

Exclu du prêt

THESES

présentées

50376
1963
19

50.376
1963
19

A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE LILLE

Pour obtenir le titre d'Ingénieur-Docteur

par

Pierre SIMANDOUX



Première thèse

SUR UNE METHODE DE MESURE DE LA SATURATION EN EAU
D'UN MILIEU POREUX PAR UTILISATION
DE LA POLARISATION DIELECTRIQUE INTERFACIALE

Deuxième thèse

PROPOSITIONS DONNEES PAR LA FACULTE

Soutenues le 1^{er} juillet 1963

devant la Commission d'Examen

M. GABILLARD

Président

M. LEBRUN

Examineurs

M. MARTINOT-LAGARDE



50.376
1963
19

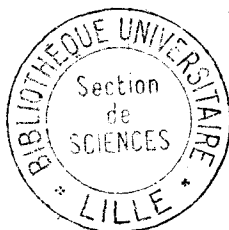
THESES Exclu du prêt
présentées

50376
1963
19

A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE LILLE

pour obtenir le titre d'Ingénieur-Docteur
par

Pierre SIMANDOUX



1ère THESE : SUR UNE METHODE DE MESURE DE LA SATURATION EN EAU D'UN MILIEU POREUX, PAR UTILISATION DE LA POLARISATION DIELECTRIQUE INTERFACIALE.

2ème THESE : PROPOSITIONS DONNEES PAR LA FACULTE.

Soutenues le 1er Juillet 1963

devant la Commission d'Examen

MM. GABILLARD Président
LEBRUN Examineur
MARTINOT-LAGARDE Examineur

En présentant ce travail, je me permets de remercier très vivement Monsieur le Professeur GABILLARD, Directeur de l'Institut de Radioélectricité et d'Electronique de Lille qui, depuis ses débuts, a dirigé cette étude par ses nombreux et précieux conseils, et qui a bien voulu, en outre, me faire l'honneur de présider le Jury de cette thèse.

Je tiens également à remercier vivement Monsieur le Professeur LEBRUN, pour l'intérêt qu'il a bien voulu porter à ce travail. Il m'a fait en plus bénéficier d'un appareil qui a été à la base de toute l'étude expérimentale présentée dans ce travail.

Monsieur le Professeur MARTINOT-LAGARDE m'a fait l'honneur de participer à mon jury de thèse, je l'en remercie vivement.

J'exprime ma reconnaissance :

à Monsieur NAVARRE, Président Directeur Général de l'Institut Français du Pétrole, et à Monsieur GIRAUD, Directeur Général Adjoint,

à Monsieur LARBRE, Directeur de la Division Forage Production Gisements, à Monsieur POTTIER, Chef de Département, et à Monsieur DEFFRENNE, qui sont à l'origine de cette étude et m'ont constamment guidé par leurs conseils et leurs suggestions.

J'associe dans mes remerciements toutes les personnes qui se sont intéressées à ce travail ou y ont participé personnellement, notamment Monsieur CONSTANT de l'Institut de Radioélectricité et d'Electronique de Lille, qui m'a fait très amicalement bénéficier de son expérience dans le domaine des diélectriques, et surtout Monsieur JACQUIN, de la Division Forage Production Gisements, pour toute sa participation dans l'aboutissement de cette étude.

S O M M A I R E

	Pages
INTRODUCTION	6
 <u>PREMIERE PARTIE : RAPPEL DE NOTIONS FONDAMENTALES</u>	
I. GENERALITES CONCERNANT LES MILIEUX POREUX	8
I.1 - Notion de porosité	8
I.2 - Notion de saturation	8
I.3 - Notions concernant le comportement électrique du milieu poreux	9
II. LE MILIEU POREUX CONSIDERE COMME DIELECTRIQUE - GENERALITES CONCERNANT LES DIELECTRIQUES	10
II.1 - Polarisation diélectrique	10
11. Polarisation statique	10
111) Polarisation - Polarisabilité.....	10
112) Principaux mécanismes de polarisation ..	11
12. Polarisation dynamique	12
121) Généralités	12
122) Introduction de la constante diélectrique complexe	13
123) Schéma électrique équivalent au diélec- trique	13
III. LA POLARISATION INTERFACIALE - L'EFFET MAXWELL-WAGNER	15
 <u>DEUXIEME PARTIE : PRINCIPE DE LA METHODE DE MESURE DES SATURATIONS EN EAU D'UN ECHANTILLON DE MILIEU POREUX</u>	
IV. L'EFFET DE PAROIS	18
IV.1 - Définition	18
11. Calcul de la permittivité apparente	18
12. Analyse des composantes de la permittivité complexe apparente - Influence de la fréquence	20
13. Autres propriétés des composantes de la permit- tivité apparente	21
131) Diagramme Cole-Cole	21
132) Formules inverses - Propriétés d'inversion	22
IV.2 - Vérification expérimentale de l'effet de parois	23

V.	COMPORTEMENT ELECTRIQUE DU MILIEU POREUX - INFLUENCE DE LA SATURATION EN EAU	24
V.1	- Généralités	24
V.2	- Résultats expérimentaux	26
21.	Mise en évidence du phénomène Maxwell-Wagner à l'aide de l'effet de parois	26
22.	Principales propriétés de ce phénomène Maxwell-Wagner	27
23.	Influence de la saturation déterminée à l'aide de l'effet de parois	28
V.3	- Relation entre les grandeurs apparentes C^* et G^*/ω et la saturation	30

TROISIEME PARTIE : MISE EN OEUVRE PRATIQUE DE LA METHODE DE MESURE DES SATURATIONS

VI.	NATURE DE L'APPAREILLAGE - MESURE DES GRANDEURS C^* ET G^*	34
VI.1	- Montage expérimental	34
VI.2	- Différentes parties du montage	35
21.	Appareil de mesure de C^* et G^* - GBmètre	35
22.	Générateur moyenne fréquence	38
23.	Accessoires de mesure	38
VI.3	- Précision sur la mesure de C^* et G^*/ω	39
VII.	REALISATION DES CONDITIONS OPTIMA DE MESURE - CHOIX DES PARAMETRES FIXES	40
VII.1	- Généralités	40
VII.2	- Amplitude des variations - Choix des paramètres de cellule	41
VII.3	- Choix de la fréquence de mesure	43
VIII.	ETALONNAGE DE LA COURBE Z^* EN FONCTION DE LA SATURATION EN EAU	45
IX.	PRECISION SUR LA DETERMINATION DES SATURATIONS	46
X.	CONCLUSION	48

QUATRIEME PARTIE : APPLICATION DE CETTE METHODE A L'ETUDE DES MASSIFS ARGILEUX

XI.1	- Généralités	49
XI.2	- Rappel de généralités concernant les argiles	50
21.	Constitution des particules argileuses	50
22.	Les particules argileuses en présence d'une solution d'électrolytes	50

XI.3 - Comportement électrique d'un massif argileux	51
31. Conditions expérimentales	51
32. Principaux résultats	52
XI.4 - Interprétation du comportement électrique des massifs argileux, par l'introduction de la double couche ionique	54
41. Identification avec la conductivité superficielle	54
42. Influence de la double couche ionique	54
43. Cas des très faibles saturations	55
XI.5 - Conclusion	56
CONCLUSION	58

METHODE DE MESURE DE LA SATURATION EN EAU D'UN MILIEU POREUX
PAR UTILISATION DE LA POLARISATION DIELECTRIQUE INTERFACIALE

I N T R O D U C T I O N

Les milieux poreux habituellement considérés dans le domaine pétrolier, sont constitués par une matrice solide à base de silice, dont les pores contiennent en proportion variable les trois phases fluide eau, huile et gaz. L'eau est une solution d'électrolytes, principalement du chlorure de sodium, l'huile et le gaz sont des mélanges en composition variable de carbures paraffiniques ou aromatiques, seul leur état physique différenciant nettement ces deux phases. On conçoit aisément l'importance que prend la connaissance de la proportion de chacune des phases dans un échantillon de milieu poreux, à la fois d'un strict point de vue de routine en vue de la détermination des caractéristiques particulières d'un gisement pétrolier, et surtout d'un point de vue fondamental d'étude des écoulements ou des équilibres de ces fluides à l'intérieur du milieu poreux.

La phase aqueuse est obligatoirement présente dans les milieux poreux, il existe toujours une quantité minima d'eau, et en général, nous le verrons, la seule connaissance de la proportion de la phase aqueuse remplissant les pores apporte un renseignement suffisant. Aussi les considérations électriques paraissent-elles séduisantes. En effet, l'eau présente une conductivité d'un tout autre ordre de grandeur de l'huile, du gaz ou de la matière solide et l'on conçoit aisément que la seule considération du paramètre conductivité électrique apporte un renseignement de premier ordre sur la quantité d'eau présente dans le milieu poreux. De nombreux auteurs (réf. 1,2,3,4) se sont penchés sur ce problème de la conductivité d'un échantillon de milieu poreux en fonction de la quantité d'eau présente à son intérieur, mais les méthodes proposées en vue d'une atteinte de ce paramètre n'ont pas eu le développement que l'on pouvait attendre par suite de certains inconvénients inhérents aux méthodes proposées. Celles-ci sont basées sur la mesure de la conductivité d'un échantillon en courant basse fréquence (50 cycles) à partir de la mesure de l'intensité du courant résultant d'une tension connue appliquée aux bornes de deux électrodes disposées au sein de l'échantillon. Outre le peu de souplesse qu'elle présente, une telle disposition offre les inconvénients suivants :

- Impossibilité de faire des mesures très bien localisées, ou de faire des enregistrements continus le long d'un échantillon ;
- Création de cheminements privilégiés pour les fluides à l'endroit des électrodes, ceux-ci pouvant modifier la répartition des fluides, donc la grandeur à mesurer ;
- Mauvaise définition du contact électrode milieu, nuisant à la validité de la mesure, et à la reproductibilité des résultats.

C'est pour pallier à de tels inconvénients, que nous avons entrepris l'étude d'une méthode de détermination de la quantité d'eau contenue à l'intérieur d'un certain volume de milieu poreux, et basée toujours sur des phénomènes électriques. L'idée de cette nouvelle méthode provient de la remarque que si l'on supprime le contact direct électrode milieu, on supprime également tous les inconvénients précédents. Cette condition a été obtenue en interposant entre les électrodes et le milieu une paroi isolante, qui est d'ailleurs en général la paroi de la cellule contenant le milieu en question (en général cellule en verre ou en plexiglass). Le principe de la méthode exposée est donc la détermination de la quantité d'eau présente dans le milieu poreux, à partir de la mesure de l'absorption d'énergie électrique qui se produit dans le domaine des fréquences hertziennes consécutivement à un effet d'hétérogénéité du type Maxwell-Wagner entre une paroi isolante et le milieu poreux lui-même.

Après avoir rappelé dans une première partie les notions indispensables concernant la nature du milieu poreux, et concernant les diélectriques puisque celui-ci en est un, nous exposerons ensuite le principe de la méthode proposée puis la mise en oeuvre de celle-ci au point de vue pratique. Enfin, nous montrerons qu'en fait une telle méthode est plus générale et peut s'appliquer avec fruit dans bien d'autres problèmes de mesure des grandeurs électriques, et nous donnerons à titre d'exemple l'utilisation de cette méthode dans l'étude de la conductivité superficielle de particules argileuses distribuées au sein d'un milieu poreux.

PREMIERE PARTIE

RAPPEL DE NOTIONS FONDAMENTALES

I. GENERALITES CONCERNANT LES MILIEUX POREUX

I.1 - Notion de porosité

Nous avons dit en introduction qu'un milieu poreux est constitué par un squelette poreux presque exclusivement à base de silice, les dimensions des pores variant généralement entre quelques dizaines et quelques centaines de microns. On introduit généralement la notion de porosité qui caractérise l'importance de ces pores par rapport à la quantité de solide. La porosité est définie par le rapport ϕ du volume des pores, V_p au volume total V_T envisagé.

$$\phi = \frac{V_p}{V_T} \quad (I,1)$$

Cette porosité ϕ est un nombre sans dimension compris entre 0 et 1 et que l'on exprime généralement en pourcent par rapport à l'unité. C'est naturellement une notion statistique, qui n'a un sens que dans la mesure où le volume total V_T envisagé reste grand devant la dimension des pores.

Cette notion perdrait toute signification et tendrait d'une façon aléatoire vers deux bornes extrêmes 0 ou 1 pour un volume V_T tendant vers 0. Les porosités usuelles varient entre 10 et 40 %.

I.2 - Notion de saturation

Pour caractériser les fluides en place à l'intérieur du milieu poreux, on introduit la notion de saturation. La saturation s_i du fluide d'indice i est définie par le rapport du volume V_i occupé par ce fluide au volume des pores.

$$s_i = \frac{V_i}{V_p} \quad (I,2)$$

Comme la porosité, la saturation varie entre 0 et 1, c'est également un nombre sans dimension, qui a une valeur statistique à l'échelle d'un grand nombre de pores. En outre les pores étant intégralement remplis par les trois fluides eau, huile ou gaz, d'indices respectifs w , h et g , il existe entre les trois saturations correspondantes la relation :

$$s_w + s_h + s_g = 1 \quad (I,3)$$

La quantité totale d'un fluide, l'eau par exemple, présente dans le milieu poreux rapportée au volume de ce milieu est alors :

$$x = \frac{V_w}{V_T} = \frac{V_w}{V_p} \times \frac{V_p}{V_T} = s_w \phi \quad (I,4)$$

- Le problème que nous nous sommes assigné est donc la mesure de la saturation, car la connaissance de la porosité est en générale acquise par une mesure préalable, et de plus la saturation suffit à caractériser la quantité relative de chacun des fluides. Deux types de problèmes se présentent dans la pratique :

- la détermination globale des saturations en chacun des trois fluides eau-huile et gaz d'un échantillon provenant d'un gisement. Compte tenu de la relation (I,3), et d'une relation supplémentaire apportée par une mesure de poids, la détermination d'une seule des saturations, la saturation s_w en eau par exemple suffit à résoudre le problème;
- la détermination locale des saturations dans un modèle de milieu poreux, en tant que paramètre nécessaire dans l'étude des lois régissant les écoulements ou les équilibres en milieu poreux. Dans ce cas la complexité de ces phénomènes oblige à limiter à 2 les fluides en présence, soit le couple eau-gaz, soit le couple eau-huile. La relation (I,3) se réduit alors à :

$$\begin{aligned} s_w + s_h &= 1 \\ \text{ou} \quad s_w + s_g &= 1 \end{aligned} \quad (I,5)$$

de sorte que la connaissance de l'une des saturations, la saturation en eau par exemple suffit dans ce cas également à résoudre le problème.

Remarque :

Il convient de noter que cette notion de saturation est une notion macroscopique qui traduit un bilan de volume et qui ne rend en particulier pas compte de la façon dont sont réparties chacune des phases l'une par rapport à l'autre. Elle donne néanmoins une description suffisamment fine pour la représentation des phénomènes d'écoulements propres au milieu poreux.

I.3 - Notions concernant le comportement électrique des milieux poreux

Les études effectuées par les méthodes citées en introduction, ont permis à certains auteurs (réf. 1,2,3,4,5) de donner des lois empiriques rendant plus ou moins bien compte du comportement électrique du milieu poreux. Celles-ci sont, dans le seul cas du courant continu ou basse fréquence qui a été étudié, les suivantes :

- La conductivité σ d'un massif est proportionnelle à la conductivité σ_w de l'eau présente à son intérieur. A saturation complète des pores le coefficient de proportionnalité entre ces deux grandeurs est appelé facteur de formation. Celui-ci est défini par l'équation (I,6) suivante :

$$F_e = \frac{\sigma_w}{\sigma} \quad (I,6)$$

et est donc caractéristique de l'échantillon de milieu poreux envisagé.

Ce facteur de formation est généralement relié à la porosité (réf. 6) par la formule :

$$F_e = \frac{1}{\phi^2} \quad (I,7)$$

- En fonction de la saturation en eau la conductivité du milieu poreux peut se mettre sous la forme $\sigma = A s_w^n$ (I,8) l'exposant n étant voisin de 2.

Soit en combinant ces trois équations $\sigma = \phi^2 s_w^n \sigma_w$ (I,9).

Toutes ces formules n'ont aucun fondement théorique, et ne sont qu'approximatives ; les formules (I,7) et (I,8) présentent en particulier de nombreux cas de non validité. Néanmoins, il n'existe pas, à notre connaissance d'autres tentatives d'approche plus satisfaisantes.

II. LE MILIEU POREUX CONSIDERE COMME DIELECTRIQUE - GENERALITES CONCERNANT LES DIELECTRIQUES

Un échantillon de milieu poreux tel que nous l'avons défini, contenant une masse solide, et plusieurs phases fluides dont une phase aqueuse peut être considéré comme un diélectrique hétérogène. A ce titre il est régi par tous les concepts introduits dans la théorie des diélectriques, concepts que nous rappelons dans ce paragraphe (réf. 7,8,9,10,11).

II.1 - L a p o l a r i s a t i o n d i é l e c t r i q u e

II.11) Polarisation statique (cas d'un champ électrique appliqué constant)

II.111) Polarisation-Polarisabilité

Sous l'influence d'un champ électrique constant, $\vec{E}$, un diélectrique se polarise. Une telle polarisation peut se concevoir, selon Faraday, comme la transformation de chaque élément de volume en un doublet électrique. On définit ainsi un vecteur polarisation $\vec{P}$ par la valeur du moment dipolaire par unité de volume, résultant de l'action du champ.

- Au point de vue macroscopique, ce vecteur polarisation résulte de la définition du pouvoir inducteur spécifique ϵ de la substance supposée isotrope.

$$\vec{P} = (\epsilon - 1) \vec{E} \quad (\text{II},1)$$

- Au point de vue microscopique, le moment dipolaire par unité de volume résulte de l'addition de N moments dipolaires élémentaires moyens et l'on admet généralement que cette valeur moyenne $\vec{\mu}$ est proportionnelle à l'intensité du champ électrique local $\vec{E}'$ agissant effectivement sur le dipole élémentaire

$$\vec{\mu} = \alpha \vec{E}'$$

Le coefficient de proportionnalité est appelé polarisabilité, et si l'on connaît la relation $E'/E = f(\epsilon)$, on voit que la polarisation macroscopique $\vec{P}$ permet de remonter aux propriétés microscopiques :

$$\vec{P} = N \alpha \vec{E}' = (\epsilon - 1) \vec{E} \quad (\text{II},2)$$

On introduit souvent la polarisabilité molaire $\beta = V \alpha = \frac{M}{d} \alpha$ M étant la masse moléculaire et d la densité.

$$N \beta = \frac{M}{d} (\epsilon - 1) \frac{E}{E'} = \frac{M}{d} (\epsilon - 1) f(\epsilon) \quad (\text{II},3)$$

II.112) Les principaux mécanismes de polarisation

La polarisation décrite au paragraphe précédent peut résulter de plusieurs mécanismes microscopiques simples, qui sont les suivants :

a) dans les corps homogènes

- Les polarisations induites ou polarisations par déformations qui ne peuvent exister en l'absence de champ. Ce phénomène résulte du déplacement de certaines particules chargées sous l'influence du champ. Ces particules chargées peuvent être le cortège électronique entourant les noyaux, qui voient ainsi leurs orbites déformées (polarisation électronique), ou les noyaux eux-mêmes qui peuvent se déplacer les uns par rapport aux autres (polarisation atomique) (par déplacement du nuage électronique les atomes peuvent acquérir une certaine polarité et être ainsi déplacés par le champ).

- La polarisation par orientation - Certaines molécules présentent une dissymétrie électrique, les charges positives et négatives n'ayant pas le même barycentre. La molécule constitue alors un dipole permanent qui tend à s'orienter et à se déplacer sous l'action du champ électrique. C'est la polarisation par orientation. Dans ce cas il existe à l'échelle moléculaire une polarisation, mais celle-ci ne peut se manifester à l'échelle macroscopique, en l'absence de champ, par suite de la répartition au hasard de ces dipôles élémentaires donc d'un dipole résultant nul.

b) dans les corps hétérogènes

- La polarisation interfaciale. - Les deux types de polarisation précédents peuvent exister comme dans les diélectriques homogènes, mais il existe un autre type de polarisation spécifique des diélectriques hétérogènes, c'est la polarisation interfaciale. Des charges électriques peuvent se déplacer à travers les différentes régions conductrices et il se crée une densité de charge sur les surfaces de séparation des zones de différentes conductivités, elles constituent ainsi des dipôles supplémentaires. Un tel mécanisme ne peut exister que si l'un au moins des constituants présente une certaine conductivité.

En résumé on voit que ces mécanismes de polarisations proviennent tous d'un processus de déplacement commun : les particules électriques peuvent se déplacer dans certains domaines, mais en sortir plus difficilement qu'elles n'y circulent, que ces domaines soient l'atome, la molécule, ou des zones de nature différente.

II.12) Polarisation dynamique (cas d'un champ alternatif sinusoïdal)

II.121) Généralités

Lorsque le champ appliqué est de fréquence suffisamment élevé la polarisation présente deux propriétés principales :

- La polarisation totale est inférieure à la polarisation totale statique, et sa valeur dépend de la fréquence du champ alternatif. En fait elle dépend surtout de la valeur de la fréquence propre des déplacements élastiques des particules à l'origine de la polarisation, comparée à la valeur de la fréquence du champ électrique.
- Une partie de l'énergie fournie par le champ est absorbée par le diélectrique et se transforme en chaleur. Cette énergie dissipée varie avec la fréquence.

Il est aisé de voir que tout retard dans la polarisation, donc tout déphasage du vecteur $\vec{P}$ accompagne une absorption d'énergie dans le diélectrique et inversement, et en fait les deux propriétés précédentes sont la manifestation d'un seul phénomène : la polarisation n'est pas instantanée, et suit toujours avec un certain retard les brusques changements de sens imposés par le champ électrique : lorsque la fréquence du champ appliqué est nettement inférieure à celle du mécanisme de polarisation mis en jeu, la polarisation suit sans retard appréciable, et est égale à la valeur statique P_0 , il n'y a guère de dissipation d'énergie, lorsque celle-ci est nettement supérieure à celle du mécanisme de polarisation, la polarisation n'a guère le temps de suivre, elle est minimum, P_∞ , l'absorption d'énergie est maxima. Lorsque les deux périodes sont du même ordre de grandeur, on obtient une polarisation intermédiaire entre P_0 et P_∞ variable avec la fréquence du champ électrique.

Les fréquences propres des déplacements élastiques des électrons ou des noyaux se situent respectivement dans le domaine du visible et de l'ultra-violet, et de l'infrarouge, si bien que dans le domaine des fréquences hertziennes, seules sont à prendre en considération la polarisation par orientation, et la polarisation interfaciale, le matériau prenant immédiatement les polarisations statiques électronique et atomique.

