .

4.2.1.4 Régularisation

Comme mentionné précédemment, en raison de la dégénérescence de ce paramètre dans la zone diphasique, l'équation de transport change de type à travers les IPT. Cela peut fausser les résultats des simulations et influencer les vitesses et la structure des chocs.

Considérons le même problème de Riemann que la section précédente :

$$\begin{cases} \frac{\partial S}{\partial t_D} + \frac{\partial F(S)}{\partial x_D} - \frac{\partial}{\partial x_D} \left(D(S) \frac{\partial S}{\partial x_D} \right) = 0 \\ S|_{x=0} = S^{inj}, \quad S|_{x=L} = S^{init}, \quad S|_{t=0} = S^{init} \end{cases} \quad (4.26)$$

Le paramètre D est défini par :

$$D(S) = \begin{cases} D_l^1 & \text{if } S < 0 \\ 0 & \text{if } 0 \leq S \leq 1 \\ D_g^1 & \text{if } S > 1 \end{cases} \quad (4.27)$$

On procédera à la régularisation en ajoutant une diffusion artificielle dans l'intervalle $0 \leq S \leq 1$. Considérons un petit paramètre $\varepsilon > 0$ tel que :

$$D_\varepsilon(S) = \begin{cases} D_l^1 & \text{if } S < 0 \\ \varepsilon & \text{if } 0 \leq S \leq 1 \\ D_g^1 & \text{if } S > 1 \end{cases} \quad (4.28)$$

4.2.1.5 Schémas numériques

Une série de simulations numériques ont été réalisées en utilisant les mêmes paramètres que dans Tab 4.2.

La précision d'une discrétisation en volumes finis est principalement liée au calcul des flux convectifs F sur les faces des volumes de contrôle. Plusieurs méthodes ont été proposées dans la littérature pour prédire les flux F . les schémas du premier ordre sont plus stables près des discontinuités mais ils souffrent de la diffusion numérique. les schémas du second ordre ont la capacité d'éliminer la diffusion numérique mais ils donnent lieu à des oscillations non physiques à proximité des régions à forts gradients. Il existe une méthode qui mixe entre une approximation de second ordre lorsque la région est lisse et une approximation de premier ordre près d'une discontinuité, cette méthode est appelée : "*flux-limiter method*".

Pour être sure des résultats des simulations, des schémas du premier ordre et du second ordre ont été

4.2. Comportement des interfaces de transition

Nom du schéma	Formulation	ordre
Upwind (first order)	$S_i^{n+1} - \Delta t [\partial_x (D(S^{n+1}) \partial_x S^{n+1})]_i =$ $S_i^n - m \begin{cases} F_i^n - F_{i-1}^n & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} > 0 \\ F_{i+1}^n - F_i^n & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} < 0 \end{cases}$	1
Lax-Friedrichs	$S_i^{n+1} - \Delta t [\partial_x (D(S^{n+1}) \partial_x S^{n+1})]_i =$ $\frac{1}{2}(S_{i+1}^n - S_{i-1}^n) - \frac{m}{2}(F_{i+1}^n - F_{i-1}^n)$	1
Lax-Wendroff	$S_i^{n+1} - \Delta t [\partial_x (D(S^{n+1}) \partial_x S^{n+1})]_i = S_i^n -$ $\frac{m}{2}(F_{i+1}^n - F_{i-1}^n) + \frac{m}{2} [v_{i+\frac{1}{2}}((F_{i+1}^n - F_i^n) - v_{i-\frac{1}{2}}((F_i^n - F_{i-1}^n))]$	2
Beam-Warming	$S_{gi}^{n+1} - \Delta t [\partial_x (D(S_g^{n+1}) \partial_x S_g^{n+1})]_i = S_i^n -$ $\frac{m}{2} \begin{cases} (3 - v_{i-\frac{1}{2}})(F_i^n - F_{i-1}^n) - (1 - v_{i-\frac{3}{2}})(F_{i-1}^n - F_{i-2}^n) & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} > 0 \\ -(1 + v_{i+\frac{3}{2}})(F_{i+2}^n - F_{i+1}^n) + (v_{i+\frac{1}{2}} + 3)(F_{i+1}^n - F_i^n) & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} < 0 \end{cases}$	2
TVD	$S_i^{n+1} - \Delta t [\partial_x (D(S^{n+1}) \partial_x S^{n+1})]_i = S_i^n - m [f_{i+\frac{1}{2}}^n - f_{i-\frac{1}{2}}^n]$	2

Tableau 4.3 – Les différent schémas numérique du problème (4.26)

utilisés pour discrétiser le terme convectif : décentré, Lax-Friedrichs, Lax-Wendroff, Beam-Warming et un schéma TVD (high resolution total variation diminishing scheme) avec limiteur de flux. Le problème discrétisé (4.26) est présenté dans le Tab.4.3. Dans tous les schémas, nous gardons le terme de convection sous la forme conservative, car un schéma non conservatif déplace les discontinuités avec des vitesses incorrectes.

Les paramètres dans le tableau 4.3 sont définis comme suit :

$$v_{i+\frac{1}{2}} = m \begin{cases} \left[\frac{F_{i+1}^n - F_i^n}{S_{i+1}^n - S_i^n} \right] & \text{if } S_{i+1}^n \neq S_i^n \\ a(S_i^n) & \text{sinon} \end{cases}$$

Où

$$m = \frac{\Delta t}{\Delta x} \quad \text{et} \quad a(S_i^n) = \left(\frac{\partial F}{\partial S} \right)_i$$

$$f_{i+\frac{1}{2}} = F_L(S_i) + F - H(S_i)\phi_i$$

$$F_L = \begin{cases} F_i^n - F_{i-1}^n & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} > 0 \\ F_{i+1}^n - F_i^n & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} < 0 \end{cases}$$

Nom du limiteur de flux	$\phi(\theta)$
Minmod	$\phi(\theta) = \max(0, \min(1, \theta))$
Roe's Superbee	$\phi(\theta) = \max(0, \min(2\theta, 1), \min(\theta, 2))$
Van Leer	$\phi(\theta) = \frac{ \theta + \theta}{1 + \theta }$
Van Albada	$\phi(\theta) = \frac{\theta^2 + \theta}{1 + \theta^2}$

Tableau 4.4 – Quelques limiteurs de flux pour les schémas de second ordre.

$$F_H = \frac{1}{2} \begin{cases} (1 - v_{i+\frac{1}{2}})(F_{i+1}^n - F_i^n) & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} > 0 \\ -(1 + v_{i+\frac{1}{2}})(F_{i+1}^n - F_i^n) & \text{if } v_{i+\frac{1}{2}} < 0 \end{cases}$$

$$\phi_i = \phi(\theta_i), \quad \theta_i = \frac{S_{j+1} - S_j}{S_{i+1} - S_i}, \quad j = i - \text{sgn}(v_{i+\frac{1}{2}})$$

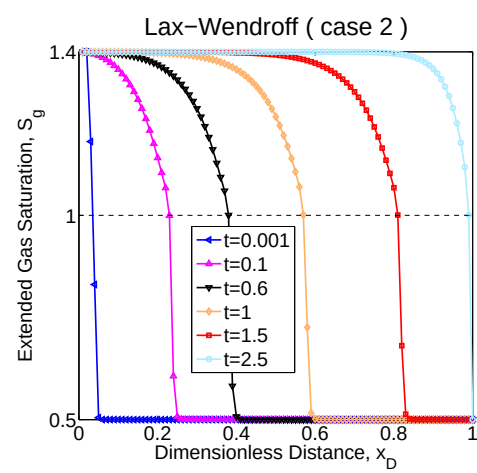
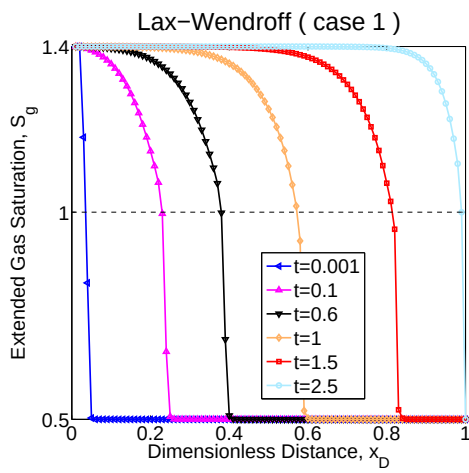
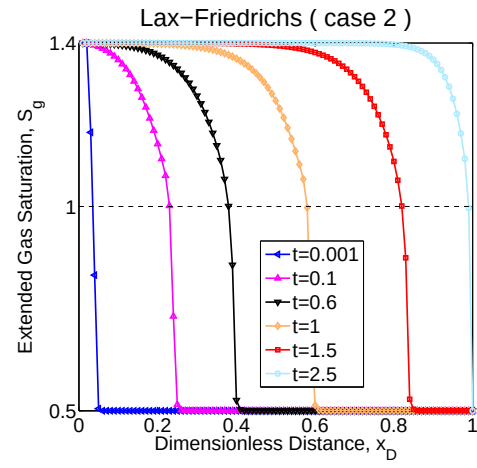
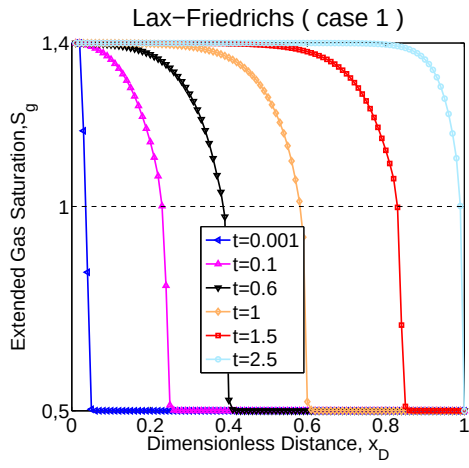
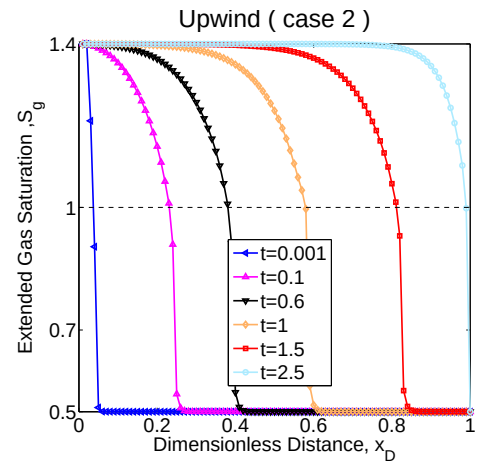
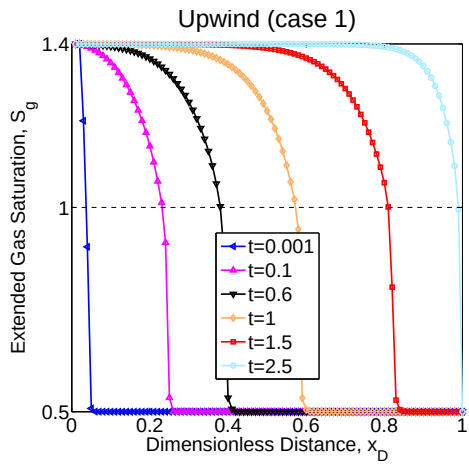
Où ϕ_i est la fonction de limiteur de flux . Tab.4.4 énumère quelques-limiteurs de flux, qui vérifient la propriété TVD et la précision du second ordre .

4.2.1.6 Simulations numériques

Les simulations ont été effectuées avec une discrétisation de l'espace $\Delta x = 10^{-3}$ et un pas de temps constant $\Delta t = 10^{-4}$. Fig.4.4 compare les résultats des différents schéma numériques pour les cas suivants :

Cas N°1 : donné par (4.26) et (4.27).

Cas N°2 : donné par (4.26) et (4.28) , avec $\varepsilon = 10^{-16}$.



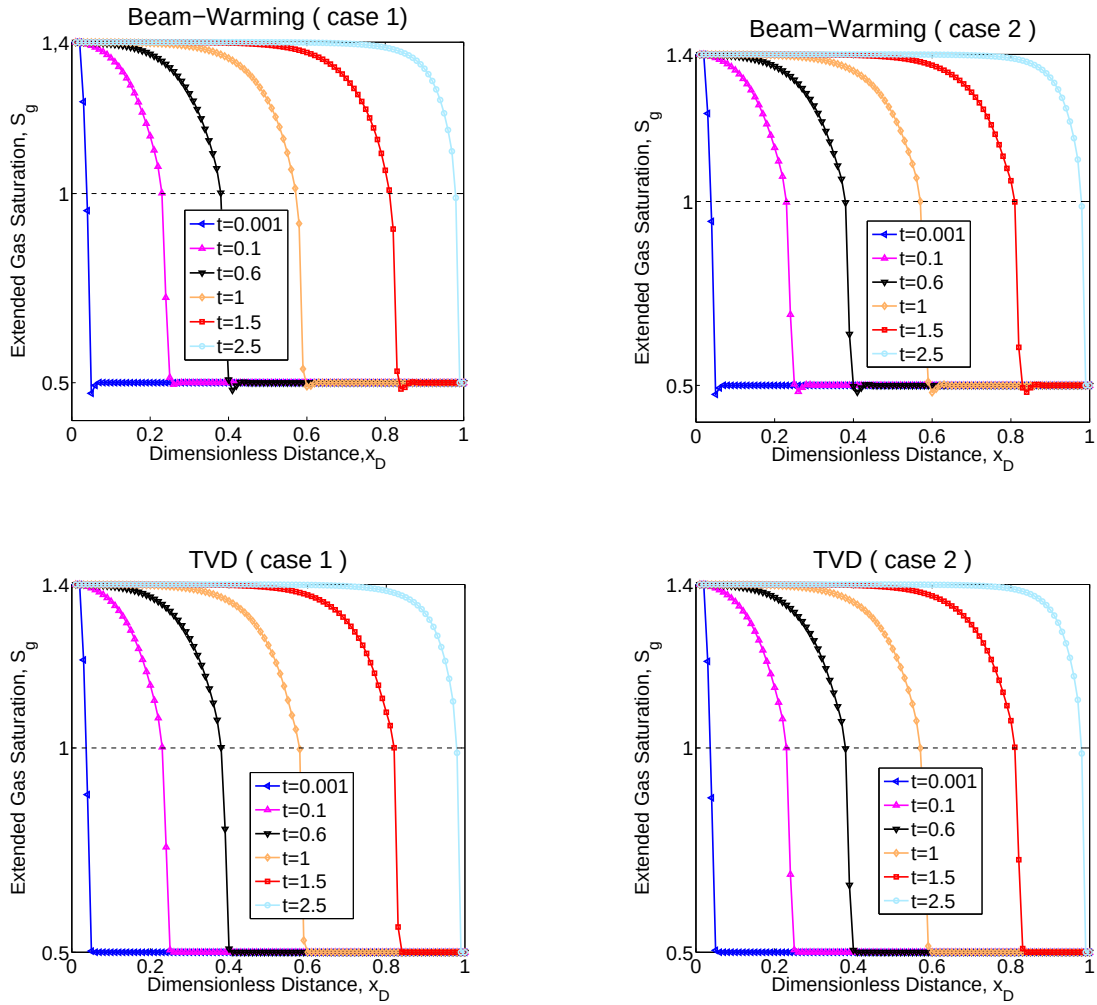


FIGURE 4.4 – Profil de la saturation en gaz pour les différents schémas

Une analyse générale des résultats montre que les différents schémas numériques pour le modèle régularisé et non régularisé donnent le même profil de saturation avec une légère différence qu'on peut considérer comme négligeable concernant la vitesse de déplacement des choc de transition de phase.

Ces différences sont liées soit : aux schémas numériques utilisées si on compare les résultats de deux schémas différents, soit à l'introduction de la diffusion fictif si on compare les résultats du même schéma numérique pour les modèle régularisé et non régularisé.

On peut déduire avec un peu de réserve que la dégénérescence des équations de transport influe d'une manière non significative sur la vitesse de déplacement des choc.

4.2.2 Régularisation par l'introduction de la capillarité

Nous considérons l'effet de la pression capillaire qui représente la différence de pression entre les phases $P_c = P_g - P_l$. elle est nulle lorsque le fluide réel est monophasique et est supposée être fonction de la saturation dans la zone diphasique $P_c = P_c(S_g)$.