II.122) Introduction de la constante diélectrique complexe

Comme conséquence de ce déphasage de la polarisation du diélectrique par rapport au champ électrique, il s'en suit également un déphasage du vecteur $\vec{D}$ excitation du champ électrique. Par analogie avec le cas des diélectriques parfaits on a coutume d'introduire la permittivité complexe (ou constante diélectrique complexe) pour caractériser le rapport $\vec{D}/\vec{E}$.

$$\epsilon = \frac{D}{E} \quad (II,4)$$

Etant donné le champ électrique $E = E_0 e^{j\omega t}$, D peut se mettre sous la la forme $D = D_0 e^{j(\omega t - \delta)}$, δ étant le déphasage entre D et E , de sorte que :

$$\epsilon = \frac{D_0}{E_0} e^{-j\delta} \quad (II,5)$$

On sépare généralement parties réelle et imaginaire de la permittivité complexe sous la forme :

$$\epsilon = \epsilon' - j\epsilon'' \quad (II,6)$$

de sorte que :

$$\begin{cases} \epsilon' = \frac{D_0}{E_0} \cos \delta \\ \epsilon'' = \frac{D_0}{E_0} \sin \delta \end{cases}$$

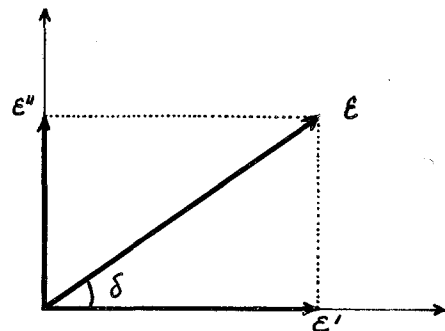


Fig. 1

Par analogie avec le cas d'un diélectrique parfait (aucune polarisation, donc $\delta = 0$), ϵ' est appelée constante diélectrique réelle du diélectrique. L'énergie dissipée dans le diélectrique, par centimètre cube et par seconde étant proportionnelle à $D_0 \cdot E_0 \sin \delta$, donc à ϵ'' , ϵ'' est appelée pertes diélectriques, et δ angle de perte du diélectrique. On emploie plus généralement sa tangente $\tan \delta = \epsilon''/\epsilon'$.

Compte tenu de sa définition (II,4 ou II,5) ϵ est variable avec la fréquence.

II.123) Schéma électrique équivalent au diélectrique placé à l'intérieur d'un condensateur

Etant donné un condensateur bâti autour d'un diélectrique, de capacité active C_0 , la densité de courant traversant ce diélectrique sous l'action du champ électrique $\vec{E}$ est égale à $\vec{J} = \frac{dD}{dt} = \epsilon \frac{dE}{dt}$

$$\vec{J} = (j\omega\epsilon' + \omega\epsilon'')\vec{E} \quad (II,7)$$

Cette formule montre que le courant total peut être interprété comme résultant du courant de charge de densité $\vec{J}_c = j\omega\epsilon'\vec{E}$ en avance de $\pi/2$ sur la tension appliquée, et d'un "courant de pertes" de densité $\vec{J}_p = \omega\epsilon''\vec{E}$ en phase avec la tension, la densité totale $\vec{J}$ étant donc décalée d'un angle $\theta = \frac{\pi}{2} - \delta$ par rapport au champ $\vec{E}$ (fig. 2).

Ceci permet donc de définir un condensateur contenant un tel diélectrique de permittivité complexe $\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$ comme équivalent à un circuit R, C en parallèle, C étant un condensateur parfait, R une résistance pure, tous deux variables en fréquence comme ϵ (fig. 3).

La densité de courant traversant le circuit RC est :

$$\vec{J} = (j\omega C + G) \frac{1}{C_0} \vec{E}$$

L'identification de cette expression avec l'équation (II,7) montre que le condensateur bâti autour du diélectrique envisagé est équivalent au circuit RC défini par les relations :

$$\begin{cases} C = C_0 \epsilon' \\ G = \frac{1}{R} = C_0 \omega \epsilon'' \end{cases} \quad (\text{II},8)$$

Remarque :

Le cas du diélectrique le plus général, et c'est le cas du massif de milieu poreux, est celui où l'une des phases conductrices est sous forme continue. Aux différents termes de dissipation d'énergie précédemment énumérés, s'ajoute alors un terme de conductance dû au déplacement des porteurs de charge dans ce milieu. Par la suite nous considérerons la conductance totale $G = G' + C_0 \omega \epsilon''$ qui tient compte de ce terme supplémentaire, et nous introduirons en général la conductivité qui, exprimée dans le système international (en $\text{ohm}^{-1} \times \text{m}^{-1}$) est égale à :

$$\sigma = \epsilon_0 \frac{G}{C_0}$$

ϵ_0 étant la constante diélectrique du vide égal à $8.854.10^{-12}$, G étant en ohm et C_0 en farad.

La conductivité du diélectrique est alors : $\sigma = \sigma' + \epsilon_0 \omega \epsilon''$ que nous écrirons simplement sous la forme normalisée (II,9) :

$$\sigma = \sigma' + \omega \epsilon'' \quad (\text{II},9)$$

Nous introduirons de même les pertes diélectriques totales

$$\epsilon'' = \frac{\sigma}{\omega} \quad (\text{II},9 \text{ bis})$$

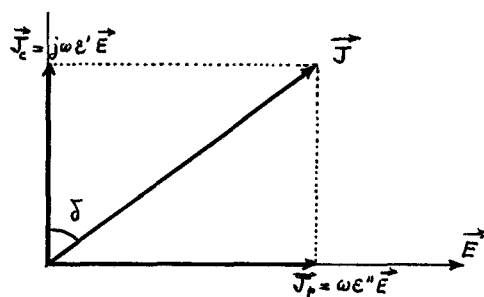


Fig. 2

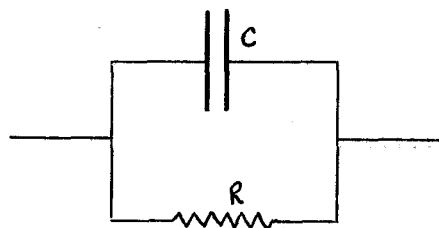


Fig. 3

III. LA POLARISATION INTERFACIALE - L'EFFET MAXWELL-WAGNER

Nous avons défini précédemment la notion de polarisation interfaciale. L'effet Maxwell-Wagner, du nom des deux savants qui les premiers ont étudié ce phénomène (réf. 12,13,14) est la manifestation macroscopique de ce processus.

- Le cas le plus simple d'observation d'un tel phénomène est le condensateur bi-couche, constitué par deux couches en série de diélectriques de nature différente. Ce cas simple constituera le point de départ de la deuxième partie puisque c'est en fait le montage qui sert de base à la méthode proposée.
- Un cas plus compliqué concerne les diélectriques hétérogènes constitués par la dispersion de particules d'une certaine nature dans une phase continue d'une autre nature. Il est intéressant d'étudier ce cas particulier puisqu'il correspond dans son principe au diélectrique que constitue le milieu poreux.

Considérons le cas très schématique de particules identiques également orientées par rapport au champ électrique appliqué. Bien qu'un tel résultat ne soit pas évident, on peut voir (réf. 15) que le processus correspond à un processus de relaxation de dipôles qui, comme tout phénomène de relaxation mécanique, se traduit par une équation différentielle du premier ordre, pour la variation de polarisation P_d à partir de sa valeur minima P_∞ , équation du type :

$$\frac{dP_d}{dt} = \frac{1}{\tau} (P_o - P_d) \quad (\text{III},1)$$

L'augmentation dP_d/dt de polarisation étant proportionnelle à la différence entre la valeur finale P_o de la polarisation (polarisation statique), et la valeur actuelle P_d , le facteur de proportionnalité $1/\tau$, est l'inverse d'un temps, τ , appelé temps de relaxation, est ici fonction de la forme et de la nature des particules en présence.

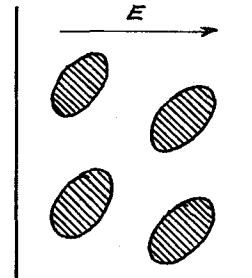


Fig. 4

En courant continu, l'intégration de l'équation (III,1), avec la condition initiale $P_d(t=0) = 0$ donne :

$$P_d = P_o \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right)$$

On admet que cette équation (III,1) est valable en régime alternatif avec :

$$\begin{cases} P = P_d + P_\infty = P_d + (\epsilon_\infty - 1) E \\ P_o = (\epsilon_o - 1) E - P_\infty = (\epsilon_o - \epsilon_\infty) E \end{cases}$$

donc

$$\frac{dP_d}{dt} = \frac{1}{\tau} \left[(\epsilon_0 - \epsilon_\infty) E - P_d \right]$$

$$\tau \frac{dP_d}{dt} + P_d = (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) E(t)$$

la solution générale de cette équation est, dans le cas d'un champ sinusoïdal :

$$P_d = C e^{-t/\tau} + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} E_0 e^{j\omega t}$$

le premier terme, très rapidement décroissant peut être négligé, de sorte que :

$$P = P_d + P_\infty = \left[(\epsilon_\infty - 1) + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} \right] E_0 e^{j\omega t} \quad (\text{III},2)$$

Ceci donne pour le vecteur excitation du champ électrique :

$$D = \left(\epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} \right) E$$

soit :

$$\boxed{\epsilon = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + j\omega\tau}} \quad (\text{III},3)$$

et en séparant parties réelles et imaginaires :

$$\begin{cases} \epsilon' = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \\ \epsilon'' = (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases} \quad (\text{III},4)$$

Ces formules (III,4) montrent dans ce cas l'évolution de la permittivité complexe avec la fréquence. Nous reviendrons sur ce type d'équation, car nous les rencontrerons dans la définition de l'effet de parois mentionné. Nous signalons simplement ici la propriété apparente lorsque l'équation (III,3) est mise sous la forme :

$$(\epsilon - \epsilon_\infty)(1 + j\omega\tau) = \epsilon_0 - \epsilon_\infty \quad (\text{III},5)$$

qui traduit que dans le diagramme imaginaire $\epsilon' - \epsilon''$ (diagramme Cole-Cole réf.16) le lieu de ϵ est le demi cercle passant par les deux points $(\epsilon_0, 0)$ et $(\epsilon_\infty, 0)$. Il est naturel que l'on ait une telle relation $f(\epsilon', \epsilon'') = 0$ puisque les variations de ces deux grandeurs traduisent en fait les manifestations d'un même phénomène.

Lorsque les particules dispersées ne sont pas toutes identiques, ou ne sont pas toutes orientées de la même façon par rapport au champ, mais présentent une fonction de distribution

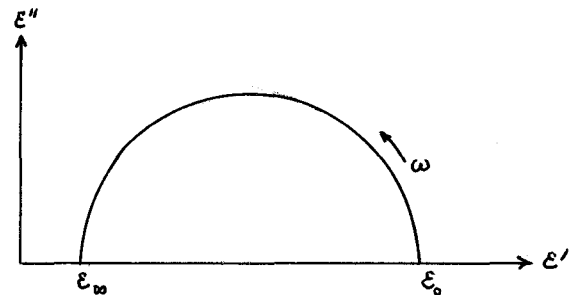


Fig. 5

de leurs formes et de leurs orientations le phénomène Maxwell-Wagner n'est plus assimilable à un mécanisme de relaxation unique, mais le phénomène étant linéaire, P et ϵ peuvent être exprimés en fonction d'une fonction de distribution des temps de relaxation $G(\tau)$, liée à la fonction de distribution précédente et qui lorsqu'elle est normée sous la forme $\int_0^\infty G(\tau) d\tau = 1$ est telle que :

$$\begin{aligned} P &= (\epsilon_\infty - 1) + (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \int_0^\infty \frac{G(\tau)}{1 + j\omega\tau} d\tau \\ \epsilon &= \epsilon_\infty + (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \int_0^\infty \frac{G(\tau)}{1 + j\omega\tau} d\tau \end{aligned} \quad (III, 6)$$

et donc :

$$\begin{cases} \epsilon' = \epsilon_\infty + (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \int_0^\infty \frac{G(\tau)}{1 + \omega^2\tau^2} d\tau \\ \epsilon'' = (\epsilon_0 - \epsilon_\infty) \int_0^\infty \frac{\omega\tau G(\tau)}{1 + \omega^2\tau^2} d\tau \end{cases} \quad (III, 7)$$

Ces formules traduisent une dépendance plus complexe de ϵ' et ϵ'' en fonction de la fréquence, et également l'un par rapport à l'autre, le diagramme de Cole-Cole pouvant ne plus être un cercle.

Cette fonction de distribution $G(\tau)$ présente un intérêt tout particulier puisqu'elle traduit une approche très fine, à l'échelle de l'hétérogénéité, de la structure du diélectrique. Théoriquement la connaissance de l'une des fonctions ϵ' ou ϵ'' dans toute la gamme de fréquence permet de remonter à la détermination de cette fonction $G(\tau)$. En effet une méthode de résolution de ces équations intégrales (III, 7) a été proposée par Fuoss et Kirkwood (réf. 17) en utilisant les transformées de Fourier. L'utilisation de la transformation de Stielges* donne immédiatement le même résultat.

Si l'on pose

$$\begin{aligned} \epsilon'(\omega) &= J(x) \\ \epsilon''(\omega) &= H(x) \end{aligned} \quad \text{en fonction de } x = \log \omega$$

on a :

$$\begin{cases} G(\tau) = \frac{1}{\pi\tau} \left[H\left(s + j\frac{\pi}{2}\right) + H\left(s - j\frac{\pi}{2}\right) \right] = \frac{2}{\pi\tau} \mathcal{R} \left[H\left(s + j\frac{\pi}{2}\right) \right] \\ G(\tau) = \frac{1}{j\pi\tau} \left[J\left(s - j\frac{\pi}{2}\right) - J\left(s + j\frac{\pi}{2}\right) \right] = \frac{2}{\pi\tau} \mathcal{J} \left[J\left(s - j\frac{\pi}{2}\right) \right] \end{cases} \quad (III, 8)$$

avec $s = \text{Log } \tau$.

Si théoriquement le problème de la détermination de cette fonction $G(\tau)$ est parfaitement résolu, nous verrons page 27 que l'exploitation pratique de ces formules (III, 8) présente de nombreuses difficultés.

* Transf. de Stielges.

$$\begin{aligned} &\text{si } f(x) \text{ est tel que } \int_0^\infty \frac{f(x)dx}{x+y} = 2\pi j g(y) \\ &f(x) = g(xe^{j\pi}) - g(xe^{-j\pi}) \quad [|\text{Arg } y| < \pi] \end{aligned}$$

DEUXIEME PARTIE

PRINCIPE DE LA METHODE DE MESURE DES SATURATIONS EN EAU D'UN ECHANTILLON DE MILIEU POREUX

IV. L'EFFET DE PAROIS

IV.1 - Définition de l'effet de parois

IV.11) Calcul de la permittivité apparente

Le principe du montage réalisé expérimentalement en vue de déterminer la saturation en eau d'un échantillon de milieu poreux, est reproduit sur la figure 6. Le milieu poreux est disposé dans une cellule isolante (en verre par exemple) autour de laquelle sont appliquées deux électrodes de mesure. La figure 6 correspond au cas d'une cellule parallélépipédique, mais la suite montrera que celle-ci peut être de forme quelconque, cette forme intervenant uniquement par un facteur géométrique dans les équations.

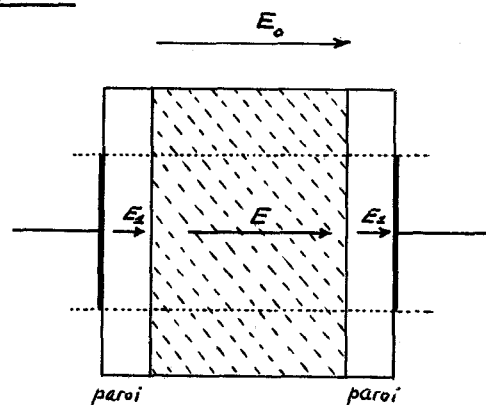


Fig. 6

Par raison de symétrie, et en négligeant les effets de bord, l'application d'un champ continu $\vec{E}_0$ n'intéresse que la tranche des deux milieux limitée par les électrodes. Lors de l'application de ce champ E_0 , la distribution des champs dans chacun des milieux obéit à la condition électrostatique de conservation du flux, soit $D_1 = D$, ou encore $\epsilon_1 \vec{E}_1 = \epsilon \vec{E} = \vec{E}_0$.

Dans le milieu poreux, sous l'influence du champ $\vec{E}$, des charges électriques vont venir se fixer sur les surfaces de séparation paroi-milieu poreux et la distribution finale correspondant à un courant nul sera $E = 0$, le champ $\vec{E}_1$ dans les parois restant égal à $\vec{E}_0 / \epsilon_1$. Le milieu poreux conducteur se comporte alors comme un court-circuit, et il est commode d'imaginer aux surfaces de séparation des deux milieux des électrodes infiniment minces, qui ne changeraient naturellement rien à la répartition des champs électriques. Cet artifice permet de comprendre que le schéma électrique équivalent au dispositif réalisé correspond à l'assemblage en série de deux condensateurs, un condensateur parfait de capacité K constitué par la paroi isolante seule, et un condensateur avec pertes constitué par le milieu poreux et des électrodes fictives disposées autour de celui-ci comme indiqué plus haut, et de capacité active C_0 .

Il faut admettre naturellement que cette décomposition en deux condensateurs en série, est valable également lorsqu'on applique un champ sinusoïdal. Le schéma électrique équivalent, compte tenu de la partie II, 123 et le schéma ① de la figure 7 correspondant à un condensateur parfait K en série avec un circuit RC rendant compte du milieu poreux. Nous allons voir que ce schéma est équivalent au schéma ② constitué uniquement par un condensateur avec perte de capacité active C_0 et de permittivité complexe "apparente" $\epsilon^* = \epsilon' - j\epsilon''$.

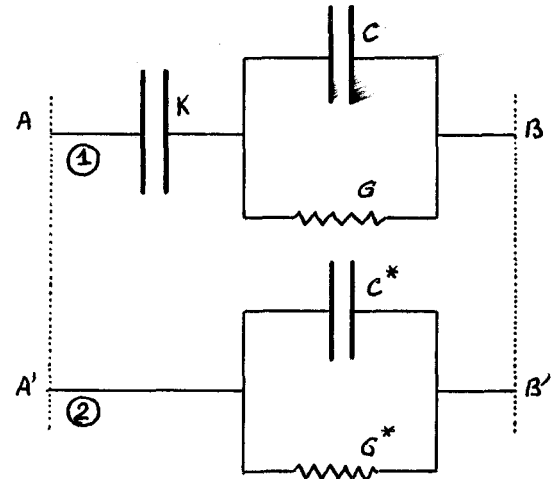


Fig. 7

Nous introduirons les notations suivantes résultant de la partie II et de ce qui précède :

C_0 capacité active du milieu poreux (c'est-à-dire des électrodes fictives supposées séparer les deux milieux) ;

$\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$ permittivité du milieu poreux ;

σ conductivité normalisée du milieu poreux, définie par les formules (II, 9) et (II, 9 bis) ;

$R = \frac{1}{G} = C_0 \omega \epsilon''$ et $C = C_0 \epsilon'$ composantes du dipôle parallèle équivalent au condensateur avec pertes défini autour du milieu poreux ;

K capacité des parois prises entre les électrodes.

L'admittance du circuit ① entre A et B est égale à :

$$Y_1 = \frac{j\omega K \left(\frac{1}{R} + j\omega C \right)}{j\omega K + \left(\frac{1}{R} + j\omega C \right)} = j\omega K \frac{1 + j\omega RC}{1 + j\omega R(C + K)}$$

L'admittance du circuit 2 est de même entre les mêmes limites :

$$Y^* = j\omega C_0 \epsilon^*$$

La permittivité apparente ϵ^* est donc définie par l'égalité de ces deux admittances :

$$j\omega C_0 \epsilon^* = j\omega K \frac{1 + j\omega RC}{1 + j\omega R(C + K)}$$

soit en posant $\tau = R(C + K)$:

$$\epsilon^* = \epsilon' - j\epsilon'' = \frac{K}{C_0} \frac{1 + j\omega RC}{1 + j\omega \tau} = \frac{K}{C_0(K + C)} \left[C + \frac{K}{1 + j\omega \tau} \right]$$

Il est commode d'introduire le rapport sans dimension $K/C_0 = \xi \epsilon_1$, ϵ_1 étant la constante diélectrique des parois et ξ un facteur géométrique qui rend compte de la forme de la cellule, le rapport de la capacité active K/ϵ_1 des parois à la capacité active C_0 du milieu poreux. Il vient alors :

$$\epsilon^* = \frac{\xi \epsilon_1}{\xi \epsilon_1 + \epsilon'} \left[\epsilon' + \frac{\xi \epsilon_1}{1 + j\omega \tau} \right] \quad (IV, 1)$$

avec

$$\tau = \frac{\xi \epsilon_1 + \epsilon'}{\sigma} \quad (IV, 2)$$

L'équation (IV,1) est tout à fait analogue à l'équation (III,3), et montre que le phénomène est analogue à un phénomène de relaxation simple avec un temps de relaxation τ défini par l'équation (IV,2). On en déduit les deux composantes ε'^* et ε''^* de la permittivité apparente ε^* :

$$\begin{cases} \varepsilon'^* = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \left[\varepsilon' + \varepsilon_1 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \right] \\ \varepsilon''^* = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \varepsilon_1 \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \end{cases} \quad (IV,3)$$

Nous le verrons, les grandeurs mesurables sont évidemment la capacité C^* et la conductance G^* du circuit (2) équivalent, définies donc par les équations (IV,4) suivantes :

$$\begin{cases} C^* = C_0 \varepsilon'^* = \frac{K}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \left[\varepsilon' + \varepsilon_1 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \right] \\ G^*/\omega = C_0 \varepsilon''^* = \frac{K}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \varepsilon_1 \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \end{cases} \quad (IV,4)$$

ou l'équation (IV,5) :

$$C_0 \varepsilon^* = C^* + j \frac{G^*}{\omega} = \frac{K}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \left[\varepsilon' + \frac{\varepsilon_1}{1 + j \omega \tau} \right] \quad (IV,5)$$

Dans la suite, nous adopterons parfois une forme plus symétrique, en introduisant les grandeurs $K-C^*$ et G^*/ω . En effet :

$$\begin{cases} K - C^* = \frac{K \varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \frac{\omega^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} \\ G^*/\omega = \frac{K \varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon'} \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \end{cases} \quad (IV,6)$$

IV.12 - Analyse des composants de la permittivité complexe apparente - Influence de la fréquence

Dans les formules (IV,3) ou (IV,6), K , ε_1 et τ sont des constantes ne dépendant que de la nature de la paroi et des propriétés géométriques de la cellule réalisée. Pour un diélectrique donné, ε' et σ qui sont les seuls paramètres intervenant dans ces équations, peuvent ne pas être des constantes, ce sera le cas des massifs de milieu poreux, mais sont cependant bien définis en fonction de la fréquence par des courbes $\varepsilon' = \Phi(\omega)$, $\sigma = \Psi(\omega)$. Le spectre en fréquence, traduit par les fonctions précédentes caractérise donc un diélectrique donné, au même titre que les fonction $\Psi(\omega)$ et $\Phi(\omega)$.

Pour comprendre comment ces spectres "apparents" sont déformés à partir des spectres réels $\Phi(\omega)$ et $\Psi(\omega)$, il est utile de considérer au préalable le cas simple d'un diélectrique ne présentant aucun phénomène de polarisation, pour lequel donc $\epsilon' = \Phi(\omega) = C^k$ et $\sigma = \epsilon''\omega = \Psi(\omega) = C^k$.

La symétrie résultant du changement de ω en $1/\omega$ incite à étudier ces fonctions en fonction de $\log \omega$, (cf fig. 8).

- La fonction $K-C^*$ est une fonction continuellement croissante depuis

0 jusqu'à $\frac{K\epsilon_1}{\epsilon_1 + \epsilon'}$, correspondant à la décroissance de C^* depuis K ($\omega = 0$) jusqu'à une valeur limite C_∞ (pour $\omega \rightarrow \infty$).

- La fonction G^*/ω passe par un maximum pour $\omega = 1/\tau$ où elle prend

la valeur $\frac{1}{2} \frac{K\epsilon_1}{\epsilon_1 + \epsilon'}$, valeur prise également par $K-C^*$; elle est symétrique de part et d'autre de cette valeur et tend vers 0 pour ω tendant vers 0 et vers l'infini.

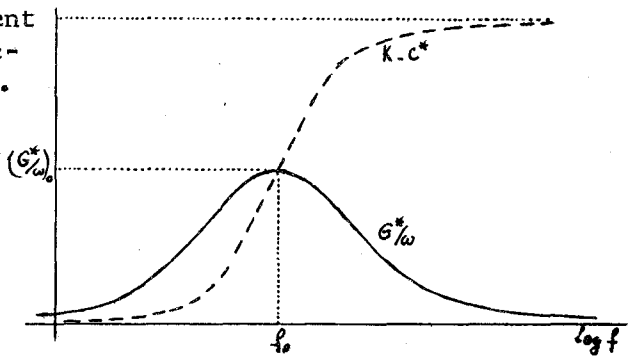


Fig. 8

- Ces deux courbes sont donc parfaitement définies par :

. leur position en fréquence, c'est-à-dire la fréquence f_0 du maximum de G^*/ω définie par $f_0 = \frac{\omega_0}{2\pi} = \frac{1}{2\pi\tau} = \frac{1}{2\pi} \frac{\sigma}{\epsilon_1 + \epsilon'}$

. leur amplitude, c'est-à-dire l'amplitude maxima de G^*/ω soit $(G^*/\omega)_0 = \frac{1}{2} \frac{K\epsilon_1}{\epsilon_1 + \epsilon'}$.

Ceci permet en particulier de suivre aisément l'influence de l'un quelconque des paramètres, soit de la cellule, soit du diélectrique sur ce phénomène de paroi. On note en particulier qu'une augmentation de la conductivité σ du diélectrique translate le phénomène proportionnellement, sans l'altérer, et qu'une augmentation de ϵ' agit à la fois sur la position en fréquence (diminution de f_0) et sur l'amplitude suivant une valeur tempérée par le terme ϵ_1 .

IV.13 - Autres propriétés de ces composantes de la permittivité apparente

IV.131) Diagramme Cole-Cole

Dans ce cas également il a lieu de rechercher une relation entre ϵ' et ϵ'' , ou entre C^* et G^*/ω , indépendante de la fréquence.

Les formules (IV,1) et (IV,5), lorsqu'elles sont écrites sous la forme :

$$\left(\varepsilon^* - \frac{\xi \varepsilon_1 \varepsilon'}{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'} \right) (1 + j\omega\tau) = \left(\xi \varepsilon_1 - \frac{\xi \varepsilon_1 \varepsilon'}{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'} \right)$$

$$\left(C^* + j \frac{G^*}{\omega} - K \frac{\varepsilon'}{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'} \right) (1 + j\omega\tau) = K - K \frac{\varepsilon'}{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'}$$

montrent clairement que comme dans le cas général d'un temps de relaxation unique, ces relations se traduisent par des diagrammes circulaires (diagrammes de Cole-Cole).

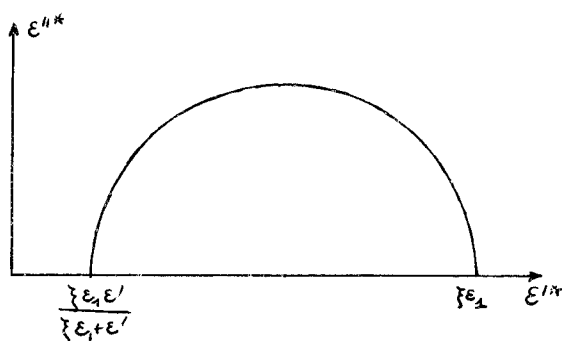


Fig. 9

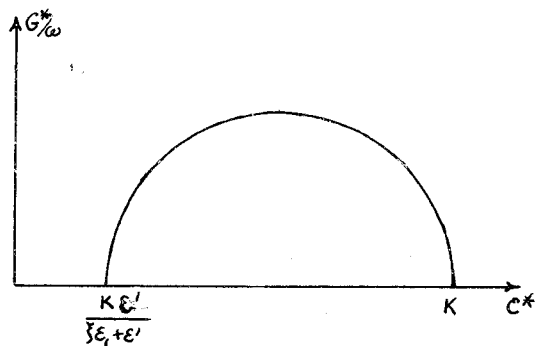


Fig. 10

IV.132) Formules inverses - Propriétés d'inversion

L'élimination de la fréquence dans les équations (IV,6), en tenant compte de (IV,2) donne les relations entre $K-C^*$ et G^*/ω d'une part et ε' et ε'' d'autre part :

$$\omega\tau = \frac{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'}{\varepsilon''}$$

$$\begin{cases} K - C^* = K \xi \varepsilon_1 \frac{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'}{(\xi \varepsilon_1 + \varepsilon')^2 + \varepsilon''^2} \\ G^*/\omega = K \xi \varepsilon_1 \frac{\varepsilon''}{(\xi \varepsilon_1 + \varepsilon')^2 + \varepsilon''^2} \end{cases} \quad (IV,7)$$

on en déduit les relations suivantes :

$$\omega\tau = \frac{K - C^*}{G^*/\omega} = \frac{\xi \varepsilon_1 + \varepsilon'}{\varepsilon''}$$

$$(K - C^*)^2 + (G^*/\omega)^2 = K \xi \varepsilon_1 \frac{1}{(\xi \varepsilon_1 + \varepsilon')^2 + \varepsilon''^2}$$

Entre le point $P^*(K - C^*, G^*/\omega)$ point représentatif des grandeurs apparentes, et le point $\Pi(\xi \varepsilon_1 + \varepsilon', \varepsilon'')$ point représentatif des composantes réelles du diélectrique, il existe les relations géométriques suivantes, l'origine étant prise au point $(K, 0)$:

$$\left\{ \begin{array}{l} \overrightarrow{OP^*} \cdot \overrightarrow{OP} = 0 \\ \overrightarrow{OP^*} \cdot \overrightarrow{OP} = K \xi \epsilon_4 = C^* \end{array} \right.$$

C'est-à-dire que l'on passe du point P* au point P par une inversion de centre O (K, 0) et de puissance $K \xi \epsilon_4$.

Il en résulte directement les formules inverses donnant ϵ' et ϵ'' en fonction des grandeurs apparentes K-C* et G^*/ω .

$$\left\{ \begin{array}{l} \xi \epsilon_4 + \epsilon' = K \xi \epsilon_4 \frac{K - C^*}{(K - C^*)^2 + (G^*/\omega)^2} \\ \epsilon'' = K \xi \epsilon_4 \frac{G^*/\omega}{(K - C^*)^2 + (G^*/\omega)^2} \end{array} \right. \quad (IV, 8)$$

Ces formules (IV, 8) permettent donc, à partir de la mesure des composantes apparentes résultant de l'introduction d'une paroi isolante de déterminer les deux composantes réelles ϵ' et ϵ'' du diélectrique présent à l'intérieur de ces parois.

IV.2 - Vérification expérimentale de ce phénomène de parois

En vue de vérifier les données simples concernant ce phénomène de parois, nous avons réalisé une cellule cylindrique en verre, de caractéristiques bien définies, et nous avons tracé les spectres des grandeurs apparentes C* et G^*/ω en fonction de la fréquence, pour de l'eau qui dans la gamme de fréquence intéressée ne présente aucun phénomène de polarisation, et présente donc une constante diélectrique réelle ϵ' et une conductivité σ constantes. Les points expérimentaux sont tracés sur la figure 12, où sont également reproduites les courbes théoriques correspondantes déduites des équations (IV, 4), à partir des paramètres de cellule calculés théoriquement, soit $K = 21,25$ pF, $\xi \epsilon_4 = 50,5$.

Ces deux courbes montrent une excellente concordance en G^*/ω , sauf aux basses fréquences où la dérive systématique est due à la faible conductivité des parois qui a été négligée dans les équations (IV, 4). La courbe C* théorique montre également une excellente concordance avec les valeurs expérimentales, à condition de décaler celle-ci de 4 pF environs. Ceci est dû au fait que les valeurs expérimentales donnent en plus de la capacité C* une certaine capacité parasite entre l'eau présente dans la cellule, et les fils de jonction, et la masse de l'appareil de mesure. Le diagramme Cole-Cole correspondant à ce phénomène reproduit sur la figure 13 indique bien le demi-cercle attendu.

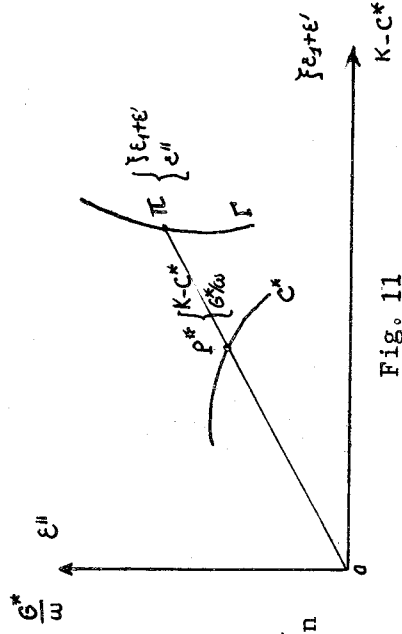


Fig. 11

phénomène de paroi dans le cas de l'eau pure (résistivité $\rho_w = 50 \Omega \cdot m$)

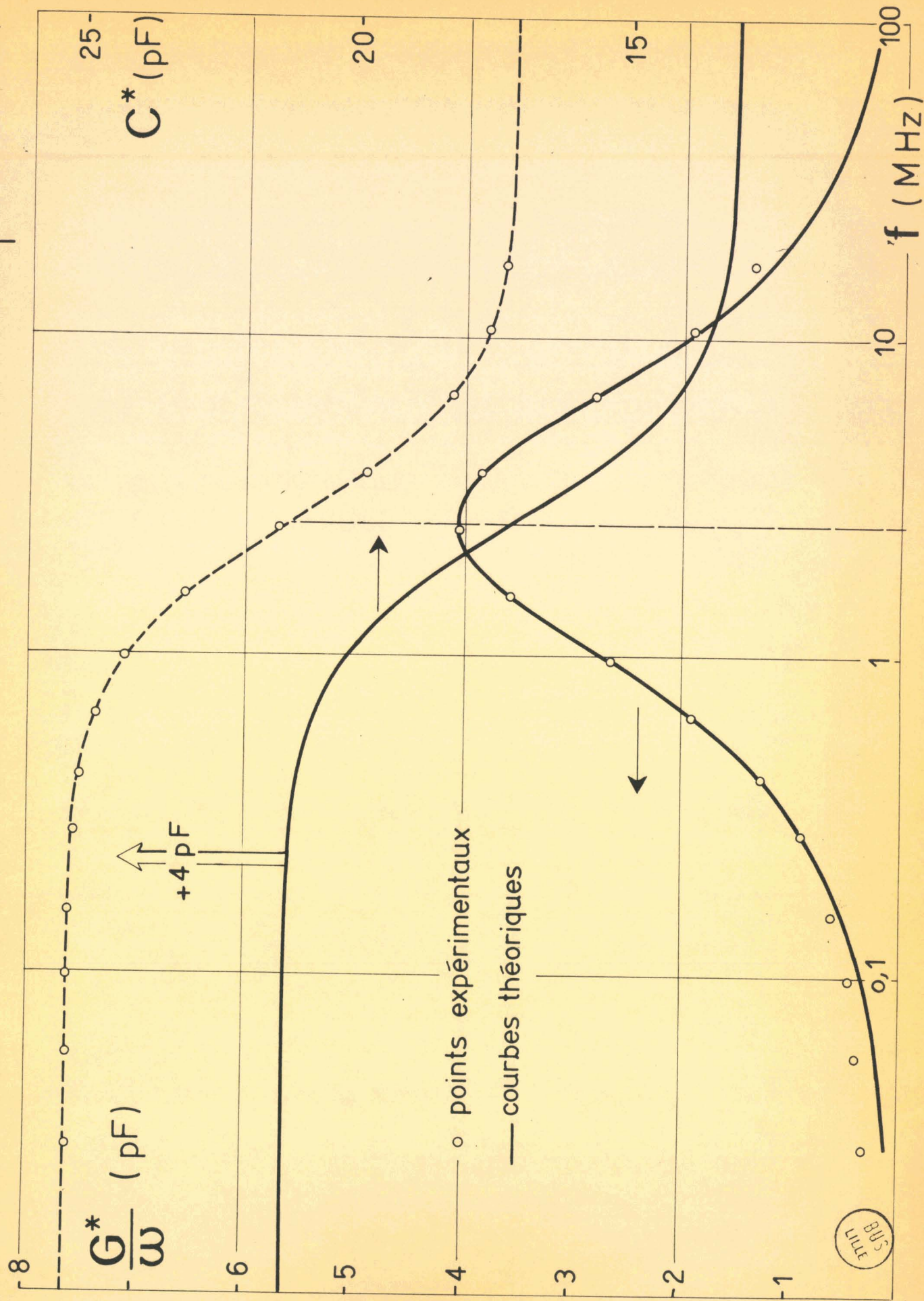


fig. 13

diagramme cole - cole correspondant au phénomène de paroi ,
cas de l'eau pure

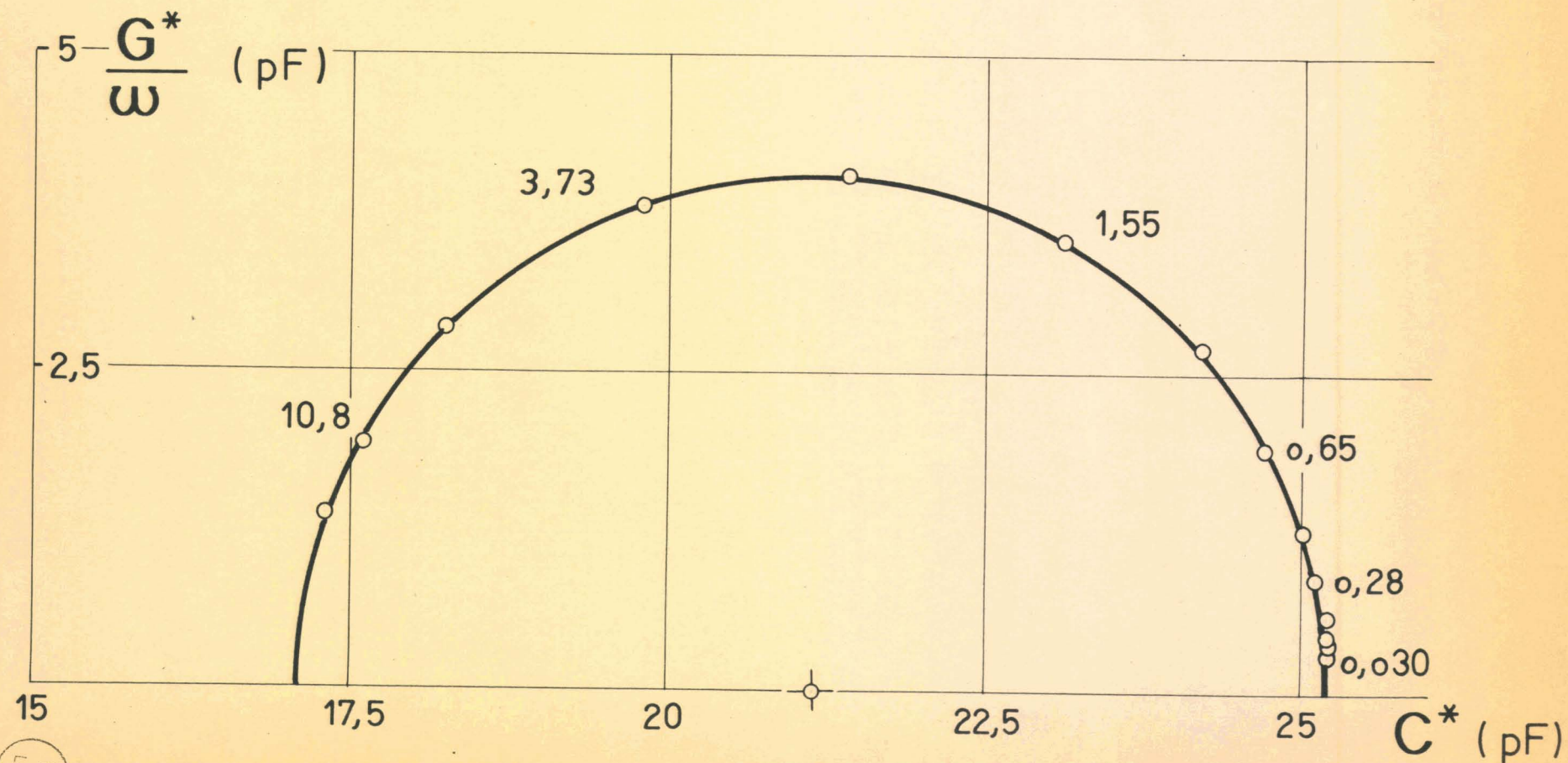
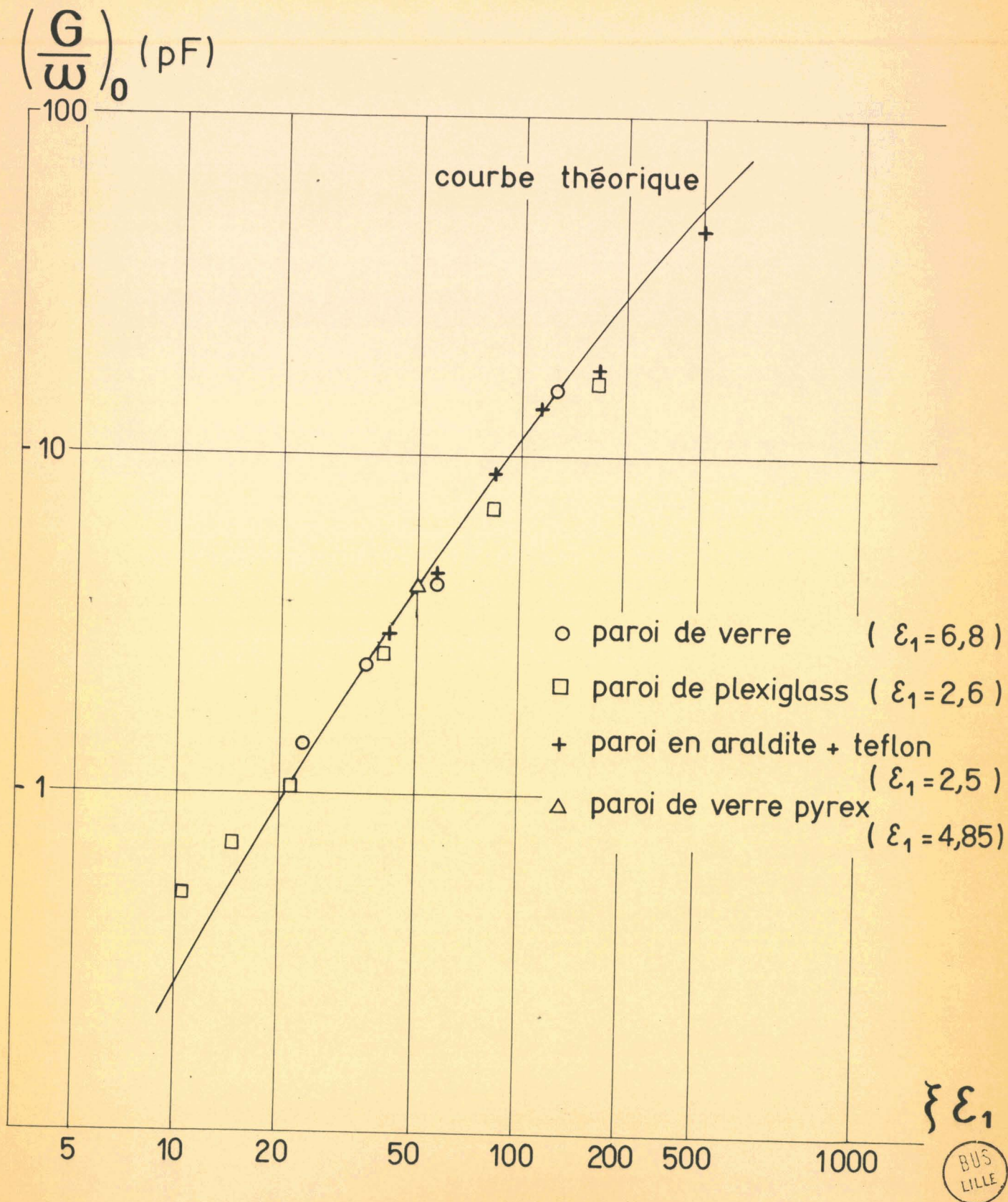


fig. 14

influence du paramètre $\xi \epsilon_1$ sur l'amplitude maximum du phénomène de paroi



A titre de vérification supplémentaire, nous avons étudié l'influence des deux paramètres principaux : le tableau I reproduit ci-dessous montre la constance du phénomène de parois, et son déplacement en fréquence en fonction de la conductivité de l'eau utilisée. La figure 14 montre au contraire l'évolution de l'amplitude de ce phénomène de parois lorsque l'on fait varier le rapport ϵ_2 . Ces deux évolutions sont parfaitement en accord avec les formules (IV,4) précédentes.

Tableau I

ρ_w ($\Omega \cdot m$)	σ (c.g.s.)	f_0 théorique (cycles/sec.)	f'_0 expérimentale (cycles/s.)	f'_0/f_0	$(G^*/\omega)_0$ (pF)
1000	$9 \cdot 10^6$	$0,131 \cdot 10^6$	$0,134 \cdot 10^6$	1,023	4,10
500	$1,8 \cdot 10^7$	$0,262 \cdot 10^6$	$0,27 \cdot 10^6$	1,03	4,20
250	$3,6 \cdot 10^7$	$0,523 \cdot 10^6$	$0,52 \cdot 10^6$	0,995	4,08
100	$9 \cdot 10^7$	$1,31 \cdot 10^6$	$1,30 \cdot 10^6$	0,992	4,05
50	$1,8 \cdot 10^8$	$2,62 \cdot 10^6$	$2,65 \cdot 10^6$	1,01	4,05
25	$3,6 \cdot 10^8$	$5,23 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^6$	0,955	4,05
10	$9 \cdot 10^8$	$13,1 \cdot 10^6$	$13,5 \cdot 10^6$	1,03	4,10

V. COMPORTEMENT ELECTRIQUE DU MILIEU POREUX - INFLUENCE DE LA SATURATION

V.1 - Généralités

Le phénomène de parois lorsqu'on remplace un diélectrique simple tel que de l'eau par un milieu poreux sera qualitativement analogue au précédent, celui-ci intervenant également par sa constante diélectrique ϵ' et sa conductivité σ (ou ses pertes diélectriques ϵ''). Mais ce phénomène sera plus compliqué, les deux grandeurs précédentes n'étant plus constantes, en fonction de ω mais devenant des fonctions $\Phi(\omega)$ et $\Psi(\omega)$.