Pour obtenir un modèle valide pour tous le domaine, on accepte l'hypothèse suivante : « *la composition de phases du fluide diphasique dépend uniquement de la pression dans le gaz* ». Les conditions d'équivalence dans le tableau 4.1 doivent être complétées par la condition suivante :

$$\delta = \begin{cases} P_c = P_c(S_g) & \text{if } 0 \leq S_g \leq 1 \\ P_c = 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.29)$$

Le système d'équations (4.11) est donc transformé en la même équation différentielle quasi-linéaire du second ordre que (4.15) mais avec un terme de diffusion supplémentaire D_c responsable de la capillarité :

$$\frac{\partial S_g}{\partial t} + \frac{\partial F(S_g)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D^*(S_g) \frac{\partial S_g}{\partial x} \right) \quad (4.30)$$

Où

$$D^*(S_g) = D(S_g) + D_c(S_g), \quad D_c(S_g) = -(1 - \delta(S_g)) \frac{\phi_l c_l^1}{c_g^1 - c_l^1} \frac{dP_c}{dS_g} \quad (4.31)$$

La structure du paramètre de l'extra-diffusion $D^*(S_g)$, représenté sur la Fig.4.5, est maintenant influencé par la capillarité. Il est discontinu mais non nul dans la zone diphasique à l'exception des deux points isolés 0 et 1.

La solution du problème de Riemann formulée précédemment est présenté sur la Fig.4.6. La ligne en pointillé correspond au cas limite où la diffusion et la capillarité sont nulles.

Il est nécessaire de souligner que la capillarité joue le rôle d'une diffusion apparente juste à l'intérieur de la zone diphasique, en étant égale à zéro dans les zones monophasique. Ceci est tout à fait l'inverse de l'extra-diffusion $D(S_g)$ qui est non nul uniquement dans les zones monophasique. Pour cette raison, l'influence de la capillarité sur les IPT est qualitativement la même que celle de la diffusion, étant toutefois « antisymétrique » à elle. Ainsi, si la diffusion a tendance à augmenter la zone diphasique, la capillarité la réduit, ce qui est clairement visible sur la Fig.4.6.

En dépit de la capillarité non nulle, les IPT peuvent être conservées comme des chocs. Dans d'autres situations, en fonction de la structure de la fonction de débit fractionnaire F , la capillarité peut détruire les

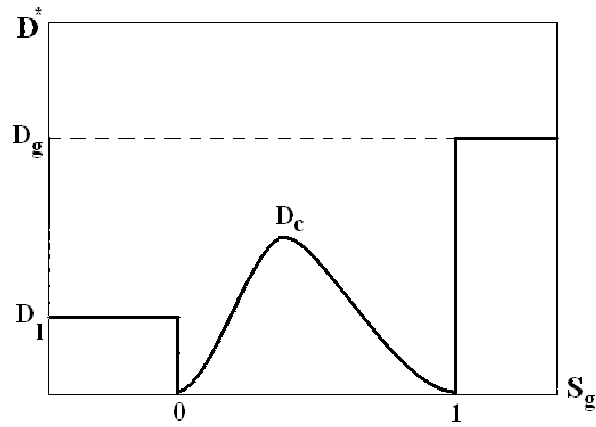


FIGURE 4.5 – Extra-diffusion $D^*(S_g)$

chocs et les transformer en faibles discontinuités. Ces deux situations sont observées dans la Fig.4.6 au voisinage de la IPT droite et la IPT gauche respectivement.

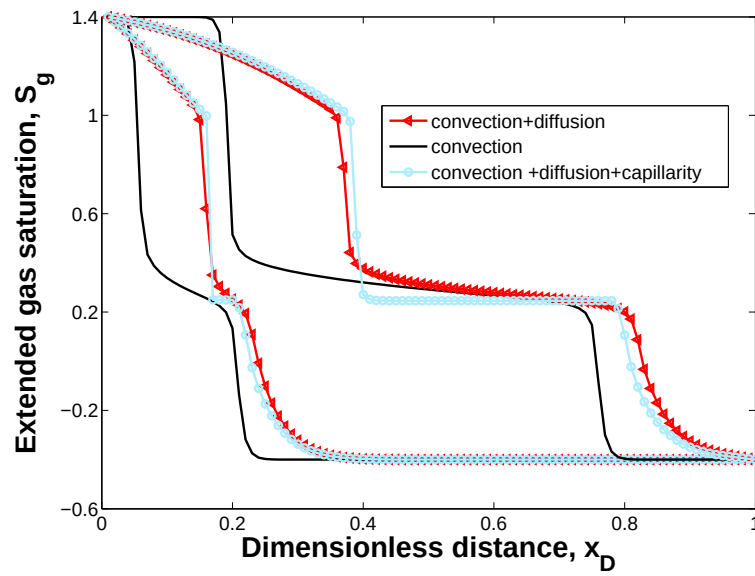
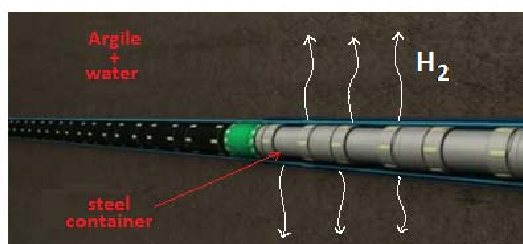


FIGURE 4.6 – Effet de la capillarité sur le comportement des interfaces

4.3 Migration d'hydrogène dans les dépôts souterrains des déchets radioactifs

La production d'hydrogène par corrosion pendant le stockage des déchets radioactifs dans les formations géologiques profondes peut conduire à une forte augmentation de la pression en provoquant la fissuration des formations géologiques, ce qui met en doute la sécurité de ces dernières qui jouent le rôle de barrières naturelles. Afin de prévoir et quantifier le risque, il est indispensable d'étudier la migration de l'hydrogène autour des conteneurs de stockage.



Exemple 2

FIGURE 4.7 – Génération d'hydrogène dans un site de stockage

Dans cette section, nous présentons un modèle mathématique spécifique à la migration d'hydrogène dans les dépôts souterrains des déchets radioactifs. La compressibilité des fluides et les effets de la diffusion et de la capillarité ont été prises en considérations dans ce modèle. Des simulations numériques ont été réalisées pour des différents cas test afin de montrer la capacité de notre modèle à détecter l'apparition/disparition de la phase gazeuse.

4.3.1 Formulation du problème

Il s'agit d'un écoulement diphasique gaz-liquide de deux composants dans un milieu poreux initialement saturé en eau. Les deux composants sont l'hydrogène et l'eau.

Dans ce qui suit, nous utiliserons les indices " l " et " g " pour désigner les phases liquide et gaz respectivement et les indices " h " et " w " pour désigner les composants hydrogène et eau.

4.3.1.1 Lois de dissolution

- On suppose que la phase gazeuse est un mélange parfait. La pression totale du mélange gazeux est exprimée par la loi de Dalton comme étant la somme des pressions partielles des deux composants présents dans le mélange :

$$P_g = P_g^h + P_g^w \quad (4.32)$$

- On néglige la vaporisation de l'eau, puisque dans des formations souterraines saturées en eau à haute pression, la vapeur d'eau ne contribue pas de manière significative à la pression de la phase gazeuse. Ainsi, le gaz est composé uniquement d'hydrogène :

$$P_g = P_g^h \quad (4.33)$$

- En utilisant l'équation d'état d'un gaz parfait et (4.32), la masse volumique d'hydrogène dans le gaz est donnée par :

$$\rho_g^h = P_g \frac{M^h}{RT} \quad (4.34)$$

Où M^h est la masse molaire d'hydrogène, R la constante universelle des gaz et T la température .

- La masse volumique de l'eau dans le gaz est donnée égal à zéro :

$$\rho_g^w = 0 \quad (4.35)$$

La masse volumique du gaz est égale à la masse volumique d'hydrogène :

$$\rho_g = \rho_g^h \quad (4.36)$$

- On suppose que l'hydrogène peut être présent dans les deux phases, donc la phase liquide peut être constituée d'eau et d'hydrogène dissous, sa masse volumique est donnée par :

$$\rho_l = \rho_l^h + \rho_l^w \quad (4.37)$$

- Compte tenu de la faible dissolution de l'hydrogène dans le liquide, sa masse volumique est approximée par la loi d'Henry comme une fonction linéaire de P_g

$$\rho_l^h = H^h(T) M^h P_g \quad (4.38)$$

Où H^h est la constante d'Henry, elle ne dépend que de la température.

- En supposant que l'eau est incompressible et que le volume du liquide ne dépend pas de la concentration de l'hydrogène dissous, on peut considérer que la masse volumique de l'eau dans la phase liquide comme étant constante :

$$\rho_l^w = \rho_l^{std} = \text{const} \quad (4.39)$$

Où ρ_l^{std} la masse volumique standard de l'eau .

- La fraction massique (concentration) de chaque composant dans chaque phase est donnée par le rapport de la masse volumique de chaque composant dans chaque phase sur la la masse volumique de la phase .

$$c_j^i = \frac{\rho_j^i}{\rho_i}, \quad i \in \{h, w\}, \quad j \in \{g, l\} \quad (4.40)$$

Remarque :

Notez que sous ces hypothèses 1) si une phase gazeuse existe, elle est en équilibre avec la phase liquide (il n'y a pas de gaz monophasique en déséquilibre) 2) la concentration de l'eau dans le gaz est égale à zéro.

4.3.1.2 Modèle mathématique

En utilisant le modèle Neg-Sat (4.9) l'écoulement dans les zones saturées et non-saturées est décrit par le système uniforme suivant :

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} (\rho_g c_g^h S_g + \rho_l c_l^h S_l) + \nabla \cdot (\rho_g c_g^h \mathbf{v}_g^h + \rho_l c_l^h \mathbf{v}_l^h) = 0 \quad (4.41a)$$

$$\phi \frac{\partial}{\partial t} (\rho_g c_g^w S_g + \rho_l c_l^w S_l) + \nabla \cdot (\rho_g c_g^w \mathbf{v}_g^w + \rho_l c_l^w \mathbf{v}_l^w) = 0 \quad (4.41b)$$

Les vitesses individuelles de chaque composant $i \in \{h, w\}$ dans les phases gazeuse et liquide sont donnés comme la somme des lois de Darcy et de Fick,

$$\vec{v}_g^i = -\frac{Kk_{rg}}{\mu_g} \nabla P_g - \frac{\phi D_g^i S_g}{c_g^i} \nabla c_g^i - \delta \phi D_g^i \nabla S_g \quad (4.42)$$

$$\vec{v}_l^i = -\frac{Kk_{rl}}{\mu_l} \nabla (P_g - P_c) - \frac{\phi D_l^i S_l}{c_l^i} \nabla c_l^i - \delta \phi D_l^i \nabla S_l \quad (4.43)$$

Complétées par les conditions d'équivalence suivantes :

1. Dans le cas où la saturation étendue du gaz est négative (la saturation étendue liquide supérieure à un) les propriétés des phases imaginaires sont définies par :

$$\rho_g = \rho_l = \tilde{\rho}_l \quad (4.44a)$$

$$\frac{k_{rg}}{\mu_g} = \frac{S_g}{\mu_l} \quad \text{and} \quad \frac{k_{rl}}{\mu_l} = \frac{S_l}{\mu_l} \quad (4.44b)$$

$$P_c(S_g) = 0 \quad \text{and} \quad P_g = P_l \quad (4.44c)$$

$$D_g^i = D_l^i = \tilde{D}_l^i \quad i \in \{h, w\} \quad (4.44d)$$

Le symbole "tilde" désigne les propriétés du fluide monophasique réel.

2. Si les saturations étendues sont entre 0 et 1 , les véritables propriétés des phases sont utilisées.

Dans le système d'équations (4.41), nous avons choisi comme variables indépendantes la pression et la saturation en gaz (P_g, S_g). Le modèle peut être reformulé en terme de ces deux inconnus comme suit :

$$A^{1,1} \frac{\partial}{\partial t} P_g + A^{1,2} \frac{\partial}{\partial t} S_g - \nabla \cdot (B^{1,1} \nabla P_g + B^{1,2} \nabla S_g) = 0 \quad (4.45a)$$

$$A^{2,1} \frac{\partial}{\partial t} P_g + A^{2,2} \frac{\partial}{\partial t} S_g - \nabla \cdot (B^{2,1} \nabla P_g + B^{2,2} \nabla S_g) = 0 \quad (4.45b)$$

Où

$$A^{1,1}(P_g, S_g) = S_g \frac{\partial \rho_g}{\partial P_g} + (1 - S_g) \frac{\partial \rho_l c_l^h}{\partial P_g} \quad (4.46a)$$

$$A^{1,2}(P_g, S_g) = \rho_g - \rho_l c_l^h \quad (4.46b)$$

$$A^{2,1}(P_g, S_g) = (1 - S_g) \frac{\partial \rho_l c_l^w}{\partial P_g} \quad (4.46c)$$

$$A^{2,2}(P_g, S_g) = -\rho_l c_l^w \quad (4.46d)$$

$$B^{1,1}(P_g, S_g) = \rho_g \lambda_g(S_g) + \rho_l c_l^h \lambda_l(S_g) + D_l (1 - S_g) \frac{\partial \rho_l c_l^h}{\partial P_g} \quad (4.46e)$$

$$B^{1,2}(P_g, S_g) = -\delta(S_g) (D_l \rho_l c_l^h) - \rho_l c_l^h \lambda_l(S_g) \frac{\partial P_c(S_g)}{\partial S_g} \quad (4.46f)$$

$$B^{2,1}(P_g, S_g) = \rho_l c_l^w \lambda_l(S_g) + D_l (1 - S_g) \frac{\partial \rho_l c_l^w}{\partial P_g} \quad (4.46g)$$

$$B^{2,2}(P_g, S_g) = -\delta(S_g) (D_l \rho_l c_l^w) - \rho_l c_l^w \lambda_l(S_g) \frac{\partial P_c(S_g)}{\partial S_g} \quad (4.46h)$$

$$\text{Où } \lambda_j = \frac{K k_{rj}}{\mu_j \phi}, \quad j = g, l, \quad c_g^w = 0, \quad c_g^h = 1 \quad \text{et} \quad D_l^h = D_l^w = D_l.$$

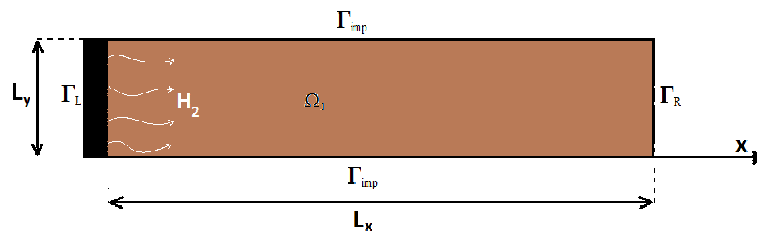
Remarque :

Puisque tous ces coefficients dépendent de la saturation, ils sont discontinus à travers une IPT et continus et dérivables de chaque côté de l'interface.

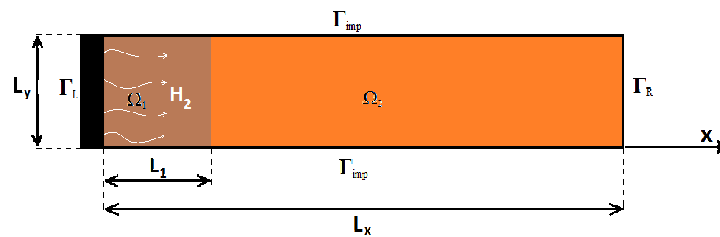
4.3.2 Tests numériques

Dans cette section, nous allons examiner une situation typique au stockage souterrain des déchets radioactifs pour montrer la capacité du modèle Neg-Sat à capturer l'apparition / disparition des phases.

On considère un milieu poreux horizontal Ω représenté par un domaine rectangulaire de dimension $L_x \times L_y$. l'écoulement est supposé être 1D dans la direction x . Nous examinons deux cas tests : *exemple 1* : le milieu poreux est homogène ($\Omega = \Omega_1$). *exemple 2* : le milieu poreux est hétérogène et comporte deux sous-domaines Ω_1 et Ω_2 avec des propriétés différentes.



Exemple 1



Exemple 2

FIGURE 4.8 – La géométrie du milieu poreux

Les données du milieu poreux, des propriétés des fluides et de la simulation sont données dans le tableau (Tab.4.5)

La pression capillaire et les perméabilités relatives sont données par les corrélations de Van Genuchten-Mualem en fonction de la saturation effective :

4.3. Migration d'hydrogène dans les dépôts souterrains des déchets radiactifs

Milieu poreux	caractéristiques des fluides	paramètres de simulation
paramètres de Ω_1		
K 10^{-18} m^2		
ϕ 0.3		
P_r 2.10^6 Pa	D_l 3.10^{-9} m^2/s	
n 1,54	μ_l 10^{-3} $Pa.s$	
S_{lr} 0.01	μ_g 9.10^{-6} $Pa.s$	L_x 200 m
S_{gr} 0	H_{H_2} $7.65.10^{-6}$ $mol/Pa/m^3$	Q^h $5,57.10^{-6}$ $kg/m^2/years$
paramètres de Ω_2	M_{H_2} 2.10^{-3} Kg/mol	$P_{l,init}$ 10^6 Pa
K 5.10^{-20} m^2	ρ_{std}^w 10^3 Kg/m^3	T_{simul} 10^6 $years$
ϕ 0.15	R 8.314472 $m^3.Pa/K.mol$	
P_r 15.10^6 Pa	T 303 K	
n 1.49		
S_{lr} 0.4		
S_{gr} 0		

Tableau 4.5 – Les données physiques

$$\begin{cases} k_{rl} = \sqrt{S_{le}} \left(1 - \left(1 - S_{le}^{1/m}\right)^m\right)^2 \\ k_{rg} = \sqrt{1 - S_{le}} \left(1 - S_{le}^{1/m}\right)^{2m} \\ P_c = P_r \left(S_{le}^{-1/m} - 1\right)^{1/n} \end{cases}$$

$$\text{Où } S_{le} = \frac{S_l - S_{lr}}{1 - S_{lr} - S_{gr}}, \quad \text{et } m = 1 - \frac{1}{n}$$

Où S_{le} est la saturation effective de la phase liquide, S_{gr} et S_{lr} sont les saturations résiduelles du gaz et du liquide respectivement. n, m et P_r sont les paramètres de Van-Genuchten.

4.3.2.1 Conditions initiales et aux limites

- A l'état initial, l'ensemble du domaine est totalement saturé en eau pure. Des conditions initiales uniformes de pression et de saturation de gaz (ou de la concentration totale) sont données par $P_l = P_g = P_{g,init}$ et $S_g = S_{g,init} < 0$, avec :

$$S_{g,init} = \frac{C^h - c_l^h}{1 - c_l^h} = -\frac{c_l^h}{1 - c_l^h} \quad (4.47)$$

- L'hydrogène est injecté(ou produit) avec un flux constant dans l'extrémité gauche Γ_L :

$$\begin{cases} \left(\frac{Kk_{rg}\rho_g}{\mu_g} + \frac{Kk_{rl}\rho_l c_l^h}{\mu_l} \right) \frac{\partial P_g}{\partial x} + \phi D_l^h \rho_l (1 - S_g) \frac{\partial c_l^h}{\partial x} - \delta(S_g) \phi D_l \rho_l c_l^h \frac{\partial S_g}{\partial x} = -Q^h \\ \frac{Kk_{rl}\rho_l c_l^w}{\mu_l} \frac{\partial P_g}{\partial x} - \frac{Kk_{rl}\rho_l c_l^w}{\mu_l} \frac{\partial P_c}{\partial x} + \phi D_l \rho_l (1 - S_g) \frac{\partial c_l^w}{\partial x} - \delta(S_g) \phi D_l \rho_l c_l^w \frac{\partial S_g}{\partial x} = 0 \end{cases} \quad (4.48)$$

- La production se fait sur l'extrémité droite Γ_R considérée comme non perturbée, afin d'avoir que de l'eau pure sur cette extrémité $P_l = P_g = P_{g,init}$ et $S_g = S_{g,init}$.
- Les autres frontières sont imperméables. Il n'y a pas d'injection / extraction à l'intérieur du domaine.

4.3.2.2 Discrétisation

Le réservoir est divisé en une grille cartésienne numérotées de 1 à N_x . Par souci de simplicité, on suppose un maillage cartésien régulier. Le système d'équations (4.45) est discrétisé en utilisant la méthode standard des volumes finis et le schéma implicite. Les non-linéarités et les discontinuités sont traitées de la même manière que dans les sections 4.2.1.1.1 et 4.2.1.1.2. En Réorganisant les $2N_x$ équations résultantes, nous obtiendrons un système linéaire 2 x 2 par bloc qui peut être résolu en utilisant la méthode de Gauss-Seidel.

$$A_i^{n+1} \frac{u_i^{n+1} - u_i^n}{\Delta t} - \left(B_{i+\frac{1}{2}}^{n+1} \frac{u_{i+1}^{n+1} - u_i^{n+1}}{\Delta x} - B_{i-\frac{1}{2}}^{n+1} \frac{u_i^{n+1} - u_{i-1}^{n+1}}{\Delta x} \right) = 0, \quad u_i^n = \begin{pmatrix} P_{g_i}^n \\ S_{g_i}^n \end{pmatrix} \quad (4.49)$$

4.3.2.3 Résultats et discussions

4.3.2.3.1 Exemple 1

- **Stage 1** : Au début de la simulation ($t = 0 - 5.310^4$ ans) l'hydrogène injecté (généré) dans la frontière d'entrée se dissout dans la phase liquide (pas de phase gazeuse) est transporté vers la frontière de sortie par convection et diffusion ce qui conduit à l'augmentation de la saturation étendue dans l'ensemble du réservoir et en particulier à proximité du point d'injection tout en restant inférieur à zéro (Fig4.9). Donc, à ce stade, il y a uniquement une phase liquide dans le réservoir. Les pression fictives du gaz et du liquide augmentent à leur tour mais avec des valeurs très petites puisque le débit d'injection d'hydrogène est très faible (Fig4.10).

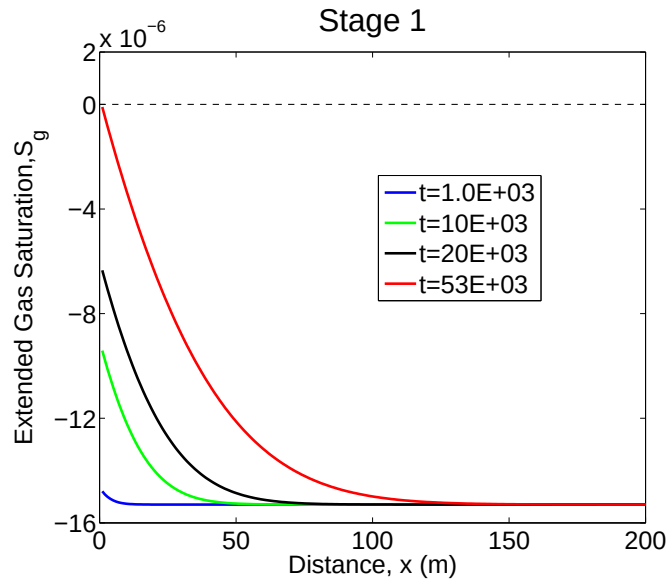


FIGURE 4.9 – Profil de saturation en gaz «stage 1 »

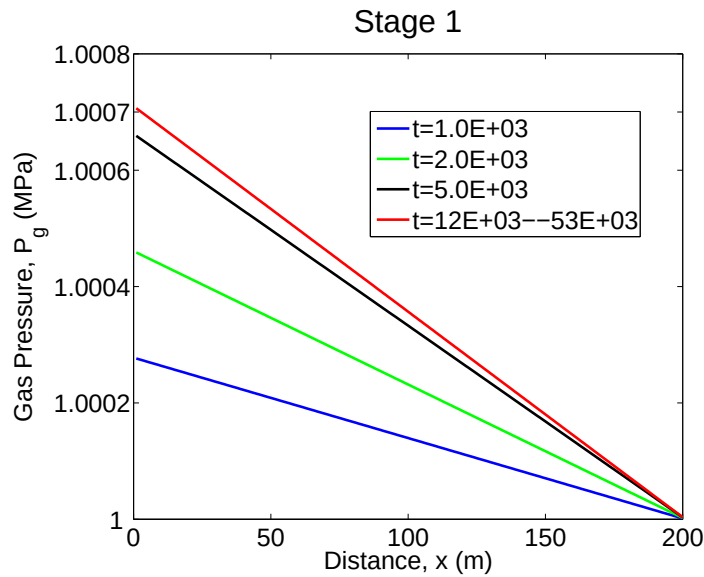


FIGURE 4.10 – Profil de pression de gaz «stage 1 »

- **Stage 2 :** Au fil du temps, l'hydrogène dissous s'accumule près de la frontière d'entrée et la saturation étendue continue à augmenter jusqu'à ce qu'elle atteigne la valeur zéro à $t = 53000$ ans (Fig4.11). À ce moment, une phase gazeuse apparaît autour de la bordure d'entrée, en équilibre avec la phase liquide en formant une zone diphasique. Le reste du réservoir est monophasique liquide. A cause de l'augmentation de la pression (Fig4.12), la zone diphasique se répand dans l'ensemble du réservoir obligeant la phase liquide de s'écouler vers la sortie.

Ces deux zones sont séparées par une interface de transition de phase qui se déplacent avec le temps dans la même direction de l'écoulement provoquant l'expansion de la zone diphasique et le retrait de la zone monophasique liquide. Le réservoir garde ce profil jusqu'à la fin de la simulation ($t = 10^6 \text{ans}$).

A la fin de la simulation, la saturation étendue atteint une valeur maximale de 0,08 à proximité du point d'entrée, et la pression maximale est de l'ordre de 12 bars.

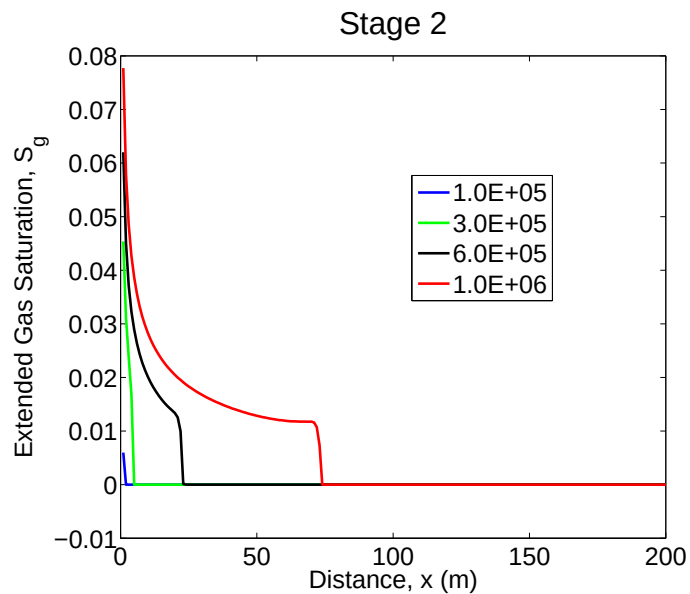


FIGURE 4.11 – Profil de la saturation en gaz «stage 2»

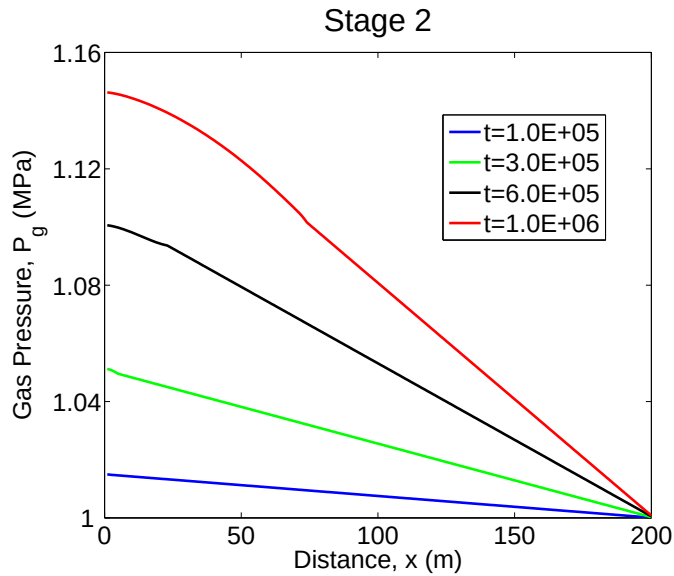


FIGURE 4.12 – Profil de pression de gaz «stage 2»

Afin de vérifier la fiabilité des résultats obtenus, une solution analytique au problème juste avant l'apparition de la zone diphasique (Stage 1) a été calculée dans l'ANNEXE C. Les résultats obtenus pour les deux méthodes (Neg-Sat et analytique) ne sont pas exactement les mêmes mais restent du même ordre. Ceci est bien illustré par le moment d'apparition du gaz $t_a(Neg - sat) = 5.310^4$ ans et $t_a(analytique) = 5.043310^4$ ans. Cela est dû aux simplifications utilisées dans la solution analytique.

4.3.2.3.2 Exemple 2

- Ce qui se passe dans les milieux poreux entre 0 – 9.10^5 ans est similaire à l'exemple précédent. L'hydrogène généré s'accumule près de la frontière d'entrée provoquant l'augmentation de la saturation étendue jusqu'à ce qu'elle atteigne la valeur zéro (fig4.13). Ensuite, un choc de transition de phase est formé et se propage vers la droite.

À $t=9.10^5$ ans, cette interface de transition de phase (front de saturation) atteint la discontinuité du milieu ($x = 20m$) et une discontinuité supplémentaire est formée dans le profil de saturation.

- A partir de 9.10^5 ans jusqu'à la fin de la simulation, la saturation en gaz continue d'augmenter de chaque côté de la discontinuité du milieu. Le front de saturation continu de se déplacer vers la frontière de sortie en provoquant l'expansion de la zone diphasique et le retrait de la phase monophasique liquide(fig4.15).
- Les pression fictives du gaz et du liquide à leur tour augmentent avec des valeurs faibles (fig4.14) et (fig4.16).

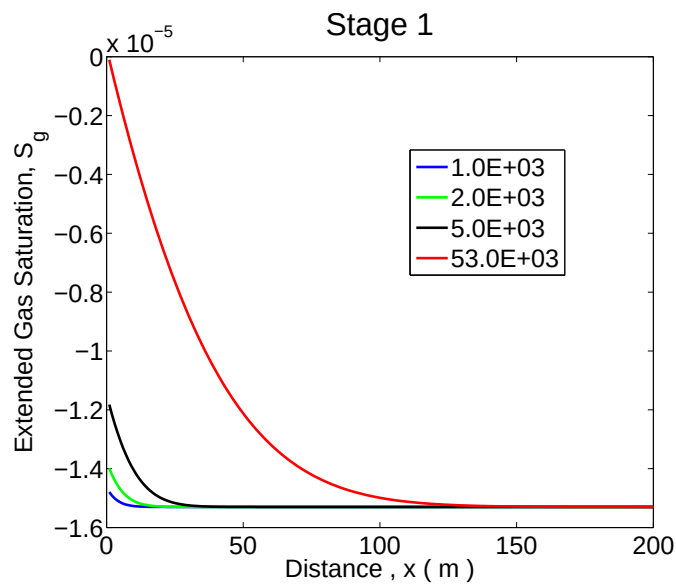


FIGURE 4.13 – Profil de la saturation en gaz «stage 1 »

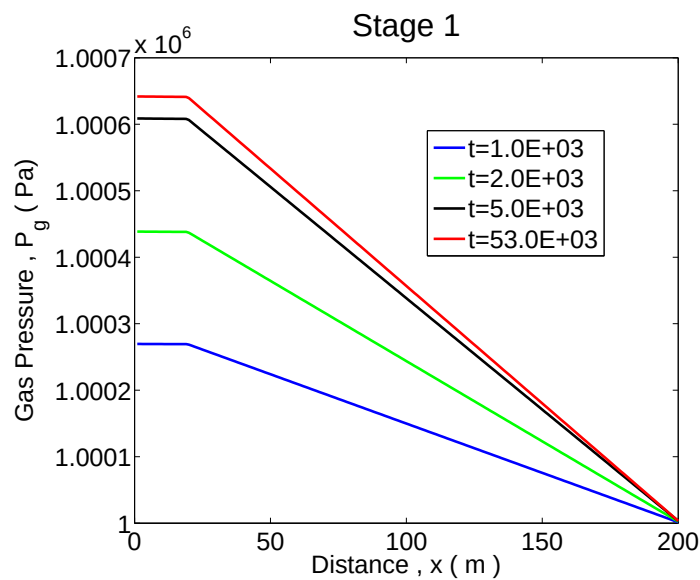


FIGURE 4.14 – Profil de pression de gaz «stage 1 »