Etant donné la conductivité pratiquement nulle du sable, du gaz ou de l'huile par rapport à l'eau, et le contraste des constantes diélectriques 1 pour le gaz, 2 pour l'huile et 3 pour le sable par rapport à celle de l'eau ($\epsilon=81$), on peut assimiler le milieu poreux à un diélectrique hétérogène contenant deux phases, l'eau et le reste, ensemble sable + gaz + huile. A ce titre toutes les considérations exposées au § III de la première partie sont applicables. Le milieu poreux sera le siège, outre d'un phénomène de conductivité ordinaire par déplacement de porteurs de charges, d'un mécanisme de polarisation interfaciale donnant naissance à un phénomène Maxwell-Wagner.

En assimilant ce milieu soit à une dispersion de particules d'eau dans une masse non conductrice (cas des faibles saturations) soit une dispersion des particules isolantes dans de l'eau (fortes saturations), on conçoit que la complexité de cette dispersion donnera très vraisemblablement un effet Maxwell-Wagner complexe présentant non pas un temps de relaxation unique, mais une fonction de distribution des temps de relaxation, dépendant de la fonction de distribution des formes et des orientations de ces particules.

Nous avons cherché à vérifier ce fait (réf. 25,26) et à rattacher nos résultats expérimentaux avec les différentes théories proposées (réf.12,18,19, 20,21,22) principalement les théories plus générales de Sillars (réf.22) et de Fricke (réf.20,21) qui étudient l'effet Maxwell-Wagner, résultant d'une dispersion de particules dans un milieu de nature différente, en posant les deux hypothèses suivantes :

- Les particules dispersées sont en faible quantité p , de façon à négliger les interactions mutuelles,
- Ces particules sont des ellipsoïdes de révolution tous identiques, et également orientés par rapport au champ.

Avec de telles hypothèses, ces deux auteurs arrivent aux conclusions suivantes :

- Le phénomène Maxwell-Wagner est simple avec un temps de relaxation unique τ , c'est-à-dire que l'on a pour ϵ' et ϵ'' les équations (III,4).

$$\begin{cases} \epsilon' = \epsilon'_\infty \left[1 + k \frac{1}{1+\omega^2\tau^2} \right] \\ \epsilon'' = \epsilon'_\infty k \frac{\omega\tau}{1+\omega^2\tau^2} \end{cases}$$

- Les paramètres ϵ'_∞ , k et τ régissant ce phénomène peuvent être reliés aux paramètres électriques des deux phases et à la forme des particules dispersées par l'intermédiaire d'un paramètre F lié au rapport des axes des ellipsoïdes.

$$\epsilon'_\infty = \epsilon'_s \frac{F\epsilon'_s + \epsilon'_w + pF(\epsilon'_w - \epsilon'_s)}{F\epsilon'_s + \epsilon'_w - p(\epsilon'_w - \epsilon'_s)}$$

l'indice s se rapportant à la phase continue

$$\tau = \frac{F\epsilon'_s + \epsilon'_w - p(\epsilon'_w - \epsilon'_s)}{\sigma_w(1-p)} \quad (V,1)$$

l'indice w à la phase dispersée (conductrice)

$$k = \frac{(1-Fp)\epsilon'_s}{(1-p)\epsilon'_\infty} - 1 = \frac{(F+1)^2 p \epsilon'_w}{(1-p)[F\epsilon'_s + \epsilon'_w + pF(\epsilon'_w - \epsilon'_s)]}$$

Compte tenu de la première hypothèse (p petit devant 1), Sillars simplifie ces équations sous la forme (V,2) (développement limité au 1er ordre).

$$\begin{aligned}\varepsilon'_\omega &= \varepsilon'_s \left[1 + (F+1)p \frac{\varepsilon'_w - \varepsilon'_s}{F\varepsilon'_s + \varepsilon'_w} \right] \\ \tau &= \frac{F\varepsilon'_s + \varepsilon'_w}{\sigma_w} \left[1 + (F+1)p \frac{\varepsilon'_s}{F\varepsilon'_s + \varepsilon'_w} \right] \\ k &= \frac{(F+1)^2 p \varepsilon'_s}{F\varepsilon'_s + \varepsilon'_w} \left[1 + p \frac{2F\varepsilon'_s - (F-1)\varepsilon'_w}{F\varepsilon'_s + \varepsilon'_w} \right]\end{aligned}\quad (V,2)$$

Lorsque toutes les particules ne sont pas toutes identiques, ou également orientées, cette théorie se généralise sous la forme d'une fonction de distribution des temps de relaxation, définis comme au § III de la deuxième partie, à chaque valeur de τ correspondant une valeur du paramètre de forme F définie par la deuxième formule (V,1) ou (V,2).

V.2 - Résultats expérimentaux

V.21) Mise en évidence du phénomène Maxwell-Wagner à l'aide de l'effet de parois

Le tracé du spectre apparent ($K-C^*$, G^*/ω) reproduisant l'effet de parois pour des massifs de milieux poreux de saturations différentes (fig. 15 et 16) confirme bien les présomptions exposées au § V.1, c'est-à-dire que ce spectre n'est plus le phénomène simple comme dans le cas de l'eau mais présente une distorsion, vers les hautes fréquences, distorsion particulièrement visible sur le spectre en G^* qui laisse deviner un 2ème phénomène.

De même, la figure 17 concernant le diagramme Cole-Cole montre cette déformation du demi-cercle vers les hautes fréquences consécutive au même processus. Néanmoins, nous avons parlé volontairement de distorsion, car le phénomène au niveau des parois reste prépondérant.

La figure 18 montre pour un massif particulier le calcul de la constante diélectrique ε' , les pertes ε'' et la conductivité σ propres au milieu poreux, calculés par les formules (IV,8), donc après l'élimination du phénomène de parois. On observe bien qualitativement le phénomène Maxwell-Wagner dû à la polarisation interfaciale créée au sein de celui-ci. Ce phénomène Maxwell-Wagner est également apparent sur des spectres directs que nous avons effectués dans une cellule sans paroi, et qui sont reproduits à la figure 20.

fig. 15

le phénomène de parois dans le cas d'un massif
de milieu poreux ($\rho_w = 50 \Omega \cdot m$)
saturations $S_w = 0,25$ et 1

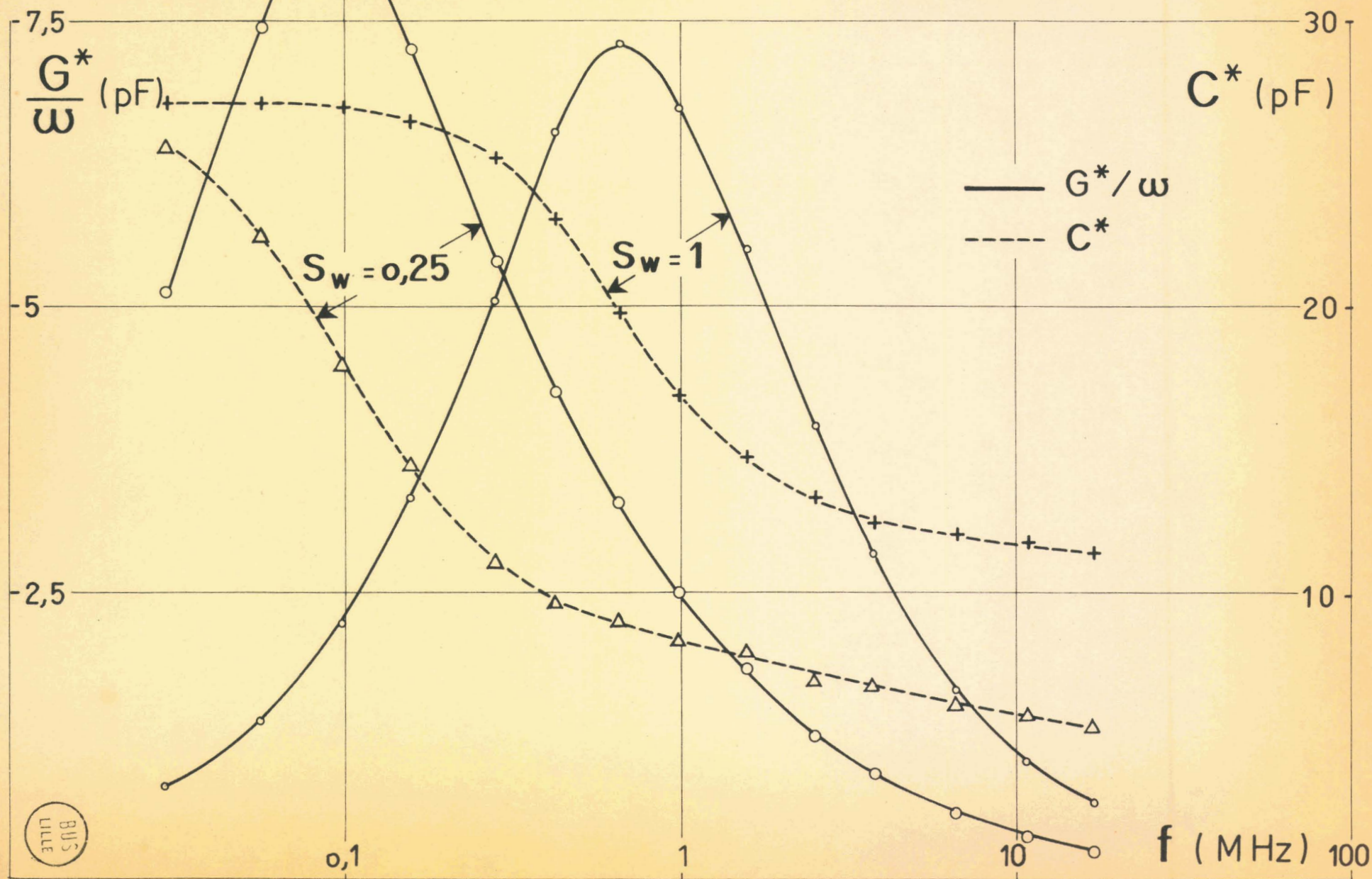


fig. 16

conductance apparente G^* pour un massif de milieu poreux
 ($\rho = 50 \Omega.m$) saturations $S_w = 0,25$ et 1

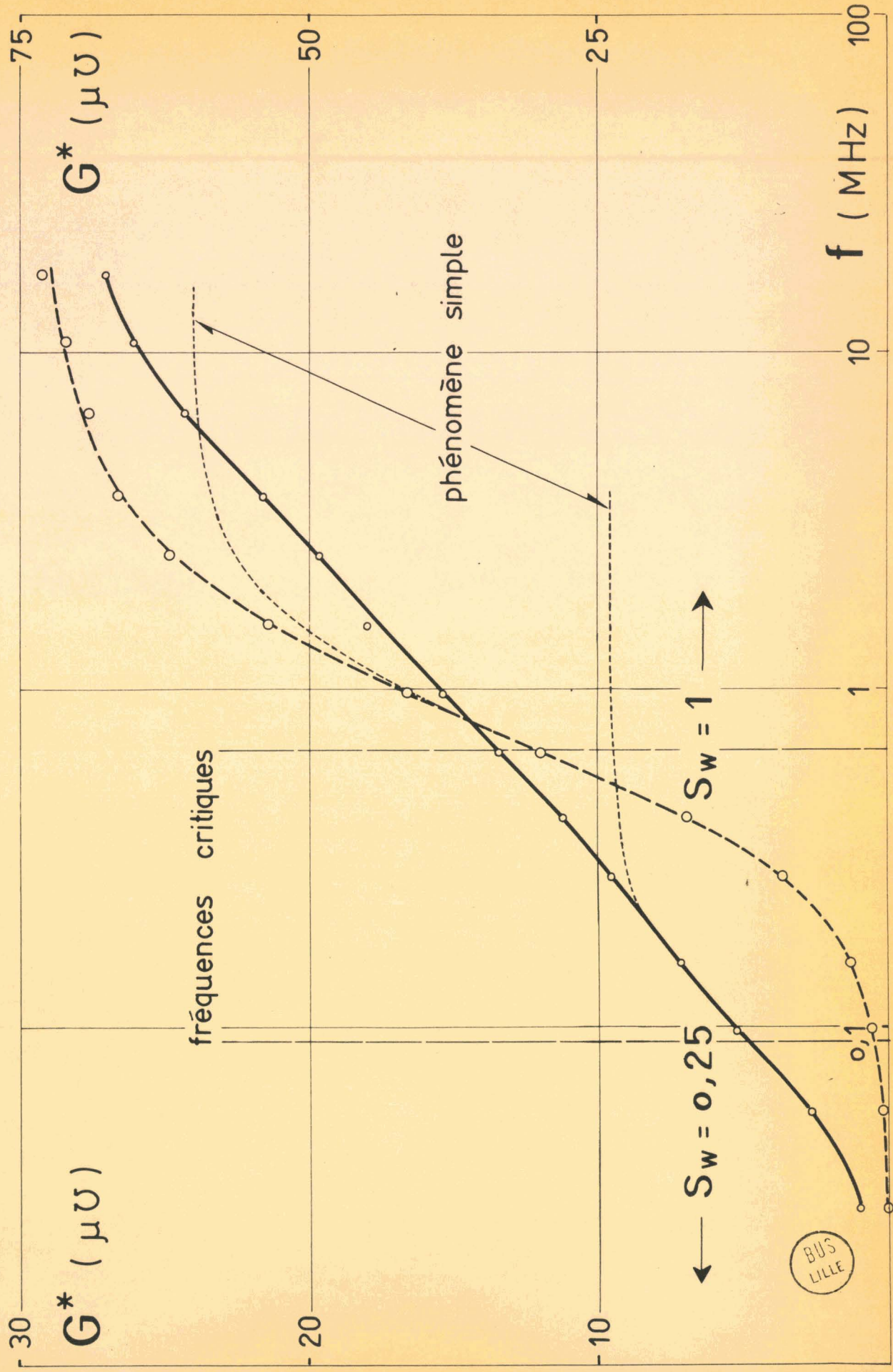


diagramme cole-cole correspondant au phénomène de paroi ;
cas d'un milieu poreux ($S_w = 0,25$ et 1)

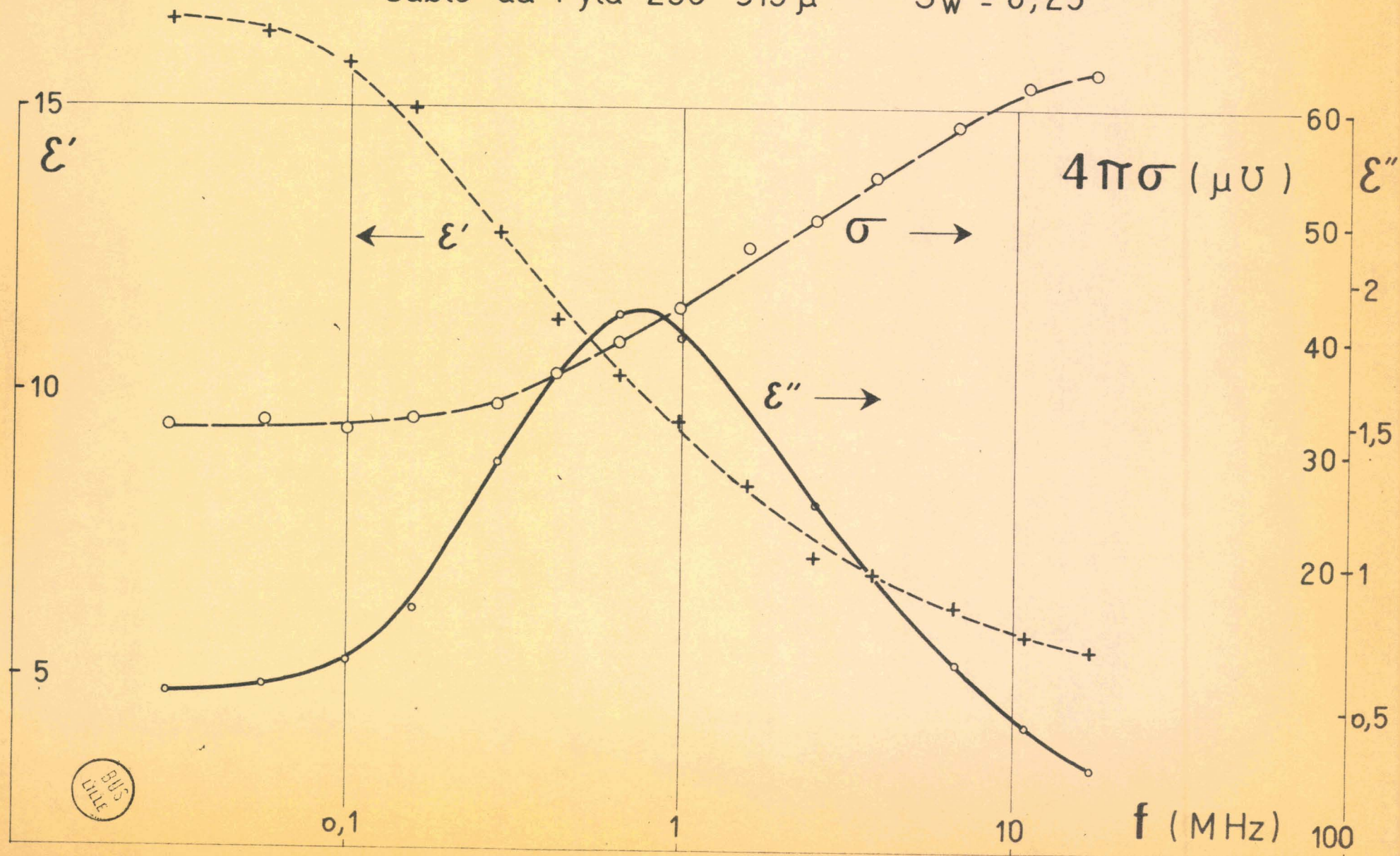


fig. 18

phénomène Maxwell Wagner propre au milieu poreux
calculé à partir de l'effet de parois

sable du Pyla 250 - 315 μ

$S_w = 0,25$



V.22) Principales propriétés de ce phénomène Maxwell-Wagner

L'étude de ce phénomène Maxwell-Wagner a montré les résultats suivants :

1) Le phénomène n'est pas un phénomène du type simple, avec un seul temps de relaxation τ . Ceci est visible sur le diagramme Cole-Cole correspondant à l'expérience de la figure 18 qui ne reflète pas un demi-cercle (fig.19). L'origine de ce fait tient naturellement dans la présence d'une fonction de distribution des temps de relaxation, définie par les équations (III,6).

Nous avons essayé de calculer cette fonction de distribution $G(\tau)$ par les formules (III,8), mais les résultats n'ont pas été exploitables par suite de l'impossibilité de trouver le prolongement analytique des fonctions $H(x)$ et $J(x)$ servant à ce calcul, à partir des points expérimentaux. Cette difficulté est la difficulté générale à tous ces problèmes, aussi les auteurs (réf. 16,17,23,24) se contentent-ils généralement de poser a priori une forme analytique pour ces fonctions $J(x)$ et $H(x)$ inspirées souvent par la forme du diagramme Cole-Cole, et de vérifier cette hypothèse. Nous avons préféré à cette façon de procéder la forme pour $H(x)$ correspondant à une fraction rationnelle $P(x)/Q(x)$, les coefficients des polynômes $P(x)$ et $Q(x)$ étant déterminés à partir des points expérimentaux. Les résultats ont montré pour la fonction $G(\tau)$ une instabilité due d'une part à la connaissance des valeurs expérimentales dans un trop petit domaine, ne permettant pas de prolonger suffisamment la fonction, d'autre part à une trop grande dispersion de ces points expérimentaux!*

2) Le tracé des spectres de ϵ' et ϵ'' pour différentes saturations variant entre 0 et 100 %, reproduits sur la figure 20, montre que ce phénomène Maxwell-Wagner passe par un maximum pour une saturation intermédiaire comprise entre 50 et 75 %, pour devenir à peine visible à 100 %. Par contre, la fréquence moyenne de ce phénomène reste sensiblement constante. Ce résultat est important et peut être interprété par la théorie de Sillars : la deuxième formule (V,2), compte tenu de la faible valeur de ϵ'_s par rapport à l' ϵ'_w de l'eau peut se réduire à :

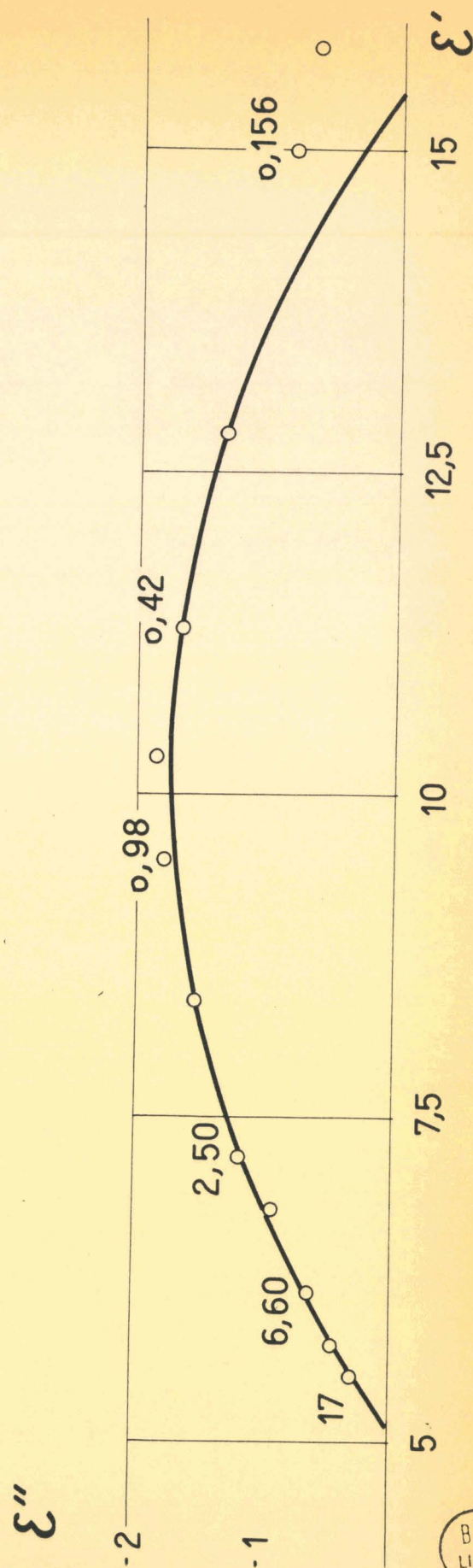
$$\tau = \frac{F\epsilon'_s + \epsilon'_w}{\sigma_w} \quad (V,3)$$

formule qui montre que τ est sensiblement indépendant de la teneur en eau $p = \phi \sigma_w$, et ne dépend que du facteur F de forme des particules. La fréquence f_c du maximum de ϵ'' correspondant à la valeur moyenne de τ donc

1**) Des travaux effectués par MM. MARTY et DESCARPENTERIES jusqu'à 36.000 MHz ont permis de prolonger ce spectre et de montrer qu'il n'existe pas d'autre phénomène en dehors du phénomène d'absorption dipolaire de l'eau vers 10.000 MHz. Ceci permettra donc de préciser le prolongement de la fonction $H(x)$ vers les hautes fréquences et de reprendre ce point de la détermination de $G(\tau)$ avec plus de succès.