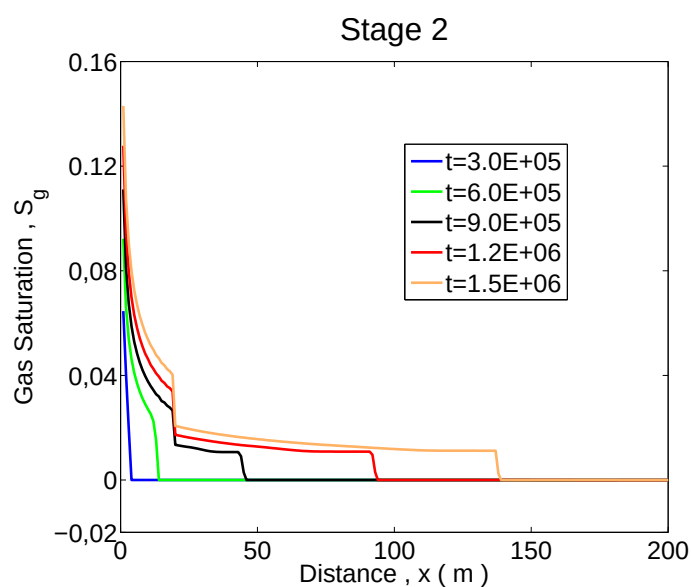


FIGURE 4.15 – Profil de la saturation en gaz «stage 2 »

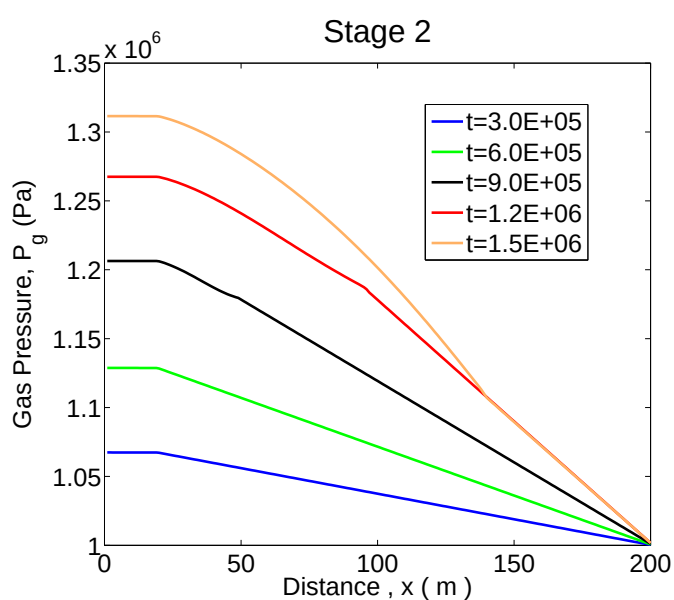


FIGURE 4.16 – Profil de pression de gaz «stage 2 »

4.4 Conclusion

Si en plus de la convection, le mouvement du fluide est également contrôlé par la diffusion, nous avons pu montrer que le principe d'équivalence nécessite l'introduction d'un terme supplémentaire dans les équations diphasiques classiques en plus des propriétés physiques spécifiques du fluide fictif présentées dans le chapitre 2.

Ce nouveau terme appelé "*Extra-Diffusion*" disparaît à l'intérieur de la zone diphasique. Pour éviter la dégénérescence locale de ce terme, une régularisation a été réalisée 1) en introduisant une diffusion fictive à l'intérieur de la zone diphasique 2) par l'introduction de la capillarité qui remplace le terme d'extra-diffusion juste à l'intérieure de la zone diphasique.

Afin de s'assurer de la fiabilité de notre modèle, nous avons effectué une série de simulations numériques en utilisant différents schémas numériques.

Pour finir, le modèle régularisé obtenu a été adapté et appliqué à la simulation de la migration d'hydrogène durant le stockage souterrain des déchets radioactifs. Les résultats obtenus montrent une bonne concordance entre le moment d'apparition du gaz au voisinage des conteneurs de stockage obtenu par simulation numérique et celui obtenu à partir de la solution analytique.

Chapitre 5

La méthode *Neg-Sat* pour un écoulement régé par gravité

Dans plusieurs cas réels, l'effet de la gravité ne peut être négligé. Il est donc impératif de prendre en considération le terme responsable de la gravité dans les équations diphasiques uniformes. Nous allons voir que dans ce cas, tout comme le cas de la diffusion, le principe d'équivalence entre un fluide monophasique et un fluide diphasique fictif ne peut pas être prouvé par le biais des équations diphasiques classiques et qu'un terme supplémentaire appelé «*extra-gravité*» apparaît dans ces équations afin d'assurer l'équivalence.

5.1 Equations diphasiques uniformes

Considérons un écoulement diphasique compositionnel qui présente un fluide non saturé (deux phase gaz/liquide) en contact avec un fluide sur/sous-saturé (une seule phase gaz ou liquide). Les forces de gravité, les forces visqueuses, la capillarité, la diffusion et la compressibilité du fluide sont prises en considération. La température T et la porosité ϕ sont supposées constantes.

Les équations d'un écoulement monophasique dans ce cas sont :

$$\phi \frac{\partial \rho C^i}{\partial t} = \text{div} \left(\frac{K \rho C^i}{\mu} (\nabla P - \rho^m \vec{g}) + \phi \rho D^i \nabla C^i \right), \quad i = \overline{1, N} \quad (5.1)$$

Complétées par les relations de fermeture (2.2).

Où $\vec{g}$ le vecteur d'accélération de la pesanteur ; ρ^m la masse volumique du fluide [kg/m^3] qui est liée à la densité molaire ρ par la relation suivante :

$$\rho^m = \rho \sum_{i=1}^N C^i M^i \quad (5.2)$$

Où M^i la masse molaire du composant i .

En appliquant le principe d'équivalence, ce fluide monophasique peut être remplacé par un fluide diphasique fictif dont l'écoulement est décrit par les équations uniformes suivantes, pour $i = \overline{1, N}$

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i S_j = & \text{div} \left(K \sum_{j=g,l} \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} (\nabla P_j - \rho_j^i \vec{g}) + \phi \sum_{j=g,l} D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i \right) + \\ & \underbrace{\text{div} \left(\phi \sum_{j=g,l} D_j^i \rho_j c_j^i \nabla S_j \right)}_{\text{extra-diffusion}} + \underbrace{\text{div} \left(K \left(\frac{\rho_g c_g^i}{\mu_g} - \frac{\rho_l c_l^i}{\mu_l} \right) S_g S_l (\rho_g^m - \rho_l^m) \vec{g} \right)}_{\text{extra-gravity}} \end{aligned} \quad (5.3)$$

Où $\rho_j^m = \rho_j \sum_{i=1}^N c_j^i M^i$. L'apparition de deux termes supplémentaires, extra-diffusion et extra-gravité, est nécessaire pour parvenir à l'équivalence, qui peut être prouvée mathématiquement.

5.2 Preuve d'équivalence

La forme de l'extra-diffusion est prouvée dans le chapitre précédent, il suffit donc de prouver seulement la forme de l'extra-gravité.

Pour assurer l'équivalence, les termes de gravité dans les équations monophasiques et diphasiques doivent être identiques :

$$\frac{\rho_g k_{rg} c_g^i}{\mu_g} \rho_g \sum_{k=1}^N c_g^k M^k + \frac{\rho_l k_{rl} c_l^i}{\mu_l} \rho_l \sum_{k=1}^N c_l^k M^k = \frac{\rho C^i}{\mu} \rho \sum_{k=1}^N C^k M^k \quad (5.4)$$

En acceptons les conditions d'équivalence données précédemment (2.6),(2.7) et (2.8), on obtient :

$$\frac{\rho^2}{\mu} \sum_{k=1}^N M^k \left[c_g^k c_g^i S_g + c_l^k c_l^i S_l \right] \neq \frac{\rho^2}{\mu} \sum_{k=1}^N M^k C^k C^i \quad (5.5)$$

Ainsi, en raison du terme de gravité, les conditions d'équivalence classiques ne garantissent pas l'équivalence entre les fluides réels et fictifs. Il est possible de le garantir uniquement par l'introduction d'un nouveau terme Φ dans les équations diphasiques.

On écrit :

$$\left(\frac{\rho^2}{\mu} \sum_{k=1}^N M^k \underbrace{\left[c_g^k c_g^i S_g + c_l^k c_l^i S_l \right]}_I \right) + \Phi = \frac{\rho^2}{\mu} \sum_{k=1}^N M^k C^k C^i \quad (5.6)$$

$$I = \left(\sum_{j=g,l} c_j^i S_j \right) \left(\sum_{j=g,l} c_j^k S_j \right) - \left(\sum_{j=g,l} c_j^i S_j \right) \left(\sum_{j=g,l} c_j^k S_j \right) + (c_g^k c_g^i S_g + c_l^k c_l^i S_l)$$

$$I = C^i C^k + \underbrace{S_g S_l (c_g^i - c_l^i)(c_g^k - c_l^k)}_{I'}$$

Pour assurer l'équivalence, le terme Φ devrait éliminer le terme I' .

$$\Phi = \frac{\rho^2}{\mu} S_g S_l (c_g^i - c_l^i) \sum_{k=1}^N M^k (c_g^k - c_l^k)$$

En utilisant la condition d'équivalence pour la densité molaire et la relation (5.2), on trouve :

$$\Phi = \left(\frac{\rho_g c_g^i}{\mu_g} - \frac{\rho_l c_l^i}{\mu_l} \right) S_g S_l (\rho_g^m - \rho_l^m) \quad (5.7)$$

Remarque :

Les deux termes, extra-diffusion et extra-gravité, disparaissent des équations uniformes (5.3) si le fluide réel est diphasique.

5.3 Mélange binaire idéal

L'objectif est de développer un modèle simple capable de mettre en évidence le phénomène d'apparition/disparition des phases et l'effet de la gravité sur l'écoulement dans un milieu poreux, afin de l'utiliser par la suite pour simuler certains problèmes rencontrés lors de la récupération assistée du pétrole.

Pour cela, nous acceptons les hypothèses suivantes :

- mélange idéal dans chaque phase .
- faible variation de pression (l'un des objectifs de l'injection de gaz est de maintenir la pression)
- mélange binaire.

Par conséquent, les équations d'écoulement (5.3) prennent la forme suivante,

$$\nabla \cdot (K \lambda \nabla P_g) = \nabla \cdot (K \lambda_l \nabla P_c) - g \nabla \cdot (K (\lambda_g \rho_g^m + \lambda_l \rho_l^m) \vec{e}_z) \quad (5.8a)$$

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial S_g}{\partial t} = & \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) + g \nabla_z (K \lambda_g \rho_g^m) + \delta(S) \nabla \cdot (\phi \hat{D}_j \nabla S_g) - \\ & \delta(S) g \nabla_z \left(\frac{K}{\hat{\mu}_j} S_g (1 - S_g) (\rho_g^m - \rho_l^m) \right) \end{aligned} \quad (5.8b)$$

La première équation représente **l'équation de la pression** , la deuxième **l'équation de la saturation**.

5.3.1 Démonstration de (5.8)

Sous les hypothèses précédentes, les équations (5.3) deviennent pour $i = 1, 2$

$$\begin{aligned}
 \phi(c_g^i - c_l^i) \frac{\partial S}{\partial t} &= \nabla \cdot (K(\lambda_g c_g^i + \lambda_l c_l^i) \nabla P_g) - \nabla \cdot (K \lambda_l c_l^i \nabla P_c) + \\
 &\nabla \cdot (\phi D_g S_g \nabla c_g^i + \phi D_l (1 - S_g) \nabla c_l^i) + g \nabla \cdot (K(\lambda_g \rho_g^m c_g^i + \lambda_l \rho_l^m c_l^i) \vec{e}_z) + \\
 &\delta(S_g) \nabla \cdot (\phi (D_g c_g^i - D_l c_l^i) \nabla S_g) - g \delta(S_g) \nabla \cdot \left(K \left(\frac{c_g^i}{\mu_g} - \frac{c_l^i}{\mu_l} \right) S_g (1 - S_g) (\rho_g^m - \rho_l^m) \vec{e}_z \right)
 \end{aligned} \tag{5.9}$$

Où

$$\lambda_j = \frac{k_{rj}}{\mu_j} \quad \text{et} \quad \nabla c_g^i = \nabla c_l^i \approx 0$$

La somme des deux équations (5.9) donne :

$$\nabla \cdot (K \lambda \nabla P_g) = \nabla \cdot (K \lambda_l \nabla P_c) - g \nabla \cdot (K(\lambda_g \rho_g^m + \lambda_l \rho_l^m) \vec{e}_z) \tag{5.10}$$

Il s'agit de l'équation de la pression. Avec $\lambda = \lambda_g + \lambda_l$.

Le terme de convection dans (5.9) peut être écrit en fonction de fractional flow function :

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot (K(\lambda_g c_g^i + \lambda_l c_l^i) \nabla P_g) &\equiv \nabla \cdot (K(c_g^i f_g + c_l^i (1 - f_g)) \lambda \nabla P_g) \\
 &= c_g^i \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) - c_l^i \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) + c_l^i \nabla \cdot (K \lambda \nabla P_g) \\
 &= \Delta c^i \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) + c_l^i \nabla \cdot (K \lambda \nabla P_g)
 \end{aligned} \tag{5.11}$$

Où $f_g = \frac{\lambda_g}{\lambda}$ et $\Delta c^i = c_g^i - c_l^i$

En substituant (5.10) dans (5.11), on trouve :

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot (K(\lambda_g c_g^i + \lambda_l c_l^i) \nabla P_g) &\equiv \Delta c^i \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) + c_l^i \nabla \cdot (K \lambda_l \nabla P_c) - \\
 &g c_l^i \nabla_z \cdot (K(\lambda_g \rho_g^m + \lambda_l \rho_l^m))
 \end{aligned} \tag{5.12}$$

En remplaçant (5.12) dans (5.9), on obtient :

$$\begin{aligned}
 \phi \Delta c^i \frac{\partial S_g}{\partial t} = & \Delta c^i \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) + c_l^i \nabla \cdot (K \lambda_l \nabla P_c) - \nabla \cdot (K c_l^i \lambda_l \nabla P_c) - \\
 & g \nabla_z (K (\lambda_g \rho_g^m c_l^i + \lambda_l \rho_l^m c_g^i - \lambda_g \rho_g^m c_g^i - \lambda_l \rho_l^m c_l^i)) + \\
 & \delta(S) \nabla \cdot (\phi (D_g c_g^i - D_l c_l^i) \nabla S_g) - \\
 & g \delta(S) \nabla_z \left(K \left(\frac{c_g^i}{\mu_g} - \frac{c_l^i}{\mu_l} \right) S_g (1 - S_g) (\rho_g^m - \rho_l^m) \right)
 \end{aligned} \tag{5.13}$$

Si le fluide réel est diphasique, l'extra-diffusion et extra-gravité (les deux derniers termes dans (5.13)) disparaissent. Si le fluide réel est monophasique, et d'après les conditions d'équivalence, $D_g = D_l = \hat{D}_j$ et $\mu_g = \mu_l = \hat{\mu}_j, j \in \{g, l\}$. Ces termes peuvent être simplifier en :

$$\Delta c^i \delta(S) \nabla \cdot (\phi \hat{D}_j \nabla S_g) - g \Delta c^i \delta(S) \nabla_z \left(\frac{K}{\hat{\mu}_j} S_g (1 - S_g) (\rho_g^m - \rho_l^m) \right)$$

et Δc^i peuvent être éliminés de l'équation (5.13) :

$$\begin{aligned}
 \phi \frac{\partial S_g}{\partial t} = & \nabla \cdot (K f_g \lambda \nabla P_g) + g \nabla_z (K \lambda_g \rho_g^m) + \delta(S) \nabla \cdot (\phi \hat{D}_j \nabla S_g) - \\
 & \delta(S) g \nabla_z \left(\frac{K}{\hat{\mu}_j} S_g (1 - S_g) (\rho_g^m - \rho_l^m) \right)
 \end{aligned} \tag{5.14}$$

Il s'agit de l'équation de la saturation.

Remarques :

- En raison de la faible variation de pression, les concentrations de phase sont supposées constantes, par conséquent $\nabla c_g^i = \nabla c_l^i = 0$.
- Le terme capillaire disparaît dans l'équation de saturation.

5.3.2 Forme adimensionnelle

Les équations canoniques (5.8) peuvent être écrites sous forme adimensionnelle en introduisant les variables adimensionnelle suivantes :

$$\begin{aligned}
 t_* = \frac{\mu_g L^2 \langle \phi \rangle}{\langle k \rangle P^0}, \quad \omega = \frac{\rho_g^m g H}{P^0} \frac{1}{\varepsilon_H}, \quad \varepsilon_H = \frac{H}{L}, \quad Pe = \frac{\langle K \rangle P^0}{\langle \phi \rangle \mu_g D_g} \\
 \bar{K} = \frac{K}{\langle K \rangle}, \quad p = \frac{P_g}{P^0}, \quad p_c = \frac{P_c}{P^0}, \quad \bar{\phi} = \frac{\phi}{\langle \phi \rangle}, \quad \bar{\rho} = \frac{\rho_l^m}{\rho_g^m}
 \end{aligned}$$

$$\Lambda_g = k_{rg}, \quad \Lambda_l = k_{rl} \frac{\mu_g}{\mu_l}, \quad \Lambda = \Lambda_g + \Lambda_l$$

$$x = \frac{X}{L}, \quad z = \frac{Z}{L}, \quad \tau = \frac{t}{t_*}$$

Où L est la longueur caractéristique du réservoir, H l'épaisseur du réservoir, t_* le temps caractéristique du déplacement, P^0 la différence de pression maximale sur le domaine, $\langle K \rangle$ et $\langle \phi \rangle$ sont la perméabilité et la porosité moyenne.

L'équation de saturation devient :

$$\begin{aligned} \bar{\phi} \frac{\partial S}{\partial \tau} = \nabla \cdot (\bar{K} \Lambda f_g \nabla p) + \omega \frac{\partial}{\partial z} (\bar{K} \Lambda_g) + \frac{\delta}{Pe} \nabla \cdot \left(\bar{\phi} \frac{\hat{D}_j}{D_g} \nabla S \right) - \\ \delta \omega \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\bar{K} \mu_g}{\hat{\mu}_j} S(1-S)(1-\bar{\rho}) \right) \end{aligned} \quad (5.15)$$

Et l'équation adimensionnelle de la pression est donnée par :

$$\nabla \cdot (\bar{K} \Lambda \nabla p) = \nabla \cdot (\bar{K} \Lambda_l \nabla p_c) - \omega \frac{\partial}{\partial z} (\bar{K} (\Lambda_g + \bar{\rho} \Lambda_l)) \quad (5.16)$$

Sous forme conservative :

$$\nabla \cdot (\bar{K} \Lambda \nabla p - \bar{K} \Lambda_l \nabla p_c + \omega (\bar{K} (\Lambda_g + \Lambda_l \bar{\rho}) \vec{e}_z)) = 0 \quad (5.17a)$$

$$\bar{\phi} \frac{\partial S}{\partial \tau} + \nabla \cdot \left(-\bar{K} \Lambda f_g \nabla p - \omega \bar{K} \Lambda \vec{e}_z - \frac{\delta}{Pe} \frac{\hat{D}_j}{D_g} \nabla S + \delta \omega \frac{\bar{K} \mu_g}{\hat{\mu}_j} S(1-S)(1-\bar{\rho}) \vec{e}_z \right) \quad (5.17b)$$

Le système (5.17) sera utilisé pour effectuer les simulations numériques.

5.4 Simulations numériques

Le modèle élaboré (5.17) a été appliqué à certains cas où le phénomène d'apparition/disparition de phases est observé (1) L'injection d'un gaz partiellement miscible dans un réservoir d'huile (2) L'ascension d'une bulle de gaz dans un aquifère

Les simulations numériques sont réalisées en 2D à l'aide du logiciel COMSOL.

Dans les exemples numériques, nous avons utilisé les propriétés des fluides données dans le tableau 5.1

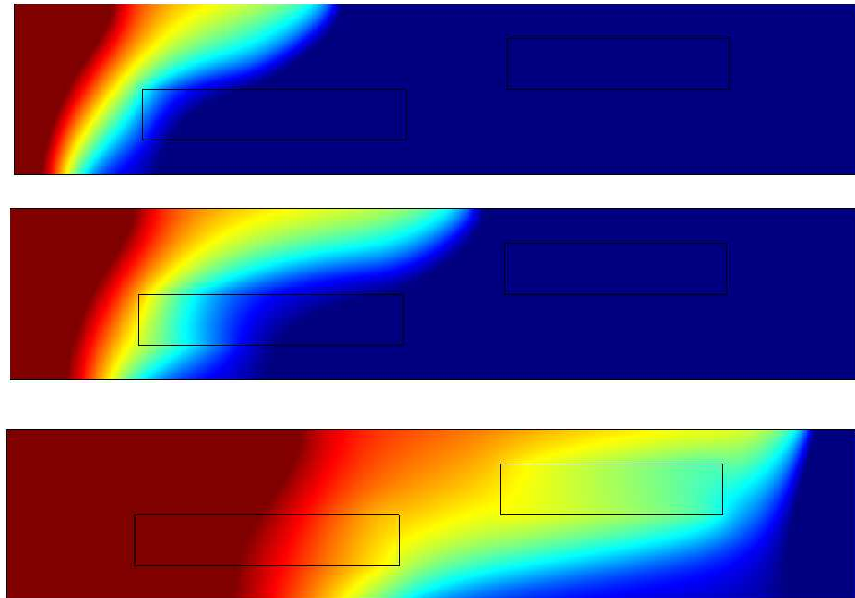
	Gaz	Huile	Unité
CO_2	0.9815	0.4756	
$C_{10}H_{22}$	0.0185	0.5244	
D	510^{-8}	10^{-8}	m^2/s
μ	310^{-4}	10^{-2}	$Pa.s$
ρ	500	850	kg/m^3
g	9.8	9.8	m/s^2

Tableau 5.1 – Propriétés des fluides

5.4.1 Injection d'un gaz partiellement miscible dans un réservoir d'huile

On considère dans cette étude un milieu poreux indéformable, hétérogène contenant initialement une seule phase huile. L'injection de CO_2 gazeux par un puits injecteur de rayon $0,17m$ et de pression de fond de l'ordre de 250 bars permet de pousser l'huile en place vers le puits producteur situé à $100m$ dont la pression du fond est de 150 bars. L'huile en place et le gaz injecté sont en état de déséquilibre avec $S^{init} = -0,4$ et $S^{inj} = 1,4$. La perméabilité des inclusions est $0,01$ plus petite que la perméabilité du domaine continu.

Le réservoir est de dimension $100m \times 20m$. On considère un maillage régulier, la taille des mailles est de : $dx = dz = 0.2m$.

FIGURE 5.1 – Gas saturation at $\tau = 0.05, 0.1$ et 0.5

Avec l'injection de CO_2 dans le réservoir, des composants présents dans le gaz se dissolvent dans

l'huile alors que des composants présents dans l'huile se transfèrent à la phase gazeuse en conduisant à l'apparition d'une zone diphasique en contact avec les zones monophasiques gaz et liquide (fig.5.1).

On remarque que les fluides avec différents nombre de phase se déplacent rapidement dans les couches les plus perméables. La variation de la saturation en gaz est initialement enregistrée dans le voisinage du puits injecteur et se propage ensuite à travers le milieu.

L'hétérogénéité du milieu provoque le piégeage du liquide initial et la formation des interfaces supplémentaires entre la zone diphasique et le liquide piégé. Ainsi, le profile d'écoulement est caractérisé par l'existence de plusieurs zones mobiles avec un nombre de phases différent.

Sous l'effet de la ségrégation par gravité due à la différence de densité entre le CO_2 et l'huile, la phase gazeuse monte en haut du réservoir et crée une voie préférentielle pour le gaz, tandis que l'huile reste piégé au fond du réservoir, cela réduit l'efficacité du balayage .

5.4.2 L'ascension d'une bulle de gaz dans un aquifère

Nous considérons un aquifère hétérogène. La perméabilité des inclusions est très petite (≈ 0) (fig.5.2). A l'instant initial une bulle macroscopique du gaz est située au fond du réservoir. Le gaz est multicomposant (CO_2 avec d'autres espèces) et partiellement miscible dans le liquide (eau). A l'état initial, le gaz est en déséquilibre avec l'eau. La pression du liquide et les saturations de chaque phase sont données. La pression du gaz peut être obtenue en additionnant la pression capillaire à la pression de la phase liquide. les limites supérieure, inférieure et latérales du domaine sont supposées imperméables(avec un flux nul).

L'évolution du système est représenté sur Fig.5.2.

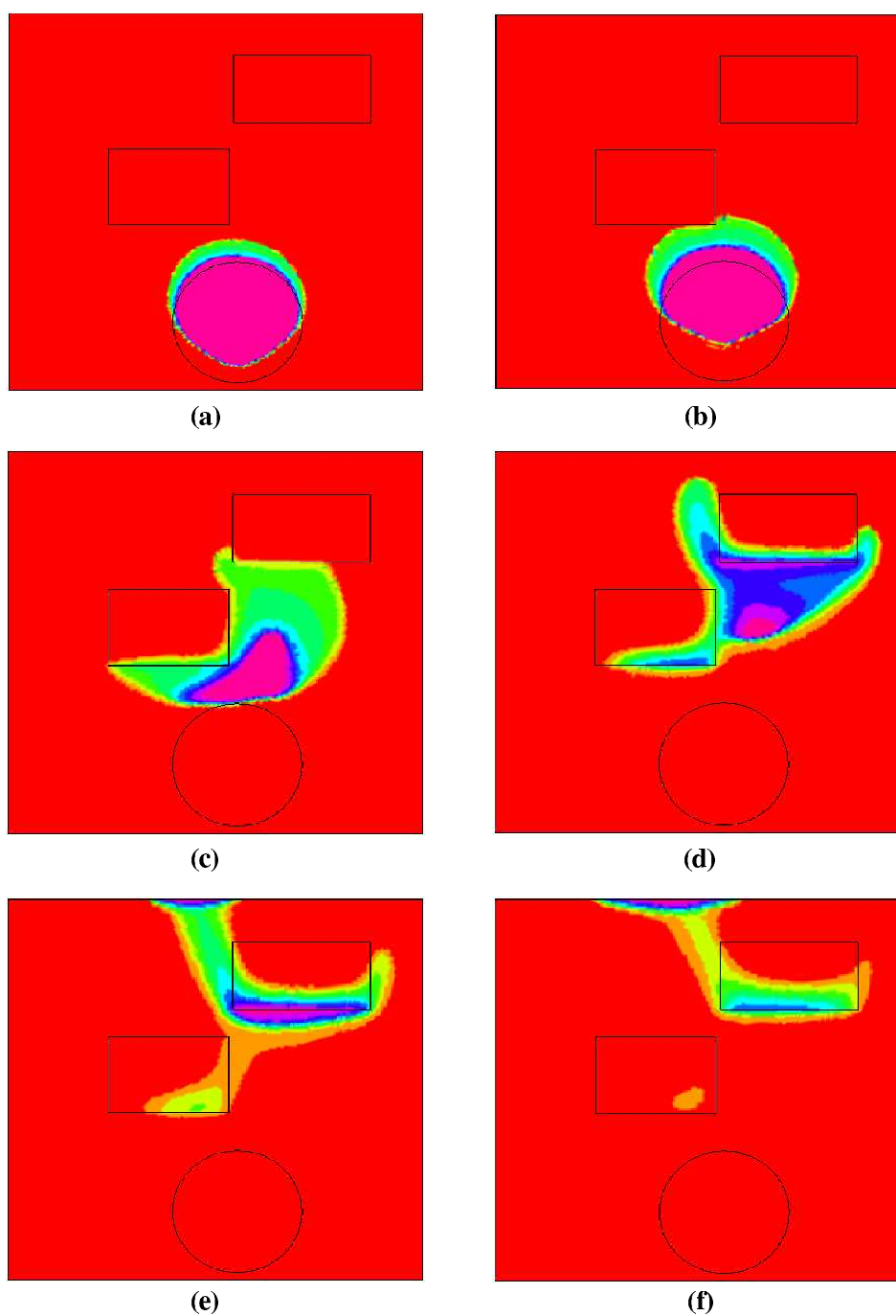


FIGURE 5.2 – La saturation de gaz pour les moments $\tau = 0.005, 0.01, 0.05, 0.1, 0.15$ et 0.2

En raison de la gravité, le gaz commence à monter en contournant les inclusions peu perméable et une zone diphasique apparaît dans l'aquifère. Dans cette zone les composants chimiques du gaz se dissolvent dans l'eau ce qui modifie la composition des deux phases.

La zone violette représente le fluide monophasique gaz et correspond à une saturation du gaz S_g égale à 1.4. La zone rouge est liquide et correspond à $S_g = -0.4$. Les zones vertes et bleues correspondent à la zone diphasique dans laquelle les concentrations de phase varient de façon monotone dans l'espace. Avec le temps, on observe la disparition progressive de la zone monophasique occupée par le gaz.

5.5 Conclusion

Comme dans le cas de diffusion, lorsque la gravité est prise en compte, un terme supplémentaire "extra-gravité" apparaît dans les équations diphasiques uniformes afin d'assurer l'équivalence avec les équations monophasique.

Un modèle diphasique uniforme pour l'ensemble du réservoir contenant les zones monophasiques et diphasique a été dérivé dans ce chapitre et appliqué pour simuler des cas réels lorsque l'écoulement est dominé par la diffusion et la gravité.

Chapitre 6

La méthode *Neg-Sat* pour un écoulement multiphasique

Dans les chapitres précédents, la méthode Neg-Sat a été développée pour les écoulements diphasiques. Dans ce chapitre, la méthode a été généralisée pour les écoulements multiphasiques (3 phases et plus). Nous prenons en compte l'effet de la gravité, la diffusion et de la capillarité. Nous avons obtenu les nouvelles équations multiphasiques qui contiennent des termes non classiques supplémentaires responsables de la diffusion et de la gravité à travers les IPT.

6.1 Modèle multiphasique fictif

Les équations décrivant un écoulement monophasique sont :

$$\phi \frac{\partial \rho C^i}{\partial t} = \text{div} \left(\frac{K \rho C^i}{\mu} (\nabla P - \rho^m \vec{g}) + \phi \rho D^i \nabla C^i \right), \quad i = \overline{1, N} \quad (6.1)$$

Où la densité molaire et la viscosité dynamique sont fonction de la pression et de la composition ; données sous leur forme générale par :

$$\rho = \rho(P, C^1, \dots, C^N) \quad (6.2a)$$

$$\mu = \mu(P, C^1, \dots, C^N) \quad (6.2b)$$

En appliquant le principe d'équivalence, Le fluide monophasique peut être remplacé par un fluide multiphasique .Les équations (6.1) deviennent, pour $i = \overline{1, N}$:

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=1}^M \rho_j c_j^i S_j = & \text{div} \left(K \sum_{j=1}^M \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} (\nabla P_j - \rho_j^m \vec{g}) + \phi \sum_{j=1}^M D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i \right) + \\ & \underbrace{\text{div} \left(\phi \sum_{j=1}^M \rho_j S_j \left(\frac{c_j^i}{C^i} D^i \nabla C^i - D_j^i \nabla c_j^i \right) \right)}_{\text{extra-diffusion}} - \underbrace{\text{div} \left(\frac{K}{\mu} \sum_{j=1}^M \rho_j c_j^i S_j (\rho^m - \rho_j^m) \vec{g} \right)}_{\text{extra-gravity}} \end{aligned} \quad (6.3)$$

Ce système n'est pas fermé et doit être complété par les équations suivantes :

$$\sum_{i=1}^N c_j^i = 1, \quad j = 1, \dots, M; \quad \sum_{j=1}^M S_j = 1 \quad (6.4a)$$

$$P_1 - P_j = P_{c,1j}, \quad j = \overline{2, M} \quad (6.4b)$$

Comme pour le cas diphasique l'apparition de deux termes supplémentaires, l'extra-diffusion et l'extra-gravité, est nécessaire pour assurer l'équivalence.