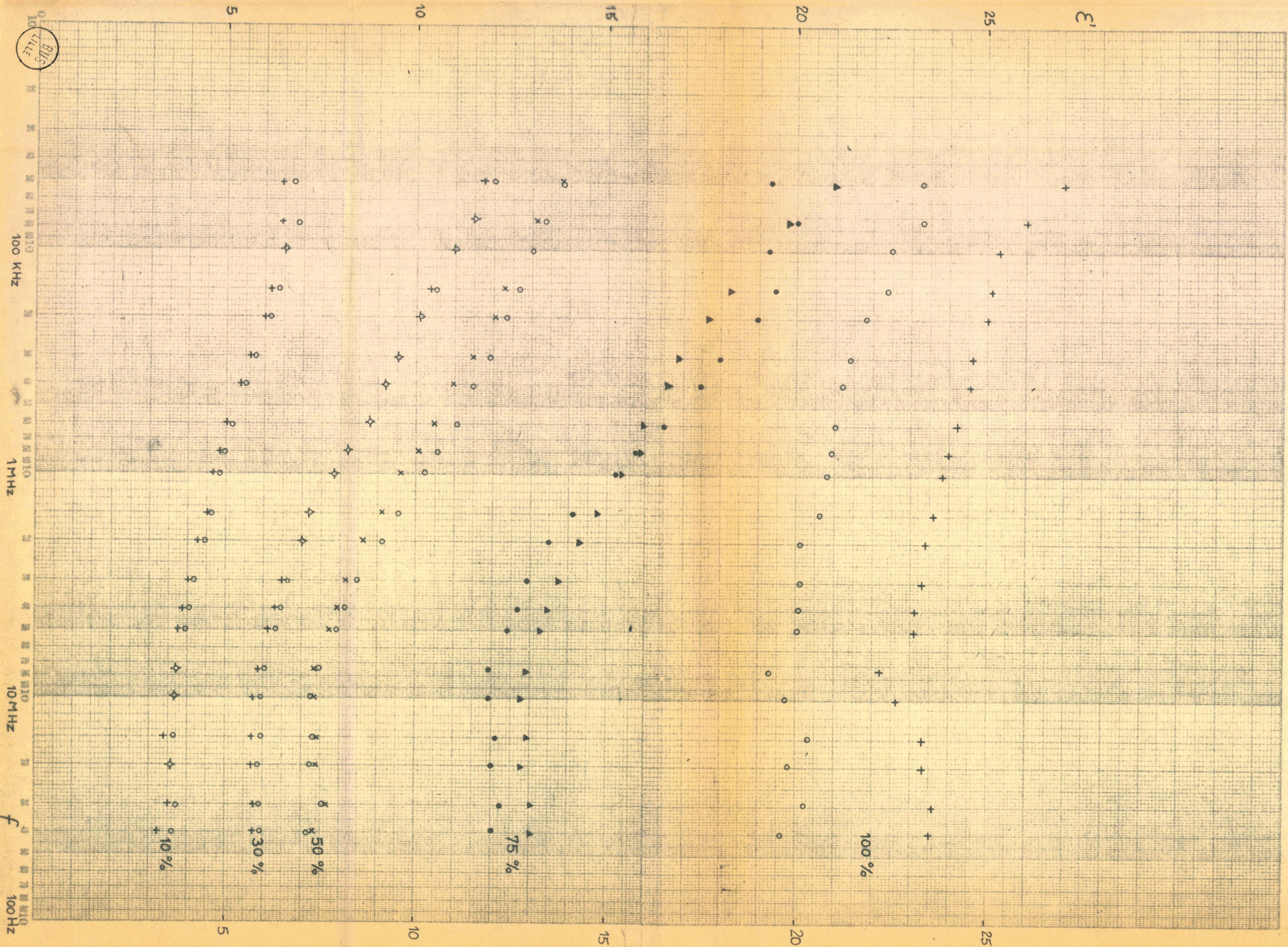
fig. 19

diagramme cole - cole correspondant au phénomène
Maxwell Wagner propre au milieu poreux
sable du Pyla 250 - 315 μ $S_w = 0,25$



variations de ϵ' en fonction de la fréquence pour différentes valeurs
de la saturation en eau - sable du Pyla 250 - 315 μ -

fig. 20



ε_{∞}

fig. 21

variation de l' ε'_{∞} du milieu poreux
en fonction de la saturation en eau

20

15

10

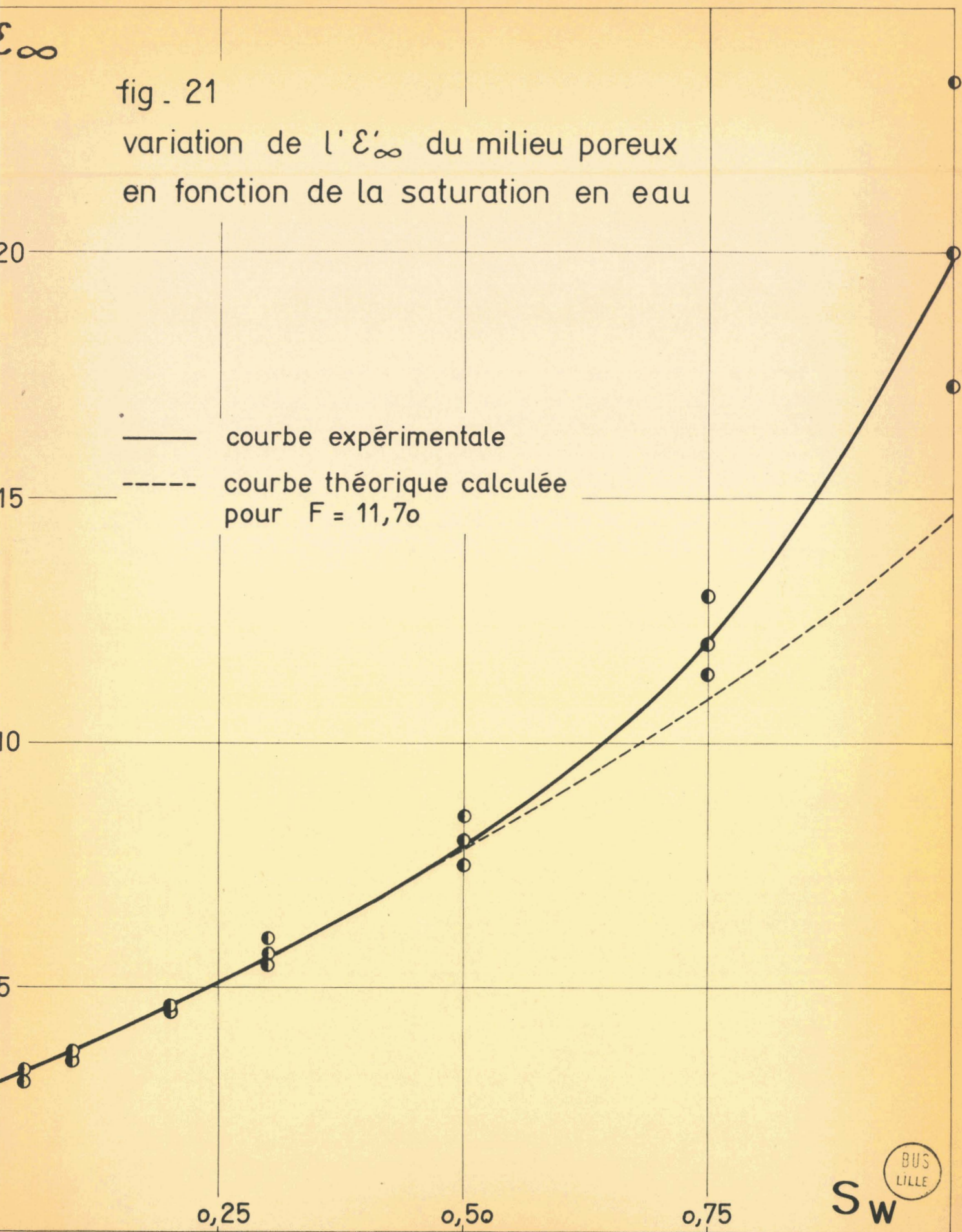
5

— courbe expérimentale
- - - courbe théorique calculée
pour $F = 11,70$

0,25

0,50

0,75

 S_w BUS
LILLE

de F , montre que ce facteur de forme des particules, en assimilant les particules d'eau à des ellipsoïdes, est sensiblement constant et indépendant de la saturation. Cette valeur moyenne de F déterminée à partir de f_c est de l'ordre de 10 correspondant à des particules très allongées. On peut donc supposer que dès les faibles saturations l'eau se trouve sous forme de particules allongées autour des grains de sable, et donc même vraisemblablement sous forme continue, et que sa forme ne se modifie pas profondément au cours de la saturation de l'échantillon (ce résultat peut être rapproché des expériences de cohérence effectuées par M. le Professeur GABILLARD et MM. DESBRANDES et MORINEAU (réf. 27) sur ces mêmes massifs de sable, qui tendaient à prouver que l'eau se trouve très rapidement sous forme continue. Ce résultat est également corroboré par le fait que dès les faibles saturations, il existe une conductivité continue non négligeable).

3) A fréquence fixe, l'évolution des grandeurs ϵ' et ϵ'' en fonction de la saturation en eau est difficile à préciser exactement par suite notamment de la difficulté de réaliser des saturations connues homogènes, et de remplir les cellules d'une façon reproductible. La grandeur la plus intéressante à tracer est ϵ'_∞ (fig. 21). Cette courbe montre une concavité positive, avec accroissement rapide vers les fortes saturations. Elle est en assez bon accord avec les théories de Sillars et Fricke, et la première formule (V,1) sauf aux très fortes saturations où cette formule cesse d'être valable. La courbe théorique de la formule (V,1) cadre assez bien avec les points expérimentaux à condition de prendre un facteur de forme F égal à 11,7 en bon accord avec la valeur déterminée par la considération du temps de relaxation moyen.

Nous voyons donc quelles théories de Sillars et de Fricke, bien que s'appliquant à un milieu idéal relativement éloigné des milieux poreux envisagés, dans lesquels en outre la teneur en eau peut atteindre une valeur égale à 0 soit de l'ordre de 0,3 à 0,4, rendent compte assez bien qualitativement de l'allure des phénomènes, et peuvent même reproduire quantitativement certains résultats.

V.23) Influence de la saturation déterminée à partir de l'effet de parois

L'utilisation de l'effet de parois tel que nous l'avons défini à la partie IV.1, nous a permis en fait de préciser d'une façon plus nette l'influence de la saturation sur les composantes ϵ' et ϵ'' du milieu poreux, à fréquence fixe. Les résultats sont d'autant plus valables que compte tenu du §2 de la partie précédente, on se trouve au même stade du phénomène Maxwell-Wagner quelle que soit la saturation.

- La figure 22 montre comment varient la capacité C^* et la conductivité G^*/ω apparentes en fonction de la saturation en eau de l'échantillon de milieu poreux. L'analogie formelle de ces deux courbes avec les spectres en fréquences, nous a conduit à envisager un diagramme Cole-Cole dans lequel la variable curviligne serait la saturation au lieu de la fréquence.

- La figure 23 montre ce résultat particulièrement simple, à savoir que la courbe traduisant la dépendance entre C^* (et donc $K-C^*$) et G^*/ω est un arc de cercle passant par le point $(K, 0)$. Compte tenu de la propriété d'inversion liant le point $P^*(K-C^*, G^*/\omega)$ et le point $\pi (\xi \varepsilon_s + \varepsilon', \varepsilon'')$, ceci veut dire que le point π décrit une droite. (fig. 24).

Autrement dit ε' et ε'' sont proportionnels. Etant donné la condition à la limite ($s_w = 0$)

$$\begin{aligned} \varepsilon' &= \varepsilon_s \text{ constante diélectrique du} \\ &\text{massif sans eau,} \\ \varepsilon'' &= 0 \end{aligned}$$

on peut écrire :

$$\varepsilon' - \varepsilon_s = \mu \varepsilon'' \quad (V, 4)$$

μ étant évidemment une fonction complexe de la fréquence.

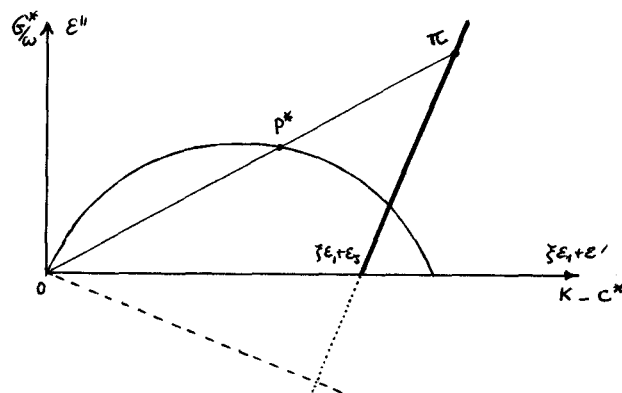


Fig. 24

- Le calcul de l'une ou l'autre des grandeurs ε' et ε'' à partir des formules inverses (IV, 8) éliminant l'influence des parois, donne d'autre part les courbes de la figure 25. On peut noter en particulier que ces courbes sont assez bien décrites en fonction de la saturation par une relation du type parabolique :

$$\begin{cases} \varepsilon'' = A s_w + B s_w^2 \\ \varepsilon' = \varepsilon_s + \mu (A s_w + B s_w^2) \end{cases} \quad (V, 5)$$

A et B étant proportionnels à ε''_w et A nettement inférieur à B.

Ces relations ne sont certainement pas rigoureusement exactes, mais montrent simplement qu'en développant en série ces deux grandeurs ε' et ε'' on peut se limiter au deuxième ordre en s_w . Cette position est quoi qu'il en soit plus satisfaisante que les formules empiriques proposées antérieurement (cf § I.3). En outre, bien que ce point n'ait qu'une valeur relative, on peut cependant noter que dans le domaine de validité de la théorie de Sillars ($p = \phi s_w$ petit), on peut retrouver ces deux résultats, à savoir que ε' et ε'' sont paraboliques et qu'ils sont proportionnels entre eux.

fig. 22

variation des grandeurs apparentes C^* et G^*/ω
en fonction de la saturation en eau

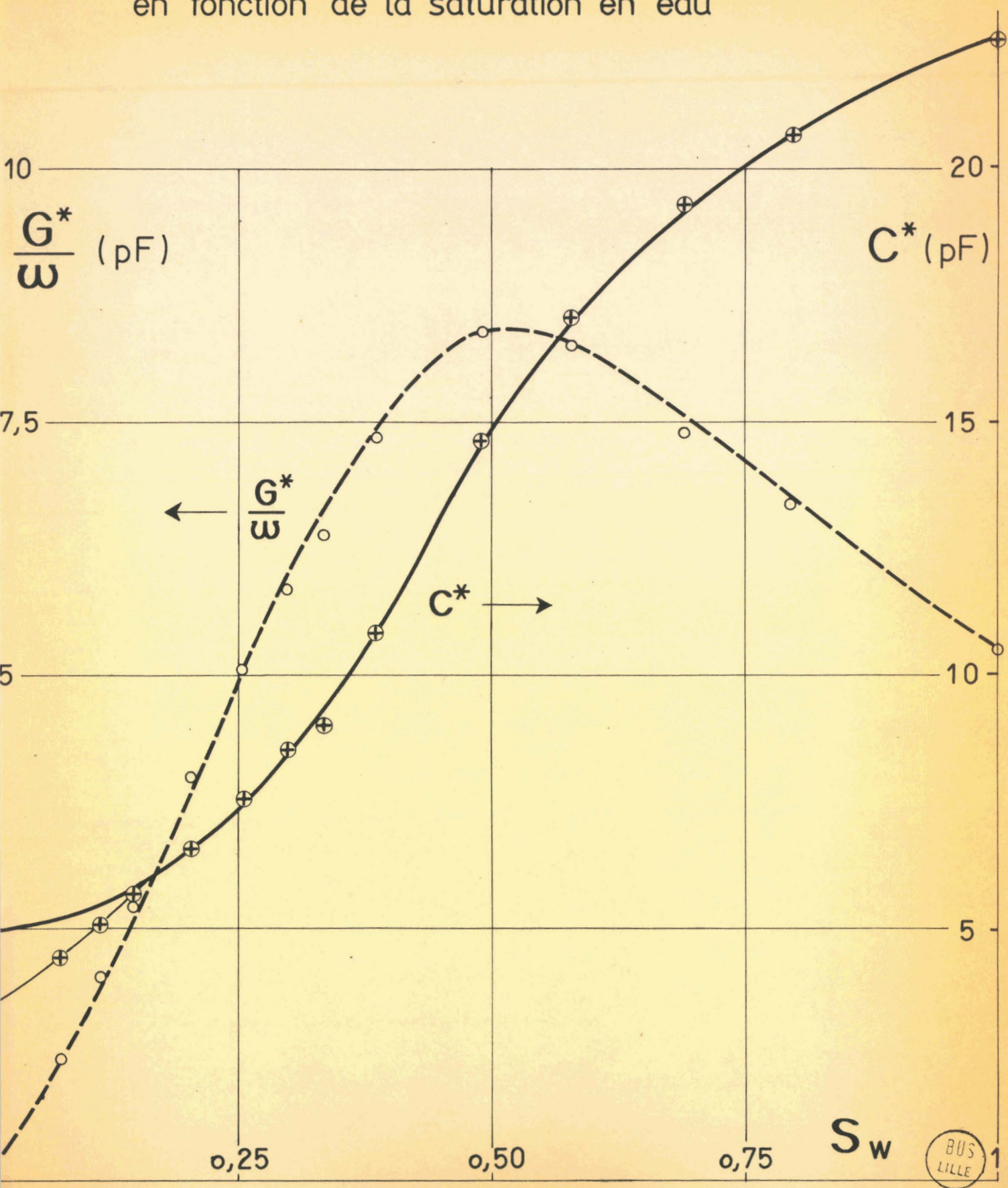


fig. 23

diagramme $C^* - G^*/\omega$ en fonction de l'abscisse curviligne S_w

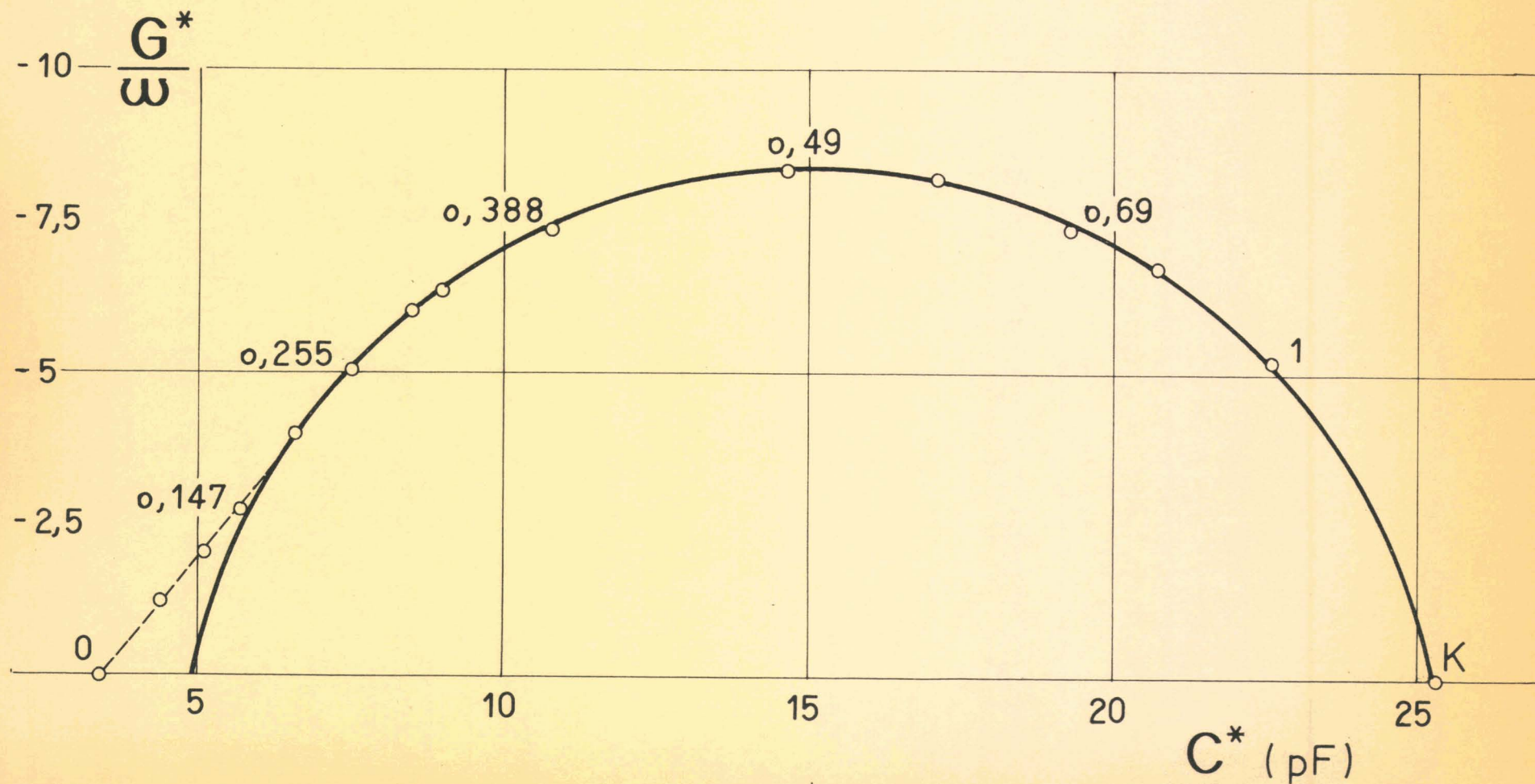


fig. 25

variation des composantes ϵ' et ϵ'' du milieu poreux en fonction de la saturation, déduite des grandeurs apparentes