Lorsque le fluide réel est monophasique, les paramètres fictifs sont déterminés par les conditions d'équivalence suivants :

$$\frac{k_{rj}}{\mu_j} = \frac{S_j}{\mu}, \quad j = 1, \dots, M; \quad (6.5a)$$

$$\rho_j = \rho, \quad \forall j; \quad (6.5b)$$

$$D_j^i = D, \quad \forall i, j; \quad (6.5c)$$

$$P_{c,1j} = 0, \quad \forall j \quad (6.5d)$$

Sous ces conditions, les termes supplémentaires peuvent être simplifiées et les Eqs.(6.3) deviennent, pour $i = \overline{1, N}$:

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=1}^M \rho_j c_j^i S_j &= \text{div} \left(K \sum_{j=1}^M \rho_j c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} (\nabla P_j - \rho_j^m \vec{g}) + \phi \sum_{j=1}^M D_j^i \rho_j S_j \nabla c_j^i \right) + \\ &\underbrace{\text{div} \left(\phi \sum_{j=1}^M D_j^i \rho_j c_j^i \nabla S_j \right)}_{\text{extra-diffusion}} - \underbrace{\text{div} \left(\frac{K}{\mu} \sum_{j=1}^{M-1} \sum_{r>j}^M \rho_j S_j S_r (c_j^i - c_r^i) (\rho_r^m - \rho_j^m) \vec{g} \right)}_{\text{extra-gravity}} \end{aligned} \quad (6.6)$$

La relation entre la masse volumique et la densité molaire est donnée par : $\rho_j^m = \rho_j \sum_{i=1}^N c_j^i M^i$.

Preuve d'équivalence :

Il suffit de prouver la forme du terme "extra-gravité".

1. Il résulte de (6.3) pour ce terme :

$$\text{div} \left(\frac{K \rho^2}{\mu} \sum_{i=1}^N \underbrace{\sum_{j=1}^M c_j^i S_j \left(\sum_{r=1}^M c_r^i S_r - c_j^i \right)}_J M^i \vec{g} \right)$$

En tenant compte du fait que $1 - S_j = \sum_{r \neq j} S_r$ on obtient pour le terme J :

$$J = \sum_{j=1}^M c_j^i S_j \left(\sum_{r \neq j} c_r^i S_r - c_j^i \sum_{r \neq j} S_r \right) = \sum_{j=1}^M \sum_{r \neq j} S_j S_r c_j^i (c_r^i - c_j^i)$$

Cela représente la somme de tous les éléments non-diagonaux d'une matrice carrée $M \times M$ qui peut être divisée en la somme des deux parties inférieure et supérieure par rapport à la diagonale :

$$J = \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} f_{jr} + \sum_{j=1}^M \sum_{r<j} f_{jr}, \quad f_{jr} \equiv S_j S_r c_j^i (c_r^i - c_j^i)$$

On obtient :

$$J = \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} f_{jr} + \sum_{r=1}^M \sum_{j>r} f_{jr}$$

Donc

$$\begin{aligned} J &= \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} f_{jr} + \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} f_{rj} = \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} (f_{jr} + f_{rj}) = \\ &= \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} (S_j S_r c_j^i (c_r^i - c_j^i) + S_r S_j c_r^i (c_j^i - c_r^i)) = \sum_{j=1}^M \sum_{r>j} S_j S_r (c_j^i - c_r^i) (c_r^i - c_j^i) \end{aligned}$$

Ce qui correspond à (6.6).

Les équations multiphasique modifiés (6.6) peuvent être utilisées pour le fluide dans son ensemble. Si tous les saturations S_j sont entre 0 et 1, alors les termes extra-diffusion et extra-gravité sont retirés et les propriétés réelles de toutes les phases, données par les équations d'état classiques et les corrélations pétrophysiques, sont utilisées :

$$\rho_j = \rho_j(P_j, c_j^1, \dots, c_j^N); \quad (6.7a)$$

$$\mu_j = \mu_j(P_j, c_j^1, \dots, c_j^N); \quad (6.7b)$$

$$D_j^i = D_j^i(T); \quad (6.7c)$$

$$k_{rj} = k_{rj}(S_1, \dots, S_M); \quad P_{c,kj} = P_{c,kj}(S_1, \dots, S_M) \quad (6.7d)$$

Si la saturation S_j est supérieure à 1, le fluide multiphasique est fictif et remplace le fluide monophasique réel j . Les propriétés du fluide multiphasique fictif sont choisies à partir des conditions d'équivalence. Les termes extra-diffusion et extra-gravité sont conservés.

6.2 Cas d'un mélange idéal

Pour le cas d'un mélange idéal, le système multiphasique généralisé peut être simplifié. En particulier, il est possible de séparer totalement la thermodynamique de l'hydrodynamique quel que soit le nombre de composants chimiques.

La simplification importante des équations d'écoulement compositionnel peut être obtenue si nous supposons que le mélange dans toutes les phases est idéal. Pour un nombre arbitraire de phases $M = 2, 3, \dots$ (gaz, huile, eau, ...), le modèle peut être simplifié en introduisant les fractions volumiques :

$$c_j^i \equiv \frac{\left\{ \begin{array}{c} \text{volume du composant pur } i \\ \text{présent dans la phase } j \end{array} \right\}}{\left\{ \text{volume total de la phase } j \right\}} = \frac{\rho_j c_j^i}{\rho^i}$$

Où c_j^i la fraction molaire, ρ^i la densité molaire du composant pur i , ρ_j la densité molaire de la phase j .

Supposant que les densités ρ^i sont constantes, alors on peut facilement introduire les fractions volumiques en divisant les équations (6.6) par ρ^i :

$$\begin{aligned} \phi \frac{\partial}{\partial t} \sum_{j=1}^M c_j^i S_j = & \operatorname{div} \left(K \sum_{j=1}^M c_j^i \frac{k_{rj}}{\mu_j} (\nabla P_j - \rho_j^m \vec{g}) + \phi \sum_{j=1}^M D_j^i S_j \nabla c_j^i \right) + \\ & \underbrace{\operatorname{div} \left(\delta(S) \phi \sum_{j=1}^M D_j^i c_j^i \nabla S_j \right)}_{\text{extra-diffusion}} + \underbrace{\operatorname{div} \left(\delta(S) \frac{K}{\mu} \sum_{j=1}^M c_j^i S_j (\rho^m - \rho_j^m) \vec{g} \right)}_{\text{extra-gravity}}, \end{aligned} \quad (6.8)$$

Dans lesquelles nous avons négligé les faibles gradients de densités de phase dans le terme de diffusion. Autres fonctions sont :

$$\rho_j^m = \sum_{i=1}^N c_j^i \rho^i M^i; \quad \delta(S) = \begin{cases} 1, & \text{si l'une des saturation } S_j \text{ est supérieur à } 1; \\ 0, & \text{sinon} \end{cases}$$

Remarque :

Notez que si l'une des saturations est supérieure à 1, toutes les autres saturations sont négatives

6.3 Simulation numérique d'un écoulement triphasique

Dans le présent exemple, nous considérons un mélange de trois composant qui peuvent former trois phases : alcool (g), huile (o) et eau (w). Les trois composants sont les suivants : (1) surfactant, (2) C₁₆, (3) eau. les propriétés des composants purs sont données dans le tableau 6.1.

Un mélange tri-phasique ternaire a un degré de liberté égal à un, cela signifie que pour une pression fixe les concentrations de phase sont constantes. Nous considérons la composition de phase suivante, qui

Composant pur	surfactant	C ₁₆	eau
densité(g/cm ³)	0.7701	0.8061	0.9971
viscosité(cp)	2.5600	3.0500	0.8937

Tableau 6.1 – Propriétés des composants purs

	micro-émulsion	huile	eau
S_{rj}	0.05	0.00	0.09
k_{rj}^0	1.00	1.00	1.00
n_j	2.00	2.00	2.00

Tableau 6.2 – Paramètres du modèle de Corey

correspond à l'équilibre des trois phases :

$$\begin{aligned}
c_g^1 &= 0.7224; & c_o^1 &= 0.1330; & c_w^1 &= 0.0872; \\
c_g^2 &= 0.1716; & c_o^2 &= 0.8660; & c_w^2 &= 0.0000; \\
c_g^3 &= 0.1060; & c_o^3 &= 0.0000; & c_w^3 &= 0.9127;
\end{aligned} \tag{6.9}$$

Pour les perméabilités relatives, nous avons utilisé le modèle de Corey :

$$k_{rj} = k_{rj}^0 \left(\frac{S_j - S_{rj}}{1 - S_{r1} - S_{r2} - S_{r3}} \right)^{n_j} \tag{6.10}$$

les saturations résiduelles S_{rj} , les perméabilités relatives k_{rj}^0 et l'exposant de Corey de chaque phase sont données dans Tab.6.2 :

Le fluide injecté est un mélange monophasique d'eau et de surfactant, sa composition est donnée par :

$$\begin{aligned}
C^{1,\text{inj}} &= 0.8700 \\
C^{2,\text{inj}} &= 0.0000 \\
C^{3,\text{inj}} &= 0.1300
\end{aligned} \tag{6.11}$$

Cette composition est située en dehors de la zone d'équilibre triphasique (6.9), à cause de la faible concentration de l'huile et de l'eau. Pour cette raison ce véritable fluide est remplacé par un fluide triphasique équivalent avec une saturation de surfactant supérieur à 1 et deux saturation négatives pour l'huile et l'eau.

Les équations de bilan de mass :

$$C^i = c_g^i S_g + c_o^i S_o + c_w^i S_w$$

nous permet de calculer les saturations de phase :

$$\begin{aligned} S_g^{\text{inj}} &= 1.2502 \\ S_o^{\text{inj}} &= -0.2472 \\ S_w^{\text{inj}} &= -0.0030 \end{aligned} \tag{6.12}$$

Le fluide initial en place est monophasique huile, ayant la composition totale et les saturations des phases suivantes :

$$\begin{aligned} C^{1,\text{init}} &= 0.1300 & S_g^{\text{init}} &= -0.0051 \\ C^{2,\text{init}} &= 0.8700 & S_o^{\text{init}} &= 1.0056 \\ C^{3,\text{init}} &= 0.0000 & S_w^{\text{init}} &= -5.0612 \cdot 10^{-4} \end{aligned}$$

Les résultats de simulation du modèle uniforme (6.8) et en appliquant le principe d'équivalence sont représentés dans la Fig.6.1.

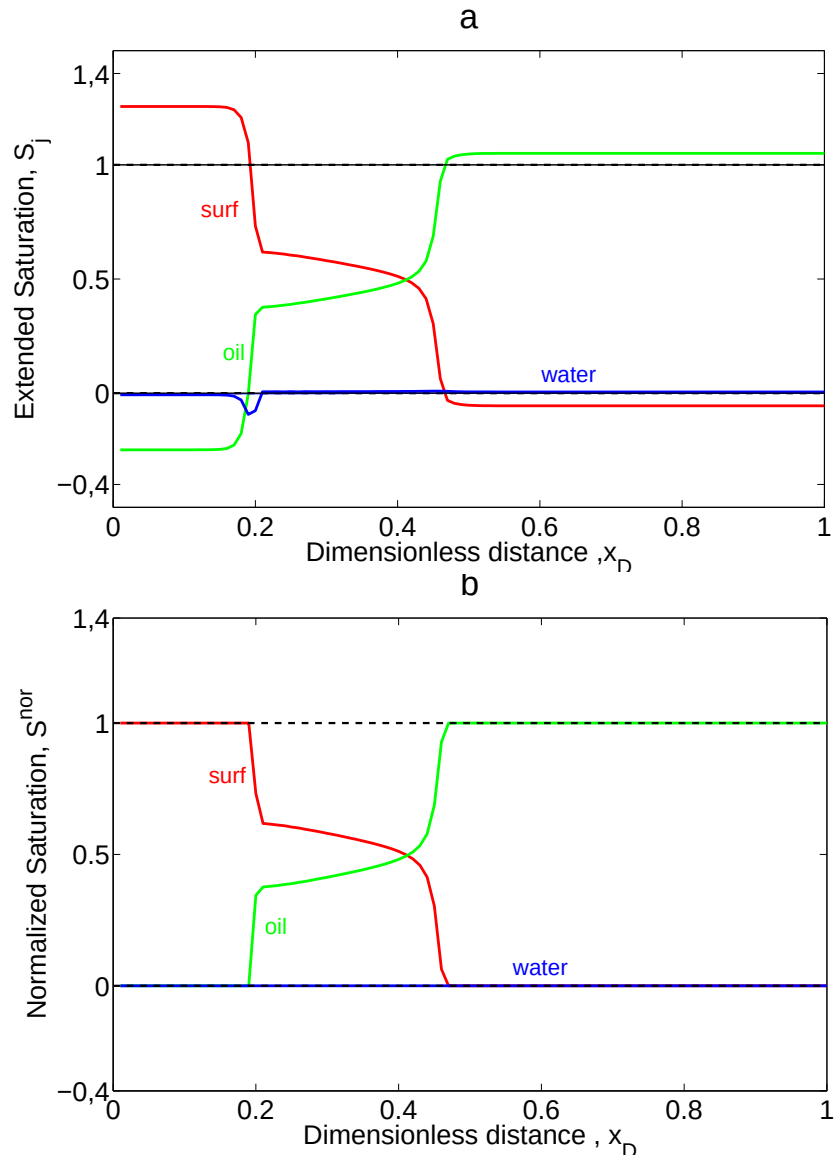


FIGURE 6.1 – Illustration de l'apparition des interfaces entre les fluides monophasiques et la zone triphasique (au milieu) : a - en termes des saturations négatives ; b - en terme des saturations normalisées

La figure "a" représente les résultats de la simulation en termes des saturations négatives, tandis que la figure "b" est obtenue à partir de "a" en revenant aux saturations normalisées S^{nor} selon les règles suivantes pour toute phase j :

$$S_j^{nor} = \begin{cases} 1, & \text{si } S_j > 1 \\ S_j, & \text{si } 0 \leq S_j \leq 1 \\ 0, & \text{si } S_j < 0 \end{cases}$$

On observe l'apparition de trois zones avec un nombre de phase différent séparées par deux interfaces de transition de phase. Le fluide monophasique injecté est suivi directement par un fluide triphasique qui à son tour suivi par un fluide monophasique huile.

6.4 Conclusion

Le modèle Neg-Sat a été généralisé pour les écoulements multiphasiques multicomposants. Pour le cas d'un mélange idéal, nous avons obtenu une simplification importante du modèle. L'attention a été focalisée sur les écoulements triphasiques. Le modèle développé a été illustré par des exemples de simulation numérique d'injection d'un mélange de surfactant et d'eau dans un réservoir d'huile.

Conclusion générale

Dans le premier chapitre, une nouvelle approche alternative à celle de calcul flash pour résoudre les équations d'équilibre thermodynamique a été présentée. L'idée était de développer des modèles mathématiques simplifiés d'équilibre diphasique qui soient plus rapides à résoudre numériquement que ceux basés sur les EOS cubiques et en particulier dans le cas avec capillarité.

En étant appliquées au même temps pour le gaz et le liquide, les EOS cubique doivent être suffisamment complexes et non linéaires pour pouvoir capturer la zone de transition diphasique. Cependant, dans cette zone l'EOS cubique n'est pas utilisée et son comportement non monotone complexe est tout simplement remplacé par une ligne isobare droite (ligne de Maxwell), qui correspond au véritable équilibre gaz-liquide. Donc, il n'est pas nécessaire qu'une EOS décrive la zone de transition, il est alors possible de décrire le liquide et le gaz par deux EOS différentes, ce qui constitue une simplification importante des équations d'équilibre.

Une fois que nous avons essayé de développer cette idée, nous avons constaté que plusieurs EOS conduisent à la non-existence de l'état diphasique. Ainsi, le choix des EOS individuelle dissymétriques pour le gaz et le liquide n'est pas arbitraire, elles doivent satisfaire des conditions de consistance qui représentent mathématiquement les conditions d'existence de la solution des équations d'équilibre.

Pour obtenir la formulation mathématique stricte des conditions de consistance, il a fallu introduire de nouveaux concepts tels que la pseudo-phase et le point pseudo-critique. Ces concepts sont formels mais nécessaires au développement du modèle mathématique d'équilibre de phases .

Dans des cas particuliers, nous avons pu montrer que le modèle du gaz parfait pour tous les composants purs est consistant et peut être utilisé pour calculer l'équilibre gaz-liquide, tandis que le modèle du liquide incompressible est non consistant.