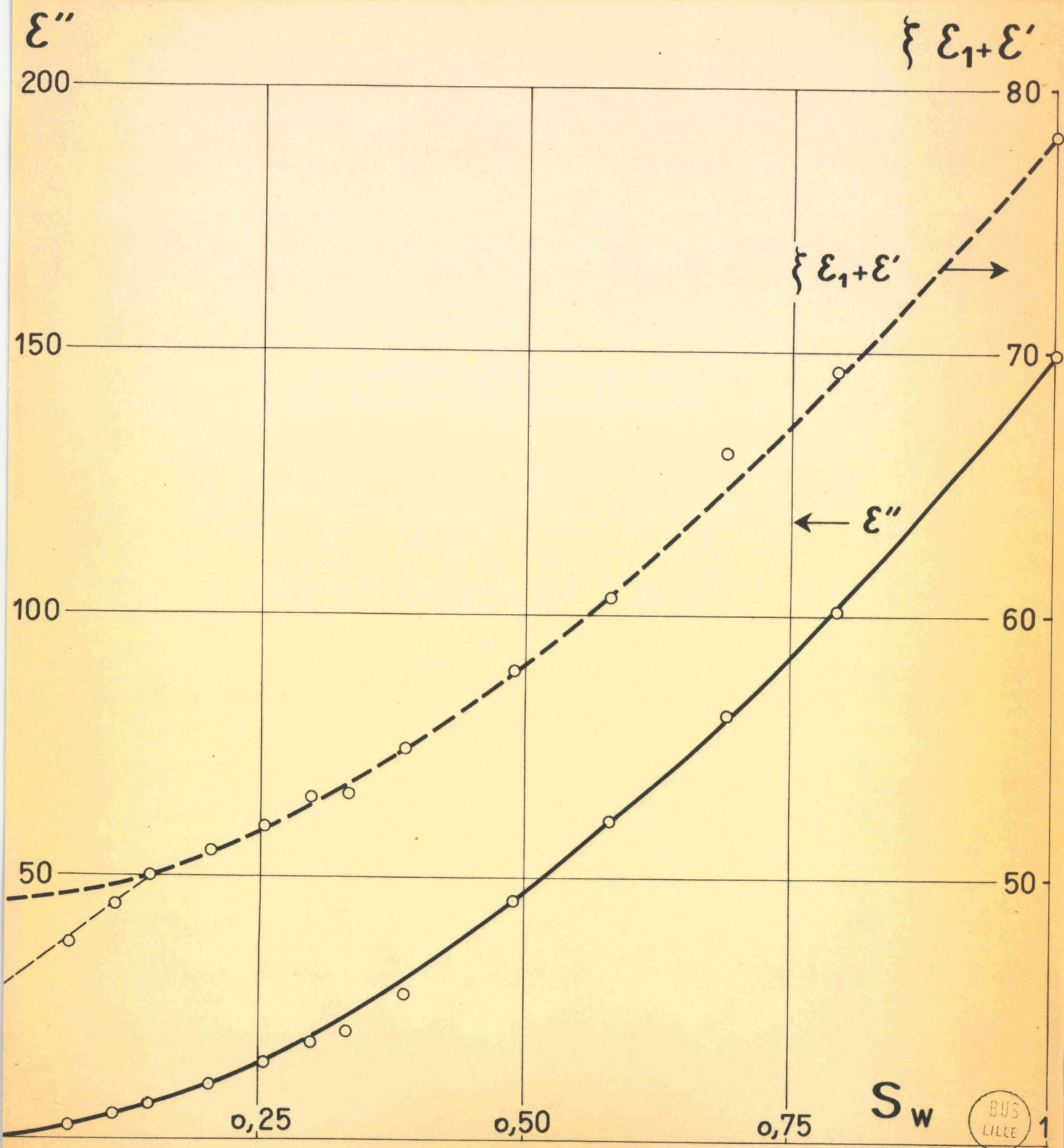
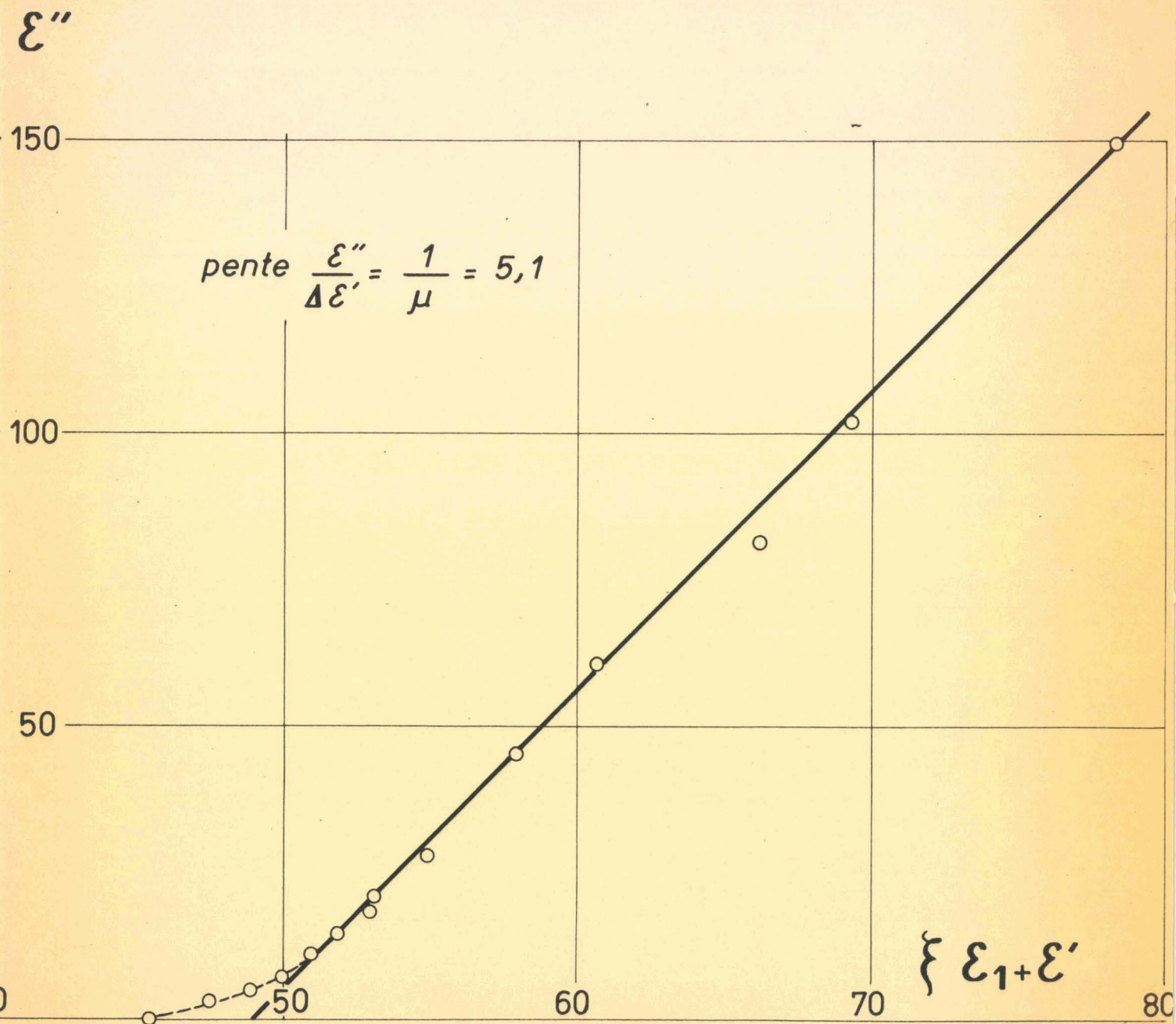


fig. 26

relation linéaire entre ε' et ε''



On trouve en particulier :

$$\mu = \frac{\epsilon' - \epsilon_s}{\epsilon''} = \frac{\epsilon'_w - \epsilon_s}{(F+1)\epsilon_s} \cdot \frac{1 + \omega^2 \tau^2}{\omega \tau} + \frac{1}{\omega \tau}$$

Les propriétés diélectriques des milieux poreux envisagés se résument donc de la façon suivante :

1. A saturation fixe, en fonction de la fréquence, existence d'un phénomène Maxwell-Wagner complexe, résultant d'une fonction de distribution des temps de relaxation.

2. A fréquence fixe, en fonction de la saturation,

- ϵ' et ϵ'' ne dépendent que de la quantité d'eau présente $p = \phi s_w$, le facteur de forme caractérisant la répartition de cette phase aqueuse restant constant,
 - ϵ' et ϵ'' sont proportionnels entre eux suivant la relation
- $$\epsilon' - \epsilon_s = \mu \epsilon''$$
- ϵ' et ϵ'' sont convenablement décrits par les deux relations paraboliques (V,5).

Tous ces résultats permettent de relier les composantes de la permittivité apparente à la saturation en eau.

V.3 - Relation entre les grandeurs apparentes C^* et G^*/ω et la saturation

Compte tenu des deux relations précédentes (V,4) et (V,5), on peut expliciter l'influence de la saturation dans les relations (IV,7) donnant les grandeurs mesurées $K-C^*$ et G^*/ω . Nous poserons donc :

$$\epsilon'' = \bar{\Psi}(s_w) = \bar{\Psi}$$

$$\epsilon' = \epsilon_s + \mu \bar{\Psi}(s_w) = \epsilon_s + \mu \bar{\Psi}$$

il vient :

$$\left\{ \begin{array}{l} K - C^* = K \epsilon_s \frac{\epsilon_s + \epsilon_s + \mu \bar{\Psi}}{(\epsilon_s + \epsilon_s + \mu \bar{\Psi})^2 + \bar{\Psi}^2} \\ G^*/\omega = K \epsilon_s \frac{\bar{\Psi}}{(\epsilon_s + \epsilon_s + \mu \bar{\Psi})^2 + \bar{\Psi}^2} \end{array} \right.$$

Ces expressions prennent une forme plus simple lorsque l'on considère les variations de ces grandeurs à partir du massif sans eau (saturation nulle) :

$$\begin{cases} \Delta(K-C^*) = K\beta\epsilon_1 \frac{\beta\epsilon_1 + \epsilon_s + \mu\bar{\Psi}}{(\beta\epsilon_1 + \epsilon_s + \mu\bar{\Psi})^2 + \bar{\Psi}^2} - K\beta\epsilon_1 \frac{1}{\beta\epsilon_1 + \epsilon_s} \\ \Delta(G^*_{/\omega}) = G^*_{/\omega} = K\beta\epsilon_1 \frac{\bar{\Psi}}{(\beta\epsilon_1 + \epsilon_s + \mu\bar{\Psi})^2 + \bar{\Psi}^2} \end{cases}$$

En posant :

$$\begin{cases} \psi = \frac{\bar{\Psi}}{\beta\epsilon_1 + \epsilon_s} \\ k = \frac{K\beta\epsilon_1}{\beta\epsilon_1 + \epsilon_s} \end{cases} \quad (V,6)$$

il vient

$$\begin{cases} \Delta(K-C^*) = k \frac{1 + \mu\psi}{(1 + \mu\psi)^2 + \psi^2} - k \\ G^*_{/\omega} = k \frac{\psi}{(1 + \mu\psi)^2 + \psi^2} \end{cases}$$

soit enfin :

$$\boxed{\begin{cases} \Delta C^* = k \frac{\mu\psi(1 + \mu\psi) + \psi^2}{(1 + \mu\psi)^2 + \psi^2} \\ G^*_{/\omega} = k \frac{\psi}{(1 + \mu\psi)^2 + \psi^2} \end{cases}} \quad (V,7)$$

formules dans lesquelles $\psi = \frac{\epsilon''}{\beta\epsilon_1 + \epsilon_s} = A's_w + B's_w^2$ est une relation parabolique de la saturation en eau s_w .

On note en particulier que le rapport $Z^* = \Delta C^* / G^*_{/\omega}$ a une forme très simple :

$$\boxed{Z^* = \frac{\Delta C^*}{G^*_{/\omega}} = \mu + (\mu^2 + 1)\psi} \quad (V,8)$$

C'est, comme ψ , une relation parabolique de s_w .

Les trois formules (V,7) et (V,8) expriment la relation entre les grandeurs apparentes ΔC^* , G^*/ω , et $Z^* = \Delta C^*/G^*/\omega$ et la saturation en eau, la fréquence intervenant implicitement par l'intermédiaire de μ . A fréquence fixe, on voit donc que l'utilisation de l'une de ces trois relations permet de remonter à la saturation, moyennant une détermination préalable des constantes intervenant dans ces équations, c'est-à-dire k, μ , et les constantes A' et B' entrant dans ψ . La figure 22 sur laquelle sont tracées les courbes théoriques ainsi calculées, et la figure 27 en ce qui concerne Z^* montrent que les points expérimentaux cadrent très bien avec cette approche théorique.

Propriétés de ces courbes

a) Allure de ces courbes en fonction de ψ

ψ étant une fonction parabolique de la saturation, toujours croissante, on obtient une bonne idée de l'allure de ces courbes (V,7) en fonction de la saturation en les traçant par rapport à ψ . (fig. 28).

Le tracé de ces courbes montre que :

- G^*/ω passe par un maximum pour la valeur $\psi_0 = \frac{1}{\sqrt{1+\mu^2}}$ et tend vers 0 pour $\psi \rightarrow \infty$. La valeur de ce maximum est égale à $\frac{k}{2} \frac{1}{\sqrt{1+\mu^2} + \mu} < \frac{k}{2}$
- ΔC^* croît de 0 à k quand ψ varie de 0 à $+\infty$ et passe par la moitié de sa variation, soit $k/2$ pour $\psi = \psi_0$.

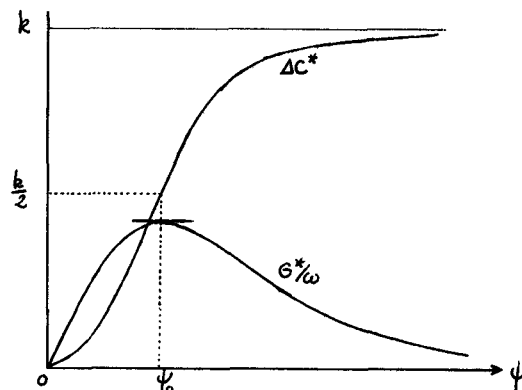


Fig. 28

On voit donc l'analogie très marquée qui existe entre l'influence des paramètres ψ (ou s_w) et ω , le rôle de ψ_0 étant tenu par la fréquence maxima f_0 . Cette analogie se conserve dans le diagramme Cole-Cole, ΔC^* en fonction de G^*/ω .

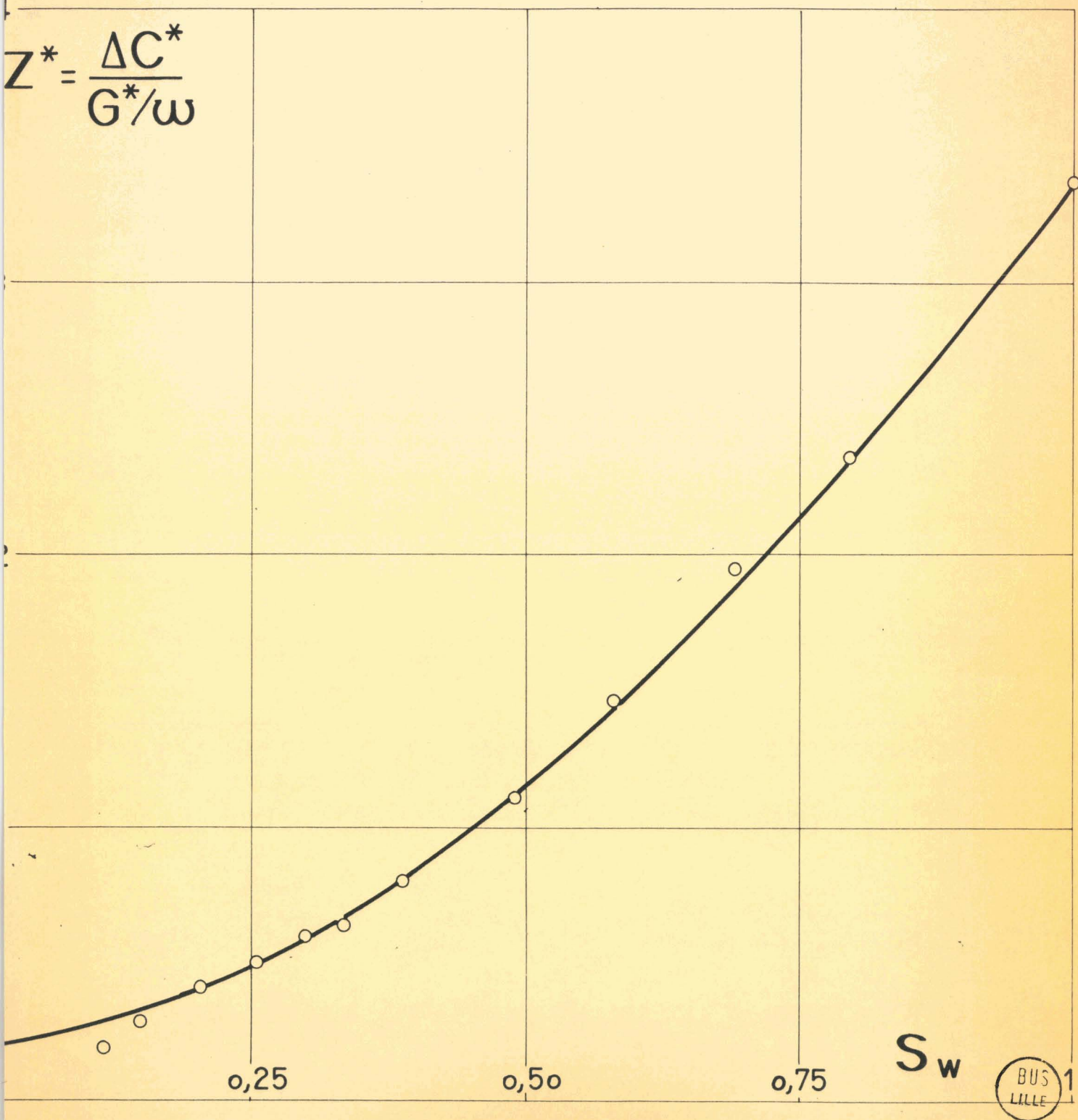
b) Relation entre G^*/ω et ΔC^*

L'élimination de ψ entre les deux relations (V,7) conduit en effet à la relation suivante :

$$(\Delta C^*)^2 + (G^*/\omega)^2 - k \Delta C^* + k\mu G^*/\omega = 0$$

fig. 27

évolution du rapport $Z^* = \frac{\Delta C^*}{G^*/\omega}$ en fonction de la saturation en eau



On retrouve naturellement la propriété du § V.23. La relation entre ΔC^* et G^*/ω est un arc de cercle, passant par l'origine dont le centre I a pour coordonnées :

$$I \begin{cases} k/2 \\ -k\mu/2 \end{cases}$$

On en déduit en particulier :

$$OH = \frac{k}{2}$$

$$\operatorname{tg} \alpha = \mu$$

Cette propriété graphique permet, aisément, de déterminer les deux grandeurs k et μ . Nous y reviendrons ultérieurement, dans la partie suivante, mise en oeuvre pratique de la méthode de mesure.

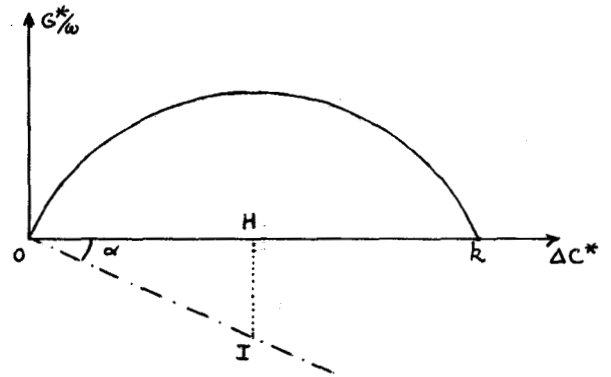


Fig. 29

TROISIEME PARTIE

MISE EN OEUVRE PRATIQUE

DE LA METHODE DE MESURE DES SATURATIONS (Réf. 28)

La partie précédente, notamment les formules (V,7) et (V,8) reliant les grandeurs ΔC^* , G^*/ω et $Z^* = \frac{\omega \Delta C^*}{G^*}$ à la saturation s_w en eau d'un massif de milieu poreux, montrent la possibilité d'une détermination de cette saturation à partir de la mesure des deux grandeurs électriques apparentes C^* et G^* . Nous allons traiter dans cette partie l'aspect pratique du problème, qui comprendra les paragraphes suivants :

- Mesure des grandeurs C^* et G^* . Nature de l'appareillage,
- Réalisation des conditions optima de mesure, choix des paramètres fixés, choix de la fréquence de mesure,
- Etalonnage des courbes en fonction de la saturation,
- Précision sur la détermination de la saturation.

Ce sont, dans l'ordre les quatre problèmes qui se posent à un utilisateur voulant exploiter les résultats théoriques de la deuxième partie.

VI. NATURE DE L'APPAREILLAGE - MESURE DES GRANDEURS C^* ET G^*

VI.1 - Montage expérimental

Les grandeurs accessibles à l'expérience sont naturellement la capacité C^* et la conductance G^* du dipole électrique équivalent au condensateur avec pertes que constitue l'ensemble (cellule isolante + milieu poreux). Connaissant la fréquence de mesure G^*/ω est connu.

Le dispositif de mesure de C^* et G^* comprendra d'une part un montage électrique permettant la mesure des composantes d'un dipole parallèle, et d'autre part, la disposition autour de la cellule contenant le milieu poreux d'un condensateur, constitué de deux électrodes au contact de la paroi extérieure de la cellule, la surface de ces électrodes délimitant le volume du milieu affecté par la mesure.

Schématiquement, l'ensemble du dispositif expérimental peut être représenté par la figure 30 suivante :

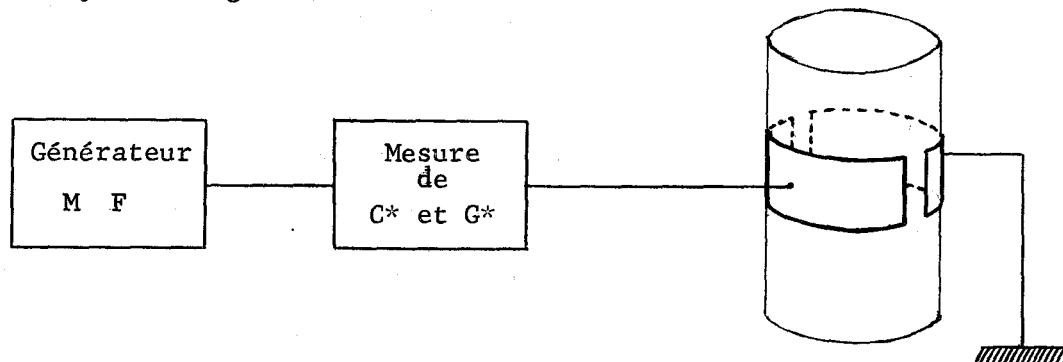


Fig. 30

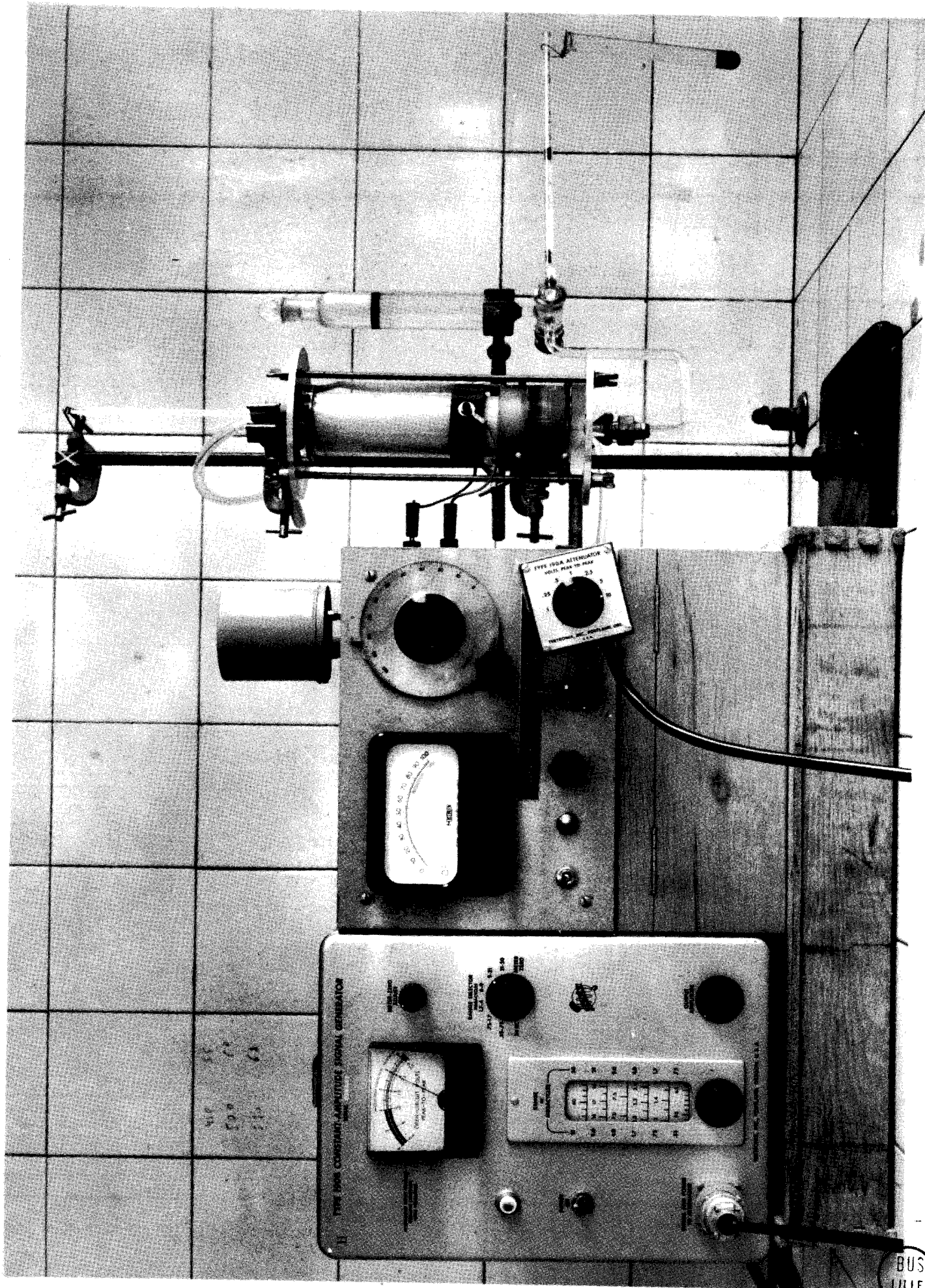
Les électrodes sont alimentées par un générateur moyenne fréquence délivrant le courant de fréquence désirée, par l'intermédiaire de l'appareil de mesure de C^* et G^* proprement dit. La photographie ci-contre représente le dispositif expérimental complet, appareillage et cellule de mesure.

VI.2 - Différentes parties du montage

VI.21) Appareil de mesure de C^* et G^* - "G-B mètre"

Etant donné la présence au contact des électrodes d'une matière isolante et les dimensions des échantillons de milieu poreux couramment utilisés, imposant une capacité active des électrodes C_0 faibles (< 1 pF), le système cellule + milieu poreux reste toujours un diélectrique à faibles pertes, et à ce titre tout appareil permettant la mesure des caractéristiques ϵ' et ϵ'' d'un diélectrique à faibles pertes, convient à la mesure. C'est le cas notamment des Q-mètres commerciaux. Nous ne nous étendrons pas sur ce type d'appareil qui présente dans le cas présent, l'inconvénient de ne pas donner directement la valeur de G^* , pour donner quelques détails sur l'appareil que nous utilisons. Monsieur le Professeur LEBRUN a mis très aimablement à notre disposition un appareil de sa conception et réalisé au Laboratoire de Radioélectricité de la Faculté des Sciences de Lille, dirigé par Monsieur le Professeur GABILLARD. Un tel appareil baptisé "G-B mètre" parce qu'il donne les valeurs de la conductance G et de la susceptance $B = \omega C$ d'un dipôle RC, convient parfaitement au cas de cette méthode de mesure.

Le principe de cet appareil est le suivant (réf. 40) :



Un circuit oscillant comprenant une self $\mathcal{L}$ fixe et un condensateur C_2 variable de 0 à 100 pF est alimenté par un générateur par l'intermédiaire d'une résistance R_1 . Le dipole à mesurer se branche directement aux bornes du circuit oscillant suivant le schéma reproduit à la figure 31.

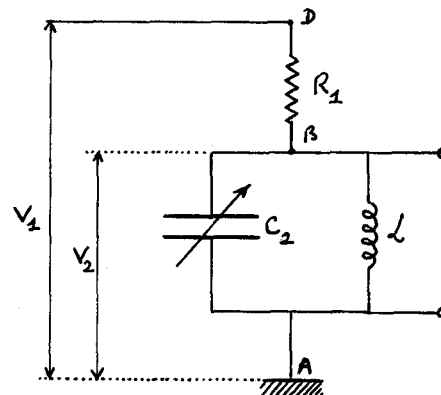


Fig. 31

- A vide, le circuit étant ouvert les admittances Y_1 et Y_2 des parties

BD et AB sont respectivement :

$$Y_1 = G_1 = \frac{1}{R_1}$$

$$Y_2 = G_2 + j \left(\omega C_2 - \frac{1}{\mathcal{L}\omega} \right)$$

G_2 étant la petite conductance parasite du circuit oscillant

C_2 la valeur de la capacité variable.

Si V_1 est la tension aux bornes du générateur, les tensions V_2 et $(V_1 - V_2)$ respectivement aux bornes de Y_2 et Y_1 sont dans le rapport inverse de ces admittances :

$$\frac{V_2}{V_1 - V_2} = \frac{Y_1}{Y_2}$$

$$V_2 = (V_1 - V_2) \frac{G_1}{G_2 + j \left(\omega C_2 - \frac{1}{\mathcal{L}\omega} \right)}$$

A la résonnance du circuit oscillant (maximum du module de la tension V_2) on a :

$$\begin{cases} C_2 = \frac{1}{\mathcal{L}\omega^2} \\ V_2 = (V_1 - V_2) \frac{G_1}{G_2} \end{cases} \quad (VI,1)$$

- Avec le dipole C^* , G^* à mesurer, on a de même :

$$Y'_1 = G_1 = \frac{1}{R_1}$$

$$Y'_2 = G_2 + G^* + j \left(\omega C'_2 + \omega C^* - \frac{1}{\mathcal{L}\omega} \right)$$

soit :

$$V_2' = (V_1' - V_2') \frac{G_1}{G_2 + G^* + j(\omega C_2 + \omega C^* - \frac{1}{L\omega})}$$

et à la résonnance

$$\begin{cases} C_2' + C^* = \frac{1}{L\omega^2} \\ V_2' = (V_1' - V_2') \frac{G_1}{G_2 + G^*} \end{cases} \quad (VI, 2)$$

Si l'on impose $V_2 = V_2' = 1$ volt, on en déduit par comparaison des formules (VI,1) et (VI,2) :

$$G_2 = (V_1 - 1) G_1$$

$$G_2 + G^* = (V_1' - 1) G_1$$

d'où :

$$\begin{cases} C^* = C_2 - C_2' \\ G^* = G_1(V_1' - V_1) = G_1 \Delta V_1^* \end{cases} \quad (VI, 3)$$

Autrement dit :

- la valeur de la capacité C^* du dipole à mesurer est obtenue par le décalage du condensateur variable entre sa valeur à vide et la valeur dipole branché.
- La conductance G^* à mesurer est proportionnelle à la différence ΔV_1^* des lectures avec le dipole, V_1' , et à vide, V_1 , le facteur de proportionnalité étant la conductance de la résistance R_1 de l'appareil.

La mesure de C^* et G^* se fait donc en deux temps :

- On fait l'accord du circuit oscillant,
- Une fois cet accord réalisé le circuit oscillant est une résistance pure, on affiche la tension fixe V_2 prise égale à 1 volt aux bornes AB de ce circuit. Et on lit la tension V_1 aux bornes AD de l'ensemble résistances R_1 + circuit oscillant (tension du générateur).

On effectue ces deux opérations d'abord à vide (circuit ouvert), puis avec le dipole R^*C^* branché.

Remarques :

1) Etant donné la diversité des échantillons de milieu poreux (spécialement de la nature de la phase aqueuse), et des conditions expérimentales, il s'en suit, nous le verrons au § VII.3 une gamme très large de variations du phénomène de parois en position (fréquence) et en amplitude. Un appareil tel que le "G-B mètre" décrit est susceptible de fonctionner correctement dans une bande de fréquence comprise entre 10 KHz et 10 MHz, à condition de disposer d'un jeu de selfs différentes permettant de réaliser l'accord à différentes fréquences comprises dans la gamme précédente. C'est cette bande de fréquence 10 KHz-10 MHz que nous utilisons.

2) D'autre part, l'accord du circuit oscillant ne peut être réalisé correctement que si G^*/ω n'est pas trop grand, inférieur à 20 pF environ. Cette valeur constitue une limite supérieure pour l'amplitude du phénomène de paroi à réaliser.

3) Pour couvrir une telle gamme 0-20 pF dans toute la bande de fréquence 10 KHz-10 MHz précédemment définie, il faut un jeu de résistances R_1 différentes, à la fois stables en fréquence et dénuées de capacité. La première condition est difficile à réaliser, et est gênante lorsque l'on veut tracer un spectre en fréquence. Aussi dans ce cas est-il conseillé de déterminer G^* par comparaison avec une résistance stable en fréquence et de valeur connue (il existe de telles résistances à couches de carbone stables jusqu'à 10 MHz, et données à 0,5 %). En affectant l'indice c à cette résistance de comparaison, la deuxième formule (VI,3) devient :

$$G^* = G_c \frac{\Delta V_1^*}{\Delta V_{1c}} \quad (\text{VI},4)$$

VI.22) Générateur moyenne fréquence

Le générateur d'alimentation du circuit de mesure doit présenter les caractéristiques suivantes, qui résultent directement des propriétés du "G-B mètre" :

- Couvrir une bande de fréquence comprise entre 10 KHz et 10 MHz,
- Délivrer dans cette bande de fréquence un signal sinusoïdal d'amplitude réglable et nettement supérieure à 1 volt,
- Etre stable en fréquence et en amplitude.

VI.23) Accessoires de mesure

Nous groupons sous cette rubrique quelques remarques concernant la partie du schéma de principe du dispositif expérimental qui se situe après l'appareil de mesure de C^* et G^* , c'est-à-dire principalement les connexions et les électrodes.

- Compte tenu des fréquences allant jusqu'à 10 MHz qui peuvent être utilisées les fils de connection des électrodes de mesure à l'appareil peuvent présenter une self parasite non négligeable. Il convient donc d'utiliser des fils aussi courts et aussi rigides que possible. L'emploi de contacteurs permettant de passer d'un jeu d'électrodes à un autre par exemple, est également à envisager avec beaucoup de prudence.

- La réalisation des électrodes ne présente, par contre, aucune difficulté particulière, toute plaque de métal bon conducteur convenant à priori. Il convient cependant de noter que les électrodes doivent être bien appliquées contre la paroi isolante de la cellule, afin d'éviter la formation de lames d'air.

VI.3 - P r é c i s i o n sur la mesure de C^* et G^*

Celle-ci est difficile à définir théoriquement avec précision. Elle résulte en partie de la dispersion des points expérimentaux, dispersion que l'on peut voir sur les différentes figures précédentes (tracés de spectres en fonction de la fréquence - courbes en fonction de la saturation à fréquence fixe). On peut cependant faire les remarques suivantes :

- L'erreur principale commise sur la mesure de la capacité provient de la difficulté de réaliser manuellement l'accord parfait du circuit oscillant. On peut chiffrer cette imprécision, compte tenu d'un dispositif de réglage fin existant sur le G-B mètre à $\pm 0,2$ pF. Bien que la grandeur à considérer soit la variation ΔC^* , on peut faire cet accord en réglant le condensateur variable C à une position bien définie et en recherchant la résonance par réglage de la fréquence sur le générateur. L'erreur ainsi commise est très faible, si bien que l'erreur sur ΔC^* est approximativement la même que celle sur C^* , soit $\pm 0,2$ pF.
- L'erreur commise sur G^*/ω provient essentiellement de l'erreur commise sur ΔV_1^* . Compte tenu des gammes de sensibilités disponibles 1v-3v et 1v - 5v sur le G-B mètre on peut chiffrer l'erreur commise sur ΔV_1^* à $\pm \frac{1}{2}$ division sur V_1' et V_1 soit $\pm 0,02$ et $\pm 0,03$ volts respectivement. On en déduit :

$$\frac{\delta(G^*/\omega)}{G^*/\omega} = \frac{\delta(\Delta V_1^*)}{\Delta V_1^*}$$

soit :

$$\frac{\delta(G^*/\omega)}{G^*/\omega} = \frac{G_1/\omega}{G^*/\omega} \delta(\Delta V_1^*)$$

Cette expression montre que l'erreur relative est inversement proportionnelle à G^*/ω , pour une même résistance R_1 et une même fréquence.

A condition de disposer d'un jeu de résistances R_1 convenables, on peut maintenir l'erreur relative $\delta(G^*/\omega)/G^*/\omega$ entre 1 % et 2 %. Il suffit pour cela de maintenir G_1 entre les deux valeurs extrêmes $\frac{G^*}{3}$ et $\frac{2G^*}{3}$ ce qui est toujours possible. On peut donc prendre :

$$\frac{\delta(G^*/\omega)}{G^*/\omega} \leq 2\% \quad (\text{VI},5)$$

VII. REALISATION DES CONDITIONS OPTIMA DE MESURE - CHOIX DES PARAMETRES FIXES

VII.1 - Généralités

Le problème du choix des paramètres fixes en vue de se mettre dans les conditions optima de mesure se pose de la façon suivante :

- La plupart des paramètres propres au milieu poreux sont fixés a priori, en particulier sa géométrie et en général la salinité, donc la conductance de l'eau.

- Par contre les autres paramètres tels que les caractéristiques géométriques et diélectriques de la cellule, et la fréquence du courant, peuvent être choisis de façon arbitraire, à l'intérieur de certaines limites. C'est ceux-ci qu'il convient de fixer au mieux à l'intérieur de ces limites. On a vu en particulier la limitation en fréquence 0,01 - 10 MHz, ainsi que la limitation en amplitude pour G^*/ω de l'ordre de 20 pF, imposées par l'appareillage.

- On désire de plus une précision suffisante sur la détermination des saturations, donc compte tenu des erreurs résultant des appareillages sur ΔC^* et G^*/ω , il convient de rechercher des variations de ces grandeurs aussi grandes que possible. Nous reviendrons sur ce point lors de la question de la précision sur la détermination des saturations.

- On désire d'autre part que cette précision sur la détermination de la saturation en eau soit à peu près constante dans toute la gamme des saturations. En règle générale celle-ci peut varier depuis 100 % jusqu'à une valeur minima appelée saturation irréductible, correspondant à une quantité d'eau impossible à extraire du milieu poreux par des moyens mécaniques, de l'ordre de 10 %. Ceci suppose en raisonnant sur G^*/ω qui croît depuis 0 jusqu'à un maximum pour redécroître ensuite que la variation totale de cette grandeur soit à peu près également répartie dans la gamme des saturations utiles. Cette condition, nous allons le voir, régira le choix de la fréquence de mesure.

- Compte tenu de la simplicité de la grandeur $Z^* = \frac{\Delta C^*}{G^*/\omega}$ par rapport aux grandeurs ΔC^* et G^*/ω , celle-ci sera a priori préférée aux deux autres grandeurs, en vue de simplifier d'autant le problème de l'exploitation des résultats.

- Enfin, on désire généralement une mesure locale de la saturation, ce qui conduit à une limite supérieure pour la dimension des électrodes.

VII.2 - Amplitude des variations - Choix des paramètres de cellule

Etant donné le choix a priori de la courbe $Z^* = \frac{\Delta C^*}{G^*/\omega}$, on conçoit que l'on a intérêt à choisir des variations aussi grandes que possible de cette grandeur. Compte tenu également de la dérive aux faibles valeurs de G^*/ω (voir fig. 12) résultant d'une conductivité non nulle de la paroi isolante, il y a intérêt à augmenter ΔC^* sans trop diminuer G^*/ω , et ce, malgré l'erreur relative sensiblement constante sur G^*/ω . Cette condition se traduit donc par la recherche de grandes variations pour ΔC^* , donc pour G^*/ω qui lui est liée.

En raisonnant sur G^*/ω , nous avons dit au § IV.12 que cette grandeur peut être caractérisée par l'amplitude et la position du maximum de son spectre en fréquence. Le maximum de G^*/ω tracé en fonction de la saturation, à la fréquence f_0 obtenue pour une saturation s_{w_0} correspond au maximum du spectre en fréquence, $(G^*/\omega)_0 = \frac{K}{2} \frac{\bar{\epsilon}_1}{\bar{\epsilon}_1 + \epsilon'}$ correspondant à cette même saturation s_{w_0} .

Il convient donc de rechercher des valeurs grandes pour $(G^*/\omega)_0$ qui, compte tenu de la restriction imposée, par l'appareillage $G^*/\omega < 20$ pF, doit être compris entre 12 et 15 pF environ. Ceci se traduit par la recherche :

- d'une capacité des parois K grande comprise entre 25 et 30 pF,
- d'un paramètre de cellule $\bar{\epsilon}_1$ grand.

Il est intéressant à ce stade de particulariser ces paramètres dans les deux cas de cellules que nous avons utilisées, et qui sont les deux cas principaux que l'on peut envisager : les cellules cylindriques et les cellules parallélépipédiques.

Dans ce dernier cas les formules donnant ces paramètres sont évidentes. Dans le cas des cellules cylindriques elles résultent du calcul d'une capacité hémicylindrique, dont le calcul se fait aisément à partir d'une transformation conforme ramenant ce type de condensateur au type du condensateur plan (réf. 28). On trouve :

- Cellules parallélépipédiques :

$$K_{pF} = \epsilon_0 \frac{\epsilon_1 S}{d_1}$$

$$\{\epsilon_1 = \frac{d}{d_1} \epsilon_1$$

avec les notations suivantes :

ϵ_0 coefficient numérique
égal à 8,854 en MKSA

d_1 épaisseur totale des parois

d épaisseur du milieu poreux

S surface des électrodes.

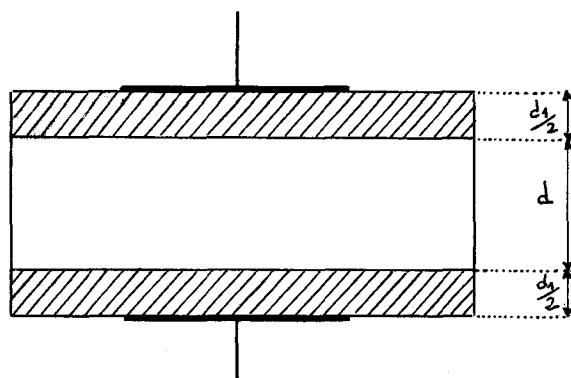


Fig. 32 a

- Cellules cylindriques :

$$K_{pF} = \epsilon_0 \frac{\epsilon_1 h (\frac{\pi}{2} - \theta)}{\log \frac{R}{r}}$$

$$\{\epsilon_1 = \frac{\frac{\pi}{2} (\frac{\pi}{2} - \theta)}{\log \frac{R}{r} | \log \tan \frac{\theta}{2} |}$$

avec h hauteur des électrodes

R, r rayon extérieur et intérieur
de l'enveloppe

θ complément du demi angle d'ou-
verture des électrodes.

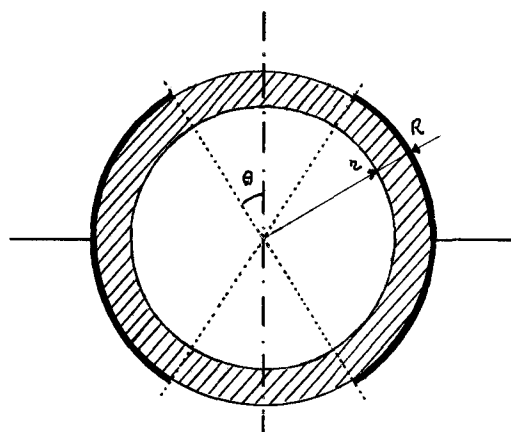


Fig. 32 b

Dans ces deux cas les conditions citées plus haut se traduisent par :

- Une enveloppe de grande constante diélectrique ϵ_1 ,
- Une enveloppe de faible épaisseur de paroi par rapport à l'épaisseur du milieu poreux,
- Des électrodes de surface suffisante, compte tenu de la limitation imposée plus haut (mesure locale de saturation).

- En outre dans le cas des cellules cylindriques l'angle d'ouverture des électrodes a une grande importance illustrée sur la figure 33 où sont reproduites les variations de K et $\{\epsilon_1$ en fonction de θ . Les conditions K et $\{\epsilon_1$ grands sont contradictoires, néanmoins $(G/\omega)_0$ a une limite supérieure intrinsèque $K/2$ et est d'autant plus près de cette limite que $\{\epsilon_1$ est plus grand. C'est donc le paramètre K qui est prépondérant. On conçoit donc que la valeur de θ optima se situe vers θ petit, de l'ordre de 5° environ.

En pratique on a donc trois paramètres, nature des parois, épaisseur de celles-ci et surface des électrodes à déterminer à l'aide des deux conditions électriques $25 < K < 30$ pF environ et $\{\epsilon_1$ grand, et naturellement d'autres conditions imposées par ailleurs (surface maxima des électrodes, épaisseur minima des parois en vue d'obtenir une bonne rigidité mécanique de celles-ci...). Il y a là un compromis à réaliser entre toutes ces conditions, sachant cependant que les conditions électriques sont assez souples. Ce sont des indications plutôt que des restrictions.

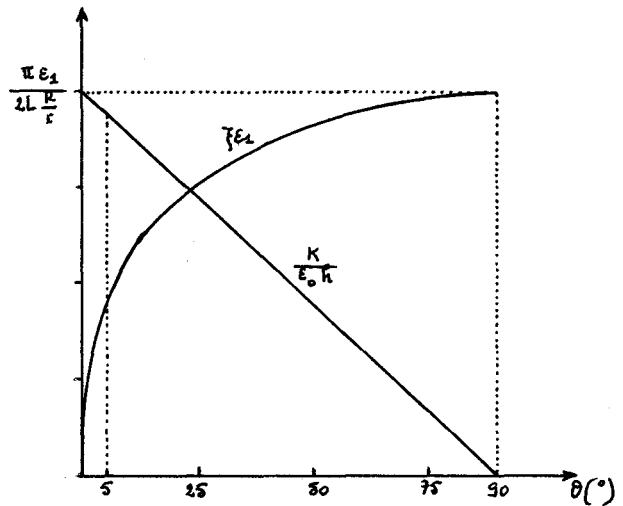


Fig. 33

VII.3 - C h o i x d e l a f r é q u e n c e d e m e s u r e

Le choix des paramètres de cellule K et $\{\epsilon_1$ déterminant les variations maxima des grandeurs ΔC^* et G^*/ω contribue à donner une meilleure précision sur la détermination des saturations. Pour que celle-ci soit optima, il convient cependant que la précision reste sensiblement du même ordre de grandeur dans toute la gamme des saturations à mesurer. Cette précision est conditionnée par des grandes variations de Z^* et simultanément des valeurs pas trop faibles de G^*/ω .