En outre, nous avons développé la technique graphique de la détermination des conditions de consistance pour les systèmes binaires et multi-composants. Cette technique est proche de la règle de Maxwell.

Les avantages pratiques de l'utilisation de la théorie développée plutôt que celle basée sur des EOS uniformes pour les deux phases sont les suivantes :

- d'une part, elle nous permet d'inclure les effets capillaires dans les systèmes multi-composants et de généraliser l'équation de Kelvin (la condensation capillaire) pour le cas multi-composants ;
- d'autre part, cette approche simplifie d'une manière significative les calculs en conduisant à des

relations analytiques explicites pour les concentrations de phase, même pour un mélange non idéal multi-composants et en tenant compte des effets capillaires.

Nous avons illustré l'approche développée en utilisant l'exemple du gaz parfait et du liquide non-idéal décrit par l'équation NRTL. Pour les composants purs, nous avons utilisé le modèle de l'EOS de Viriel pour le gaz et le liquide exponentiellement compressibles qui remplissent les conditions de l'auto-consistance. Le modèle mathématique a été obtenu à partir des relations fondamentales pour les potentiels chimiques via les volumes molaires.

Une application efficace de cette approche est le domaine de l'ingénierie pétrolière. La simulation des écoulements multiphasiques compositionnels telle qu'elle est actuellement est entravée par le temps nécessaire pour effectuer les calculs thermodynamiques.

Dans le chapitre 2, la méthode de saturation négative Neg-Sat a été présentée pour un cas simple où le mouvement des fluides est provoqué uniquement par les gradients de pression (pure convection).

Lorsqu'un écoulement compositionnel dans un milieu poreux présente des zones monophasiques en contact avec des zones diphasiques, les fluides de chaque côté de l'interface de transition sont décrits par des systèmes d'équations complètement différentes et indépendantes, ce qui pose des difficultés durant la modélisation d'un tel déplacement.

Pour résoudre ce problème, nous avons proposé de remplacer les fluides dans les différentes zones par un fluide diphasique fictif. Par conséquent, l'écoulement dans l'ensemble du domaine (zones diphasique et monophasiques) peut être décrit par des équations diphasiques uniformes, c'est le principe de la méthode des saturations négatives.

Pour qu'un tel remplacement soit possible, nous avons développé des conditions nécessaires et suffisantes pour assurer l'équivalence entre le véritable fluide monophasique dont le comportement n'est pas contrôlé par les conditions d'équilibre et le fluide diphasique fictif dont les phases sont en équilibre chimique.

La détection des interfaces se fait automatiquement au cours de la résolution des équations d'écoulement lorsque la saturation traverse les valeurs zéro et un.

Dans le chapitre 3, nous avons construit la solution analytique pour un écoulement diphasique mono-dimensionnel.

Au début de ce chapitre, nous avons présenté la théorie analytique générale de construction de la solution pour le problème de Riemann. Puis, en utilisant le concept de saturation étendue (en acceptant des valeurs de saturation, négatives et supérieures à un) nous avons montré que le problème de déplacement peut être réduit en une seule équation de "buckley-levrett", quel que soit le nombre de composants ou de phases et un ensemble de conditions de "Rankin-Hugoniot" au niveau des chocs. La solution pour un déplacement ternaire montre que les deux méthodes donnent des résultats similaires.

Enfin, la théorie analytique de construction de la solution basée sur la méthode Neg-Sat pour le déplacement diphasique multicomposant a été présentée pour un cas particulier d'injection d'un gaz pur dans un réservoir d'huile.

Dans le chapitre 4, le modèle Neg-Sat présenté dans le chapitre 2 a été généralisé pour prendre en compte l'effet de la diffusion. Dans ce cas, un nouveau terme proportionnel au gradient de saturation appelé "*Extra-Diffusion*" apparaît dans les équations diphasiques.

Le terme extra-diffusion est responsable de la diffusion des composants chimiques dans les zones monophasiques ainsi qu'entre les zones monophasiques et diphasique à travers les interfaces de transition. À l'intérieur de la zone diphasique cet effet est égal à zéro, ce qui provoque la dégénérescence du terme d'extra-diffusion. Cela signifie que les équations uniformes de transport changent de type dans les différentes zones : elles sont paraboliques dans les zones monophasiques et hyperboliques dans les zones diphasiques. Ce facteur peut influencer les vitesses de déplacement des interfaces.

Une régularisation a été réalisée pour éviter la dégénérescence locale en introduisant une diffusion fictive à l'intérieur de la zone diphasique. Une autre possibilité est d'introduire l'effet de la capillarité qui remplace le terme de l'extra-diffusion à l'intérieur de la zone diphasique.

Le modèle régularisé obtenu a été adapté et appliqué à la simulation de la migration d'hydrogène dans les dépôts souterrains des déchets radioactifs.

Lorsque l'effet de gravité est pris en compte (chapitre 5), le principe d'équivalence entre un fluide monophasique et un fluide diphasique fictif ne peut être prouvé à partir des équations diphasiques classiques, et un terme supplémentaire "extra-gravité" apparaît dans ces équations afin d'assurer l'équivalence.

Un modèle diphasique uniforme pour l'ensemble du réservoir contenant les zones monophasiques et diphasique a été dérivé dans ce chapitre et appliqué pour simuler des écoulements régis par la diffusion et la gravité : (i) injection de CO_2 dans un réservoir d'huile, (ii) L'ascension d'une bulle de gaz macroscopique dans un aquifère.

Dans le chapitre 6, nous avons généralisé la méthode Neg-Sat pour le cas d'un nombre arbitraire de phases et de composants chimiques. Pour les mélanges idéaux, nous avons obtenu une forme généralisée plus simple des équations multiphasiques multicomposant. Le modèle développé a été illustré par des exemples de simulation numérique des écoulements tri-phasiques.

Perspectives

Dans la continuité de notre travail concernant le modèle asymétrique pour résoudre les équations d'équilibre thermodynamique, on propose d'élargir la portée du modèle en développant les conditions de consistance au voisinage du point critique.

Dans le chapitre 7, nous avons généralisé la méthode des saturations négatives (Neg-Sat) et le principe d'équivalence entre un fluide monophasique et un fluide multiphasique. Dans l'avenir, on propose de développer ce principe entre deux fluides multiphasiques avec un nombre différent de phases (entre 2-3, 2-4, 3-4,...)

Appendices

Annexe A

Démonstration de (1.28a)

1°. La relation de potentiel chimique d'un composant k dans une phase arbitraire en fonction du potentiel chimique du gaz parfait est connu dans la thermodynamique classique [1], [2], [4], [19] :

$$\mu^k(P, T, c^1, \dots, c^n) = \int_0^P \left[v^k(\bar{P}, T, c^1, \dots, c^n) - \frac{RT}{\bar{P}} \right] d\bar{P} + \mu^{k, \text{ideal}}(P, T, c^k) \quad (\text{A.1})$$

et

$$\mu^{k, \text{ideal}}(P, T, c^k) = RT \ln \frac{Pc^k}{P_r^k} + \mu^{k, \text{ideal}}(P_r^k, T) \quad (\text{A.2})$$

Où P_r^k est une pression de référence arbitraire de la pression qui peut être différente pour les différents composants , donc :

$$\mu^k = \int_0^P \left[v^k - \frac{RT}{\bar{P}} \right] d\bar{P} + RT \ln \frac{Pc^k}{P_r^k} + \mu^{k, \text{ideal}}(P_r^k, T) \quad (\text{A.3})$$

2°. Pour un composant pur, on obtient :

$$\mu^{k, \text{pure}}(P, T) = \int_0^P \left[v^{k, \text{pure}}(\bar{P}, T) - \frac{RT}{\bar{P}} \right] d\bar{P} + RT \ln \frac{P}{P_r^k} + \mu^{k, \text{ideal}}(P_r^k, T) \quad (\text{A.4})$$

3°. Soustrayons (A.4) de (A.3), on obtient :

$$\mu^k - \mu^{k,pure} = \int_0^P \left[v^k - v^{k,pure} \right] d\bar{P} + RT \ln c^k \quad (A.5)$$

4°. En utilisant (1.4), on trouve :

$$\mu^k = \int_0^P \left(v^k - v^{k,pure} \right) d\bar{P} + RT \ln c^k + \int_{P_r^k}^P v^{k,pure} d\bar{P} + \mu^{k,pure} \left(P_r^k, T \right) \quad (A.6)$$

5°. En substituant la dernière relation (A.6) dans l'équation général d'équilibre : $\mu_g^k (P_{g,eq}, T, c_g^1, \dots, c_g^n) = \mu_l^k (P_{l,eq}, T, c_l^1, \dots, c_l^n)$ on obtient :

$$\begin{aligned} & \int_0^{P_{g,eq}} \left(v_g^k - v_g^{k,pure} \right) dP - \int_0^{P_{l,eq}} \left(v_l^k - v_l^{k,pure} \right) dP + RT \ln \frac{c_g^k}{c_l^k} + \int_{P_r^k}^{P_{g,eq}} v_g^{k,pure} dP - \\ & \int_{P_r^k}^{P_{l,eq}} v_l^{k,pure} dP + \mu_g^{k,pure} \left(P_r^k, T \right) - \mu_l^{k,pure} \left(P_r^k, T \right) = 0 \end{aligned}$$

6°. En sélectionnant comme pressions de référence $P_r^k = P_{*,k}^{II} (\mu_g^{k,pure} (P_{*,k}^{II}, T) = \mu_l^{k,pure} (P_{*,k}^{II}, T))$, on obtient (1.28a).

Annexe B

Démonstration de (1.43) et (1.44)

Supposons que $\delta \equiv \max \{|\tau_{ij}|\}$ un petit paramètre. On représente la solution sous la forme suivante :

$$c_{\alpha}^k = c_{\alpha 0}^k + c_{\alpha 1}^k, \quad \alpha = g, l; \quad \text{et} \quad K^k = K_0^k + K_1^k \quad (\text{B.1})$$

Où $c_{\alpha 0}^k$ et $K_{k0} = c_{g0}^k / c_{l0}^k$ sont des valeurs qui correspondent à un mélange idéal . $c_{\alpha 1}^k$ et K_{k1} sont des petits écarts d'ordre δ .

Toutes les valeurs $\ln \gamma_l^k$ sont d'ordre δ . En substituant ces expressions dans (1.40) et en appliquant la méthode de perturbation, on obtient pour une approximation d'ordre zéro :

$$\ln K_{k0} + \alpha_{gk} (p - p_*^k) + \ln \frac{p}{p_*^k} + \alpha_{lk} \left[e^{-\varepsilon_k(p - \text{Ca} - \omega_k)} - e^{-\varepsilon_k(p_*^k - \omega_k)} \right] = 0 \quad (\text{B.2})$$

et pour les termes d'ordre δ :

$$\frac{K_{k1}}{K_{k0}} - \ln \gamma_{l0}^k = 0 \quad (\text{B.3})$$

Où $\ln \gamma_{l0}^k$ est défini par (1.36) tel que $c_{\alpha}^k = c_{\alpha 0}^k$ ($\alpha = g, l$).

Les relations (B.2) donne Eq. (1.43) pour K_0^k . Les relations (B.1) et (B.3) donne : $K_k = K_{k0} (1 + \ln \gamma_{l0}^k)$, ce qui conduit à (1.44).

Annexe C

Solution analytique du problème de migration de l'hydrogène

L'objectif : est de comparer le moment de l'apparition de gaz t_a obtenue dans la section 4.3 qui correspondent à 53000 ans avec la solution analytique.

C.1 Formulation du problème

On considère uniquement le premier stade de l'évolution juste avant l'apparition de la phase gazeuse. Le système est monophasique liquide ($S_g < 0$). t_a correspond au moment où la saturation S_g égale zéro.

L'écoulement d'un fluide monophasique liquide est décrit par les équations suivantes :

$$\phi \frac{\partial \rho_l C^i}{\partial t} = \text{div} (\lambda \rho_l C^i \nabla P) + \text{div} (\phi D_l \rho_l \nabla C^i), \quad \lambda = \frac{K}{\mu_l}, \quad i = h, w \quad (\text{C.1})$$

Le flux des composants est donné par :

$$Q^h = -\lambda \rho_l C^h \nabla P - \phi D_l \rho_l \nabla C^h \quad (\text{C.2a})$$

$$Q^w = -\lambda \rho_l C^w \nabla P - \phi D_l \rho_l \nabla C^w \quad (\text{C.2b})$$

A l'état initial on a :

$$C^h|_{t=0} = 0 \quad (\text{C.3a})$$

$$C^w|_{t=0} = 1 \quad (\text{C.3b})$$

Cela signifie que le liquide à l'état initial est en déséquilibre avec l'hydrogène injecté, parce que les concentrations à l'équilibre sont les suivants :

$$c_l^h|_{t=0} = \frac{H_{H_2} M_{H_2}}{\rho_l} P_{l,init} \neq 0 \quad (\text{C.4a})$$

$$c_l^w|_{t=0} = 1 - \frac{H_{H_2} M_{H_2}}{\rho_l} P_{l,init} \neq 1 \quad (\text{C.4b})$$

La somme des deux équations (C.1) donne :

$$\phi \frac{\partial \rho_l}{\partial t} = \text{div}(\lambda \rho_l \nabla P) \quad (\text{C.5})$$

On suppose que la phase liquide contient une très petite quantité de H_2 , donc sa densité est égale à celle de l'eau pure $\rho_l = \rho^w$. La densité de l'eau pure est supposée constante $\rho^w = \text{const}$. Le système d'équations (C.1) peut être transformé en :

$$\text{div}(\lambda \nabla P) = 0 \quad (\text{C.6a})$$

$$\phi \frac{\partial C}{\partial t} = \text{div}(\lambda C \nabla P) + \phi D_l \Delta C, \quad \text{où } C \equiv C^w \quad (\text{C.6b})$$

Avec les conditions suivantes :

$$C|_{t=0} = 1 \quad (\text{C.7a})$$

$$C|_{x \rightarrow \infty} = 1 \quad (\text{C.7b})$$

$$(-\lambda(1-C)\nabla_n P + \phi D_l \nabla_n C)_{x=0} = \frac{Q^h}{\rho_l} \quad (\text{C.7c})$$

$$(-\lambda C \nabla_n P - \phi D_l \nabla_n C)_{x=0} = 0 \quad (\text{C.7d})$$

$$P|_{x=L_x} = P_{l,init} \quad (\text{C.7e})$$

Où ∇_n est la dérivée normale.

Les conditions (C.7c) et (C.7d) peuvent être transformées en :

$$(-\lambda \nabla_n P)_{x=0} = \frac{Q^h}{\rho_l} \quad (\text{C.8a})$$

$$\left(\nabla_n C + \frac{\lambda C \nabla_n P}{\phi D_l} \right)_{x=0} = 0 \quad (\text{C.8b})$$

Le problème peut être séparé en deux parties, une pour la pression et l'autre pour la concentration .

1. Problème séparé pour la pression

A partir de (C.6a), (C.7e) et (C.8a) on obtient que :

$$P = -\frac{Q^h}{\lambda \rho_l} (x - L_x) + P_{l,init} \quad (\text{C.9})$$

Ainsi, la pression est en régime permanent et ne dépend ni de la diffusion ni de la dissolution d'hydrogène dans le liquide.

2. Problème séparé de la concentration de l'eau

A partir de (C.6b), (C.7a), (C.7b) et (C.8b) on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{Q^h}{\rho_l \phi} \frac{\partial C}{\partial x} = D_l \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \\ C|_{t=0} = 1 \\ C|_{x \rightarrow \infty} = 1 \\ \left(\frac{\partial C}{\partial x} - \frac{Q^h}{\phi \rho_l D_l} C \right)_{x=0} = 0 \end{array} \right. \quad (\text{C.10})$$

Sous forme adimensionnelle :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial C}{\partial \tau} + \varepsilon \frac{\partial C}{\partial y} = \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \\ C|_{\tau=0} = 1 \\ C|_{y \rightarrow \infty} = 1 \\ \left(\frac{\partial C}{\partial y} - \varepsilon C \right)_{y=0} = 0 \end{array} \right. \quad (\text{C.11})$$

Où

$$y = \frac{x}{L_x}, \quad \tau = \frac{t}{t_*}, \quad t_* = \frac{L_x^2}{D_l}, \quad \varepsilon = \frac{Q^h L_x}{\phi \rho_l D_l}$$

C.2 Modèle asymptotique

Dans le cas considéré $\varepsilon = 3.925010^{-5} \ll 1$, donc nous pouvons obtenir une solution asymptotique sous la forme :

$$C = 1 + \varepsilon \tilde{C} + \varepsilon^2 \dots \quad (\text{C.12})$$

En substituant (C.12) dans (C.11), on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \tilde{C}}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \tilde{C}}{\partial y^2} \\ \tilde{C}|_{\tau=0} = 1 \\ \tilde{C}|_{y \rightarrow \infty} = 1 \\ \left(\frac{\partial \tilde{C}}{\partial y} \right)_{y=0} = 1 \end{array} \right. \quad (\text{C.13})$$

Cette équation peut être résolue en utilisant la transformée de Laplace :

$$\bar{C} = \int_0^\infty e^{p\tau} \tilde{C}(\tau, y) d\tau$$

$$p\bar{C} = \frac{\partial^2 \bar{C}}{\partial y^2} \implies \bar{C} = Ae^{\sqrt{p}y} + Be^{-\sqrt{p}y}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{C}|_{y \rightarrow \infty} = 0 \\ \left(\frac{\partial \bar{C}}{\partial y} \right)_{y=0} = \frac{1}{p} \end{array} \right. \implies \left\{ \begin{array}{l} A = 0 \\ B = -\frac{1}{p\sqrt{p}} \end{array} \right.$$

$$\bar{C} = -\frac{1}{p\sqrt{p}} e^{-\sqrt{p}y}$$

Inversion :

$$\tilde{C} = -2\sqrt{\frac{\tau}{\pi}}e^{-y^2/4\tau} - y\left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{y}{2\sqrt{\tau}}\right)\right) \quad (\text{C.14})$$

Donc :

$$C = -2\varepsilon\sqrt{\frac{\tau}{\pi}}e^{-y^2/4\tau} + \varepsilon y\left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{y}{2\sqrt{\tau}}\right)\right) \quad (\text{C.15a})$$

$$p \equiv \frac{P}{P_{l,init}} = 1 + \varepsilon\alpha(1 - y) \quad (\text{C.15b})$$

$$\text{Où } \alpha \equiv \frac{\phi D_l}{\lambda P_{l,init}}$$

La phase gazeuse doit apparaître en premier temps au voisinage du point d'entrée $y = 0$. En utilisant la propriété

$$\operatorname{erf}(u)|_{u \rightarrow 0} = \frac{2}{\pi} \left(u - \frac{u^3}{3} + \dots \right)$$

On trouve :

$$C = \left(1 - 2\varepsilon\sqrt{\frac{\tau}{\pi}}\right) + \varepsilon y - \frac{\varepsilon y^2}{2\sqrt{\pi\tau}} + \dots, \quad y \rightarrow 0 \quad (\text{C.16})$$

C.3 Estimation du temps d'apparition de gaz

La phase gazeuse apparaît lorsque $C \equiv C^w = c_l^w$. Calculons $c_l^w|_{y=0}$ (le gaz apparaît en premier temps à $y = 0$).

A partir de (C.4b) ,

$$c_l^w = 1 - \frac{H_{H_2} M_{H_2}}{\rho_l} P$$

En utilisant (C.15b) ,

$$c_l^w = 1 - \beta(1 + \varepsilon\alpha(1 - y)) \quad (\text{C.17})$$

Donc

$$c_l^w|_{y=0} = 1 - \beta(1 + \varepsilon\alpha) \quad (C.18)$$

Où $\beta = \frac{H_{H_2} M_{H_2} P_{l,init}}{\rho_l}$

A partir de (C.16) et (C.18) on trouve :

$$\tau_a = \frac{\pi}{4} \left(\frac{\beta(1 + \varepsilon\alpha)}{\varepsilon} \right)^2 \quad (C.19)$$

Finalement, le moment d'apparition du gaz est donné par la relation suivante

$$t_a = \frac{\pi}{4D_l} \left(\frac{\beta L_x(1 + \varepsilon\alpha)}{\varepsilon} \right)^2 = 5.043310^4 \text{ ans} \quad (C.20)$$

C.4 Profil de saturation

Le profil de saturation peut être obtenu comme suit :

$$C^w = (1 - S_g)c_l^w \implies S_g = 1 - \frac{C^w}{c_l^w}$$

Utilisons (C.12) et (C.17) ,

$$S_g \approx 1 - \frac{1 + \varepsilon\tilde{C}}{1 - \beta(1 + \varepsilon\alpha(1 - y))}$$

Comme $\beta, \varepsilon \longrightarrow 0$, Donc

$$S_g \approx 1 - \beta - (1 + \varepsilon\tilde{C}) \approx -\beta - \varepsilon\tilde{C} + \dots$$

Utilisons (C.14) on trouve :

$$S_g = -\beta + \varepsilon \left[2\sqrt{\frac{\tau}{\pi}} e^{-y^2/4\tau} - y \left(1 - \operatorname{erf} \left(\frac{y}{2\sqrt{\tau}} \right) \right) \right] \quad (C.21)$$

Bibliographie

- [1] A.I. Brusilovsky. « Transition de phases under exploitation of oil and gas reservoirs ». Ed. Graal, Moscow, 2002.
- [2] A. Firoozabadi. « Thermodynamics of Hydrocarbon Reservoirs ». McGraw-Hill, New York City, 1999.
- [3] J. Gmehling, U. Onken, and W. Arlt. « Chemistry Data Series : Vapor-Liquid Equilibrium Data Collection ». Dechema, 1977.
- [4] M. Hillert. « Phase Equilibria, Phase Diagrams and Phase Transformations ». Cambridge University Press, 2007.
- [5] B.H. Jensen, and A. Fredenslund. « A simplified Flash Procedure for Multicomponent Mixtures Containing Hydrocarbons and One Non-Hydrocarbon Using Two-Parameter Cubic Equations of State ». *Ind. Eng. Chem. Res.*, 26, 10 (1987), 2129 - 2134.
- [6] A.V. Koldoba, and E.V. Koldoba. « Model equation of state and Gibbs energy for numerical modeling of the problems of multicomponent flow with phase transition in porous media ». *Geochemistry*. 4 (2004), 573-576 (in Russian).
- [7] « E.V. Koldoba. On thermodynamics of gas-condensate mixtures in porous media ». *Preprint Institute for Applied Mathematics, Russian Academy of Sciences*, (1999) (in Russian).
- [8] Y. Li, and R.T. Johns. « Rapid Flash Calculations for Compositional Simulation ». *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* . 9, 5 (2006) , 521-529.
- [9] M.L. Michelsen. « The isothermal flash problem. Part I : Stability ». *Fluid Phase Equilibria*. 9, 1 (1982), 1-19.
- [10] M.L. Michelsen. « The isothermal flash problem. Part II : Phase split calculation ». *Fluid Phase Equilibria*. 9, 1, (1982), 21-40.
- [11] M.L. Michelsen. « Simplified flash calculations for cubic equation of state ». *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 25 (1986), 184-188.
- [12] A. Mulero, C.A. Faundez , M.I. Parra , F. Cuadros. « Theoretical calculations of the isothermal compressibility for simple fluids ». *Thermochimica acta*. 334 (1999), 1-15.

- [13] S. Oladyshkin, and M. Panfilov. « Limit thermodynamic model for compositional gas-liquid systems moving in a porous medium ». *Transport in Porous Media*. 70 (2007), 147-165.
- [14] S. Oladyshkin, S. Skachkov, I. Panfilova, and M. Panfilov. « Upscaling Fractured Media and Stream-line HT-Splitting in Compositional Reservoir Simulation ». *Oil & Gas Science and Technology- Rev. IFP*. 62, 2 (2007), 59 - 68.
- [15] A.P. Pires, P.G. Bedrikovetsky, and A.A. Shapiro. « Analytical Modeling for Two-Phase EOR Processes : Splitting Between Hydrodynamics and Thermodynamics ». *SPE Annual Technical Conference and Exhibition* . 26-29 September 2004, Houston, Texas. Paper SPE 89919 MS.
- [16] H. Renon, and J. M. Prausnitz. « Local composition in thermodynamic excess functions for liquid mixtures ». *AIChE Journal*. 14, 1 (1968), 135 - 144.
- [17] H. Rhee, R. Aris, and N.R. Amundson. « First-order partial differential equations ». 1, Printice-Hall, 1986.
- [18] A.A. Shapiro , and E.H. Stenby, « Kelvin equation for a non-ideal multicomponent mixture ». *Fluid Phase Equilibria Journal*. 134 (1997), 87-101.
- [19] S. Walas. « Phase Equilibria in Chemical Engineering ». Butterworth, 1985.
- [20] A. Abadpour. « Asymptotic analysis of the Riemann problem for compositional multiphase flow in porous media and applications to oil reservoirs ». Ph.D. Thesis, INPL, Nancy 2008.
- [21] A. Abadpour, and M. Panfilov. « Method of negative saturations for modeling two-phase compositional flow with oversaturated zones ». *Transport in Porous Media*. 79, no 2, 2009, 197 -214.
- [22] M. Panfilov, & M. Rasoulzadeh. « Interfaces of phase transition and disappearance and method of negative saturation for compositional flow with diffusion and capillarity in porous media ». *Transport in Porous Media*. 83, no 1, 2010, 73 - 98.
- [23] V.M. Entov, and A. Zazovsky. « Nonlinear waves in physicochemical hydrodynamics of enhanced oil recovery, multicomponent flows ». Ed. Nedra, Moscow, 1997.
- [24] A. Bourgeat, M. Jurak, and F. Smai. « Two-phase partially miscible flow and transport modeling in porous media ; application to gas migration in a nuclear waste repository ». *Computational Geosciences*. 13, 2009, 29 - 42.
- [25] J. Jaffré, and A. Sboui. « Henry's law and gas phase disappearance ». *Transport in Porous Media*. DOI : 10.1007/s11242-009-9407-0, 2009.
- [26] R. Bonnerot, and P. Jamet. « A conservative finite element method for one-dimensional stefan problems with appearing and disappearing phases ». *Journal of Computational Physics*. 41, 2, 1981, 357 - 388.
- [27] Cere, A. and Zanotti, F. Sharpening. « Behavior and Dispersion in a Chemical Flooding ». *Third European Conference on Improved Oil Recovery*. Rome, Italy, April 1985.

-
- [28] Johns, R.T. « Analytical Theory of Multicomponent Gas Drives With Two-Phase Mass Transfer ». PhD thesis, Stanford University, Stanford, CA, 1992.
- [29] Johns, R.T., B. Dindoruk, and Orr, F.M. Jr. « Analytical Theory of Combined Condensing/ Vaporizing Gas Drives ». Soc. Pet. Eng. Advanced Technology Series, 1 (2) :7-16, 1993.
- [30] Orr, F.M., Jr., Johns, R.T. and Dindoruk, B. « Development of Miscibility in Four-Component CO₂ Floods ». Soc. Pet. Eng. Res. Eng., 8 :135-142, 1993.
- [31] T.A. Alexandrikova, and M.P. Galanin. Nonlinear Monotonization of K.I. Babenko. « Scheme for the numerical solution of the quasi-linear advection equation ». Preprint, Inst. Appl. Math. Russian Academy of Sciences, 2003 (in Russian).
- [32] Buckley, S. E., Leverett, M. C. « Mechanism of Fluid Displacement in Sands, Trans ». *AIME*(249), 1941.
- [33] Helfferich, F.G. « General Theory of Multi-component, Multiphase Displacement ». SPE(8372) presented at the SPE ATCE, 1979.
- [34] Welge, H. J. « A Simplified Model for Computing Oil Recovery by Gas or Water Drive ». *Petroleum Trans, AIME* 1952.
- [35] Hirasaki, G. J. « Application of the Theory of Multicomponent, Multiphase Displacement to Three-Component, Two-Phase Surfactant Flooding ». SPEJ, 1981.
- [36] Larson, R. G. « The Influence of Phase Behavior on Surfactant Flooding ». SPEJ(12), 1979.
- [37] [103] Zanotti, F., de Notaristefani, C., Gardini, L. Sharpening. « Behavior of Chemical Flooding ». SPE J, SPE(11809), 1983.
- [38] [65] Monroe, W. W., Silva, M. K., Larson, L. L., Orr, F. M., Jr. « Composition Paths in Four-Component Systems : Effect of Dissolved Methane on 1D CO₂ Flood Performance ». SPERE, 1990.
- [39] Dindoruk, B., Johns, R. T., Orr, F. M. « Analytical Solution for Four Component Gas Displacements with Volume Change on Mixing ». Proceedings of the Third European Conference on the Mathematics of Oil Recovery, Delft, the Netherlands, 1992.
- [40] Yuan, H., Johns, R. T. « Simplified Method for Calculation of Minimum Miscibility Pressure or Enrichment ». SPE(77381) presented at the SPE ATCE, San Antonio, TX, 2002.
- [41] Wang, Y. « Analytical Calculation of Minimum Miscibility Pressure ». Ph. D. dissertation, Stanford University, Stanford CA 1998.
- [42] Jessen, K., Wang, Y., Ermakov, P., Zhu, Ji., and Orr, F. M. Jr. « Approximate Solutions for 1D Multicomponent Gas Injection Problems ». SPE(56608) presented at the SPE ATCE, Houston, TX, 1999.
- [43] Lake, L.W. « Enhanced Oil Recovery, first edition ». Prentice Hall, Upper Saddle River, NJ, 1989.

- [44] Jessen, K., Orr, F. M. Jr. « Gas Cycling and the Development of Miscibility in Condensate Reservoirs ». SPE(84070) presented at the SPE ATCE, 2003.
- [45] Bedrikovetsky, P., Andrade, G.M., Ferreira, L.E.A., and Menezes, G.L. « Optimization of Tertiary Water-Alternate-CO₂ Injection ». SPE (36133) presented at the SPE 4th Latin American and Caribbean Conference, Port of Spain, Trinidad and Tobago, 1996.
- [46] Wang, Y. « Analytical Calculation of Minimum Miscibility Pressure ». PhD thesis, Stanford University, Stanford, CA, 1998.

Résumé

Dans ce mémoire, deux problèmes liés aux écoulements multiphasiques compositionnels en milieux poreux ont été traités. La première partie est consacrée au développement d'une nouvelle approche alternative aux calculs flash, qui permet de résoudre les équations d'équilibre thermodynamique analytiquement. Cette méthode est basée sur des équations d'état (EOS) dissymétriques, ainsi, les comportements du gaz, du liquide et du fluide diphasique sont décrits par des EOS individuelles simples. La Capacité d'une EOS à capturer l'état diphasique est appelée : *conditions de consistance*. Ces conditions ont été formulées dans cette partie pour les systèmes multi-composants.

La deuxième partie est consacrée au développement de la méthode de saturations négatives qui a été proposé précédemment par notre groupe pour le cas d'un mélange diphasique binaire. Tout d'abord, nous avons présenté la théorie analytique de la méthode pour les mélanges idéaux puis sa généralisation pour des mélanges réels avec un nombre arbitraire de composants chimiques et de phases. Nous avons obtenu les nouvelles équations multiphasiques uniformes qui contiennent des termes supplémentaires responsables de la diffusion et de la gravité à travers les interfaces de transition de phase.

Mots-clés: Ecoulement multiphasique, interface de transition de phases, équilibre thermodynamique, extra diffusion, extra gravité, simulation numérique.

Abstract

Advancement of the negative saturations method for multi-phase multi-components flow with gravity and diffusion.

In this thesis, two problems related to compositional multiphase flow in porous media have been treated. The first part is devoted to develop a new approach which gives a form of equilibrium equations which can be solved analytically even for multi-component non ideal systems and even in the presence of capillary effects, which reduce significantly computational time. In this approach, separate behaviours of gas, liquid and two phase fluid may be described using very simple equations of state (EOS). Capacity of EOS's to capture two phase state is called : *consistency conditions*. These conditions are formulated in this part for multi-components systems.

The second part is devoted to develop the negative saturations method which was proposed earlier by our group for the case of two-phase binary mixtures. First, we have developed the mathematical theory of the method for ideal mixtures in 1D case. Next, we have generalized the method for the case of any number of phases and chemical components. We have obtained the new equivalent uniform multi-phase equations which contain additional non-classical terms responsible of diffusion and gravity across the interfaces of phase transition.

Keywords: Multiphase flow, interface of phase transtion, thermodynamic equilibrium, extra diffusion, extra gravité, numerical simulation.