Cette condition G^*/ω pas trop faible doit être réalisée dans toute la gamme des saturations, il faut donc que pour $s_w = 1$, G^*/ω soit encore suffisamment éloignée de son asymptote, donc que la fréquence du maximum du phénomène de paroi dans ces conditions,

$$\left[f_0(s_w) \right]_{s_w=1} = \frac{1}{2\pi} \left[\frac{\sigma(s_w)}{\{\epsilon_1 + \epsilon'(s_w)\}} \right]_{s_w=1}$$

ne soit pas trop éloignée de la fréquence de mesure f_m .

L'étude expérimentale a montré que les conditions optimas sont sensiblement réalisées pour $f_m = [f_o(s_w)]_{s_w=0,25}$ pour un massif de 36 % de porosité, donc d'une façon plus générale pour $f_m = [f_o(\phi s_w)]_{\phi s_w=0,09}$

soit
$$f_m = \frac{1}{2\pi} \left[\frac{\sigma(\phi s_w)}{\epsilon_1 + \epsilon'(\phi s_w)} \right]_{\phi s_w=0,09}$$

σ et ϵ' étant les caractéristiques du milieu poreux contenant une quantité d'eau $\phi s_w = 0,09$. Pour préciser cette valeur de f_m , on peut prendre des valeurs approchées pour ces grandeurs, ce qui est suffisant pour la détermination d'une fréquence de mesure. Ces valeurs approchées consistent à prendre :

- $\epsilon' = \text{Constante} = B$ (ce qui est licite puisque en dépit de l'effet Maxwell-Wagner propre au milieu poreux des variations de conductivité de l'eau n'altèrent guère la constante diélectrique de l'eau donc du massif contenant une quantité définie d'eau) ;

- $\sigma = (0,09)^2 \sigma_w$ (hypothèse du facteur de formation traduite par la formule (I,9) avec n pris égal à 2, qui n'est cependant pas rigoureusement exacte compte tenu de (V,5), mais constitue une valeur approchée).
De sorte que :

$$f_m = \frac{A \sigma_w}{\epsilon_1 + B}$$

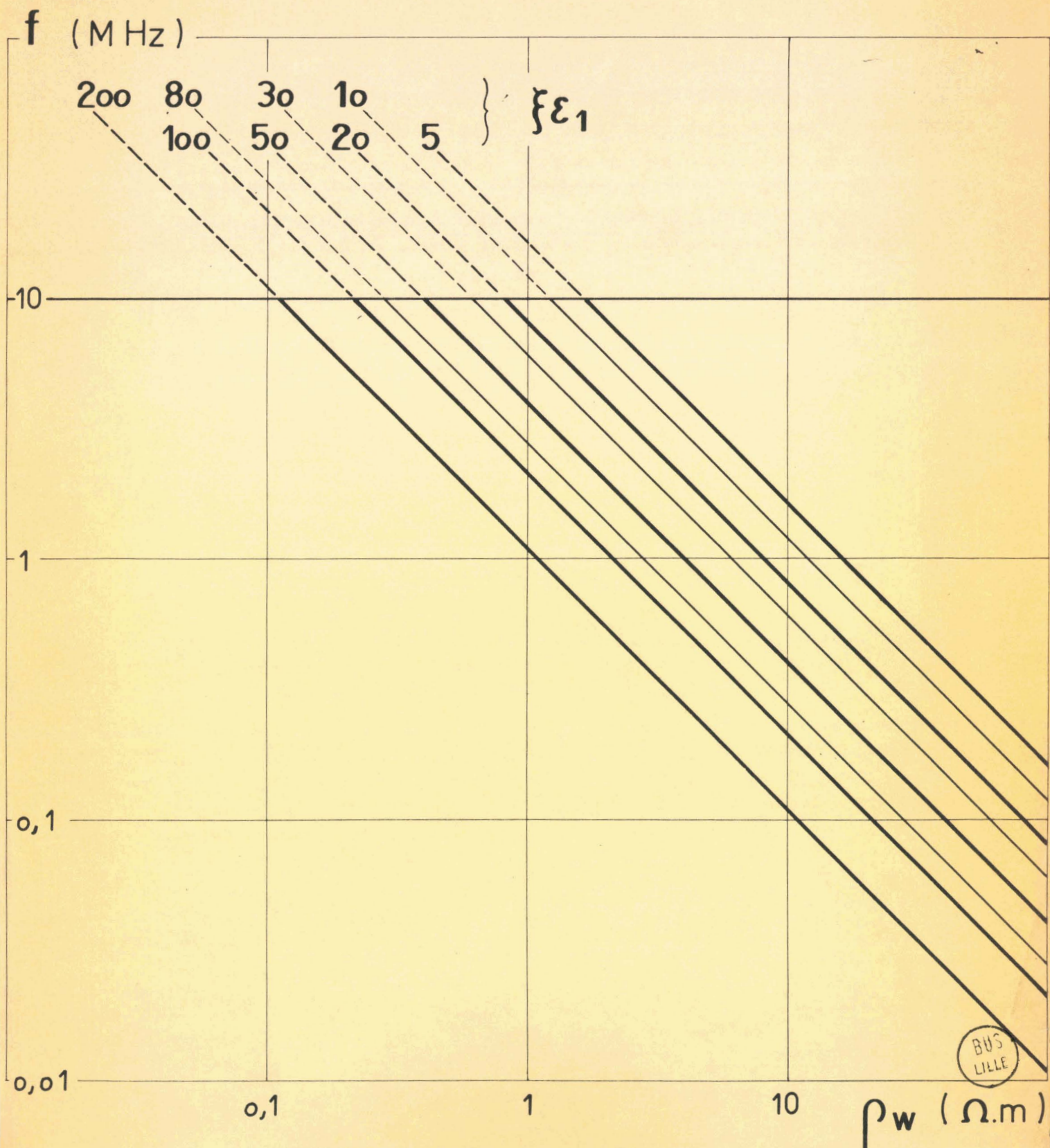
Cette formule montre que la fréquence optima de mesure est proportionnelle à la conductivité de l'eau saturant le milieu poreux. Cette formule permet de tracer les abaqes de la figure 34 donnant la fréquence de mesure en fonction de la conductivité ou donc de la salinité de l'eau remplissant les pores, pour différentes valeurs du paramètre ϵ_1 .

L'appareillage impose une limite absolue à f_m , égale à 10 MHz, si bien que pour des salinités supérieures à 15g/l pour $\epsilon_1 = 50$ par exemple, on ne peut plus se placer dans les conditions optimas. Il convient alors de choisir $f_m = 10$ MHz, la détermination des saturations se fait encore aisément mais au détriment de la précision, qui diminue aux fortes saturations en eau, d'autant plus que la fréquence f_m théorique est plus éloignée de 10 MHz.

En résumé le choix des paramètres fixes en vue d'une détermination optima des saturations se fait de la façon suivante :

fig. 34

abaque donnant la fréquence optima de mesure
en fonction de la résistivité de l'eau, et pour
différentes valeurs du paramètre $\xi \epsilon_1$



- En fonction des conditions expérimentales imposées par ailleurs, on détermine l'épaisseur et la nature des parois, et la surface des électrodes, de façon à réaliser au mieux les conditions K grand, mais inférieur à 40 pF, ϵ_1 grand.
- La connaissance du paramètre ϵ_1 permet ensuite, en fonction de la conductivité de l'eau que l'on désire employer, de déterminer la fréquence optima de mesure f_m , à partir des abaques de la figure 34.

VIII. ETALONNAGE DE LA COURBE Z^* EN FONCTION DE LA SATURATION EN EAU

La détermination des saturations à partir des grandeurs mesurées C^* et G^* , donc de la connaissance de $Z^* = \frac{\Delta C^*}{G^*/\omega}$ nécessite la connaissance préalable des constantes intervenant dans l'équation liant Z^* et s_w , c'est-à-dire l'équation (V,8) :

$$Z^* = \mu + (\mu^2 + 1)\psi \quad (V,8)$$

avec :

$$\psi = A's_w + B's_w^2$$

Cette équation (V,8) est une relation parabolique. A priori on peut supposer que la connaissance de trois points est nécessaire au tracé préalable de cette courbe (trois constantes à déterminer μ , A' et B').

En fait le problème se simplifie, compte tenu de la propriété b du paragraphe (V,3).

En effet, dans le diagramme C^* , G^*/ω , les points de mesure s'alignent sur un arc de cercle passant par le point K (capacité des parois), et C_s^* (capacité apparente du massif sans eau), tel que $K - C_s^* = k$ et dont le centre I est défini par :

$$\tan \alpha = \mu$$

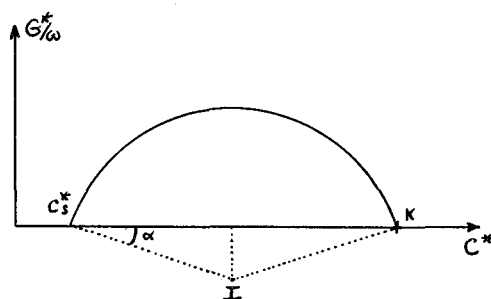


Fig. 35

- La connaissance de deux points de ce cercle en plus de K suffit à déterminer ce cercle, donc μ , et C_s^* .
- La connaissance de deux points pour la courbe ψ suffit à la déterminer, et suffit donc à déterminer Z^* , μ étant connu.

Autrement dit l'étalonnage nécessite :

- La mesure de C^* et G^* pour deux états de saturation connue,
- La mesure directe de K .

Le tracé du cercle précédent détermine alors μ et C_s^* . La connaissance de C_s^* permet de définir les variations de capacités $\Delta C^* = C^* - C_s^*$, et les couples de mesure C^* et G^* , donnent deux valeurs du rapport Z^* qui, μ étant connu, déterminent entièrement cette courbe.

Remarque :

- Cette détermination indirecte de C_s^* est préférable à une détermination directe par mesure sur le massif sans eau, car cette mesure directe est systématiquement erronée (voir fig.23) par suite d'une capacité parasite différente dans ce cas par rapport au cas des autres saturations où le milieu est alors conducteur.

- La détermination directe de K est aisée, il suffit pour cela de remplacer le milieu poreux par un court-circuit, le plus simple étant du mercure, ou de l'eau très salée.

Donc les seules mesures préalables nécessaires à la détermination de la courbe $Z^* = f(s_w)$ sont :

- une mesure de K , la cellule étant remplie de mercure,
- une mesure de C^* et G^* pour deux saturations connues, qui peuvent être généralement les saturations de début et de fin de l'expérience.

IX. PRECISION SUR LA DETERMINATION DES SATURATIONS

Celle-ci dépend de la précision des mesures électriques, C^* et G^* , définie au § VI.3, et d'autre part des diverses erreurs commises dans le passage des grandeurs électriques à la courbe d'étalonnage en fonction de la saturation.

L'erreur sur ΔC^* a été estimée à 0,2 pF en valeur absolue, celle sur G^*/ω à 2 % en valeur relative. En notant $\delta(X)$ l'erreur commise sur la grandeur X , on peut écrire :

$$\delta(Z^*) = \frac{G^*/\omega \delta(\Delta C^*) + \Delta C^* \delta(G^*/\omega)}{(G^*/\omega)^2}$$

$$\delta(Z^*) = Z^* \frac{\delta(G^*/\omega)}{G^*/\omega} + \frac{\delta(\Delta C^*)}{G^*/\omega} \quad (IX,1)$$

ou encore puisque $Z^* = \mu + (\mu^2 + 1)\psi$

$$\delta(\psi) = \frac{1}{\mu^2 + 1} \left[Z^* \frac{\delta(G^*/\omega)}{G^*/\omega} + \frac{\delta(\Delta C^*)}{G^*/\omega} \right] \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \frac{\delta(G^*/\omega)}{G^*/\omega} = 0,02 \\ \delta(\Delta C^*) = 0,2 \text{ pF} \end{cases} \quad (\text{IX}, 2)$$

On a d'autre part :

$$\delta(\psi) = (A' + 2B's_w) \delta(s_w) \quad (\text{IX}, 3)$$

Les deux relations (IX,2) et (IX,3) permettent donc de calculer l'erreur commise sur la détermination de la saturation à partir de la mesure des grandeurs électriques ΔC^* et G^*/ω .

On retrouve notamment le fait que G^*/ω ne doit pas être trop faible, et doit donc être à 100 % relativement éloigné de son asymptote.

A titre indicatif, pour avoir une allure de l'évolution de l'erreur commise sur s_w , nous avons reproduit à la figure 36 les grandeurs $\delta(s_w)$ et $\frac{\delta(s_w)}{s_w}$ exprimées en pour cent pour des conditions moyennes de cellule ($k = 20\text{pF}$) lorsque l'on se place à la fréquence optima de mesure (c'est-à-dire un maximum de G^*/ω pour $s_w = 0,25$), et en supposant une loi de variation $\psi = B's_w^2$, qui ne change ni l'allure ni l'ordre de grandeur par rapport à la loi générale $\psi = A's_w + B's_w^2$ puisque le terme A' est toujours nettement plus faible que le terme B' .

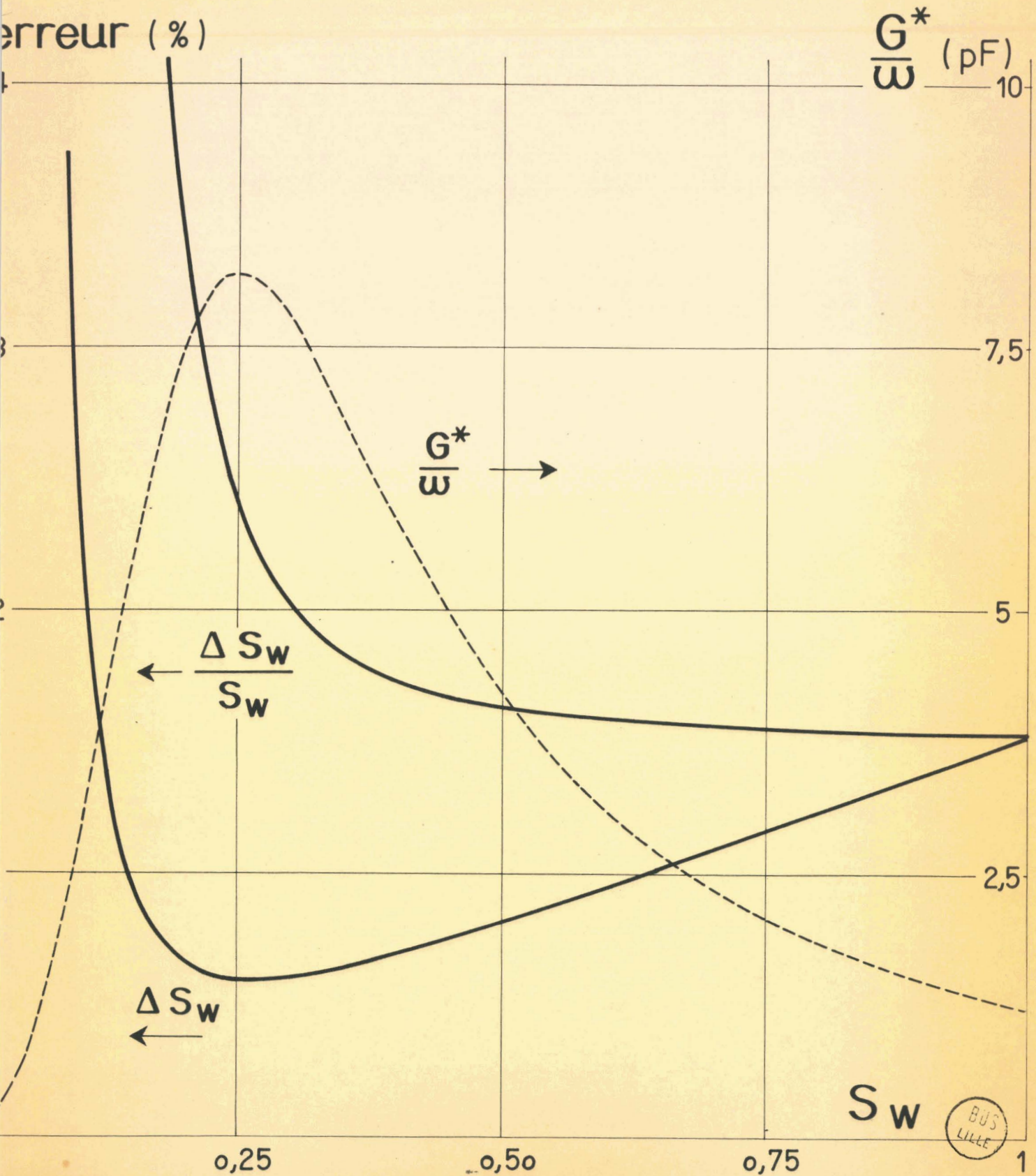
On note en particulier que l'erreur absolue $\delta(s_w)$ sur la saturation est dans toute la gamme des saturations utiles 0,1, 1 inférieure à 1,5 %. Compte tenu de l'erreur supplémentaire qui peut s'ajouter dans la détermination de la courbe d'étalonnage $Z^* = f(s_w)$, il est préférable de s'en tenir à une erreur en valeur absolue inférieure à 2 % aux saturations moyennes, de l'ordre de 3 % vers la saturation complète. Une telle précision est cependant très bonne, compte tenu de la complexité du problème.

Lorsque la conductivité de l'eau employée est telle que l'on ne puisse plus se placer à la fréquence f_m théorique de mesure, mais à la fréquence imposée $f = 10 \text{ MHz}$, G^*/ω devient alors plus faible aux fortes saturations, et la précision diminue vers ces fortes saturations sensiblement comme le rapport $\frac{10}{f_m}$. Il peut en outre s'introduire une erreur systématique par défaut par suite de la dérive aux faibles valeurs de G^*/ω du spectre observé par rapport à la valeur théorique résultant de la faible conductivité de la paroi. On peut cependant éliminer celle-ci par une correction. Cette dérive se traduit en effet par un terme de conductivité supplémentaire g tel que :

$$\frac{g}{\omega} = \frac{1}{\omega(R+r)}$$

fig. 36

évolution des erreurs absolue et relative
commises sur la saturation



R étant la résistance du milieu poreux
r la résistance des parois.

Compte tenu de la faible valeur de R par rapport à r

$$\frac{g}{\omega} \sim \frac{1}{\omega r}$$

expression que l'on peut déterminer pratiquement par la mesure de G^* lorsque l'intérieur de la cellule est court-circuité par du mercure. Il y a lieu de considérer alors à la place de G^* , l'expression ΔG^* , différence de G^*/ω prise à partir de la mesure pour la cellule remplie de mercure.

X. CONCLUSION

En dépit de la complexité apparente de ce phénomène de parois qui fait intervenir un grand nombre de paramètres propres aux deux couches, paramètres tant géométriques qu'électriques, cette étude montre cependant qu'il est tout à fait possible de contrôler le phénomène, et d'extraire avec une bonne précision les caractéristiques de la couche utile, dans le cas présent, en particulier, l'influence de la saturation. Ceci tient au fait que le spectre en fréquence consécutif à cet effet de parois entre les deux couches de diélectriques reproduit avec beaucoup de fidélité l'empreinte de chacune des couches. Ceci tient également au fait que la complexité du milieu poreux dans sa constitution microscopique laisse néanmoins apparaître une configuration électrique macroscopique qui se traduit par des lois relativement simples. C'est ce point surtout, peu évident a priori qui donne toute sa valeur à l'exploitation de l'effet de parois.

Il est bon toutefois de rappeler que pour tirer la meilleure partie de cette méthode de mesure, il convient de faire une étude préalable des conditions expérimentales, et de choisir correctement les paramètres régissant le phénomène.

QUATRIEME PARTIE

APPLICATION DE CETTE METHODE A L'ETUDE DES MASSIFS ARGILEUX

Chapitre XI.

XI.1 - G é n é r a l i t é s

Chronologiquement l'étude systématique du phénomène de parois tel qu'il a été décrit dans la deuxième partie, a été faite dans le but de mettre au point la mesure des saturations exposées dans les parties II et III, mais l'on s'est rendu compte assez rapidement qu'un tel dispositif était plus général et pouvait en particulier servir à l'étude des paramètres électriques ϵ' et ϵ'' d'un milieu quelconque disposé dans une cellule isolante. Les formules (IV,8) montrent en effet comment l'on peut éliminer par le calcul l'influence de la partie isolante, et déduire les grandeurs électriques de la couche utile. L'idée nous est donc venue de transposer ce dispositif à l'étude des milieux poreux argileux, par le biais de la détermination des paramètres électriques.

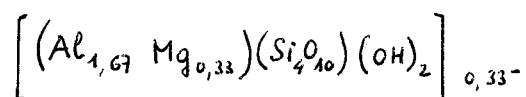
Les milieux poreux argileux présentent dans le domaine pétrolier un grand intérêt, car le modèle de milieu poreux étudié dans les parties précédentes, correspond surtout au cas des milieux recréés artificiellement pour l'étude des écoulements en milieux poreux sur modèles. Dans la pratique en effet, le squelette solide comporte souvent un certain pourcentage de particules argileuses qui, mises en contact avec la solution aqueuse, présentent des phénomènes plus complexes. Certains auteurs (réf. 29,30,31) ont étudié le comportement électrique en basse fréquence de tels milieux argileux mais avec des méthodes présentant les inconvénients exposés en introduction, aussi, nous a-t-il semblé utile de refaire cette étude en vue de vérifier leurs résultats avec une méthode beaucoup mieux adaptée, et beaucoup plus sûre dans ses résultats. Nous reproduisons ici cette étude pour montrer tout l'intérêt que peut avoir ce dispositif de mesure dans tout problème de mesure de conductivité ou de constante diélectrique.



XI.2 - Rappel de généralités concernant les argiles

XI.21) Constitution des particules argileuses (réf. 32)

Les particules argileuses se présentent généralement sous la forme de plaques de $1000 \text{ \AA}$ à 1μ de diamètre et de quelques Å d'épaisseur. Ces plaques correspondent à un empilement de quelques feuillets élémentaires formés par un réseau provenant d'un assemblage régulier de mailles élémentaires bien définies. Ces feuillets présentent un excédent de charges négatives. Dans le cas de la Montmorillonite, que nous avons étudiée, la formule de la maille est la suivante :



L'origine de la charge négative est due à un déséquilibre du bilan électrique résultant de la substitution dans le réseau, d'ions Mg bivalents à des ions Al trivalents. La neutralité électrique de l'ensemble est rétablie par la présence à la surface des plaques d'une atmosphère d'ions positifs appelés cations compensateurs. Ces ions compensateurs créent une charge par unité de surface qui est constante et caractéristique de l'argile. La charge totale est donc proportionnelle à la surface totale de l'argile, donc par suite de sa structure, à la quantité totale de l'argile.

XI.22) Les particules argileuses en présence d'une solution d'électrolytes

En présence d'une solution aqueuse d'électrolytes, la distribution des charges d'espace n'est pas uniforme en tout point de la phase liquide : les cations s'accumulent au voisinage de la surface chargée négativement tandis que les ions négatifs sont repoussés de la paroi.

L'allure des concentrations de chacune de ces particules en fonction de la distance à la surface est reproduite sur la figure 37.

Les auteurs (réf. 33,34,35) s'accordent généralement à idéaliser cette répartition ionique au voisinage des particules argileuses sous la forme d'une double couche ionique comprenant une couche ionique adsorbée à la surface (couche de Stern) et une couche

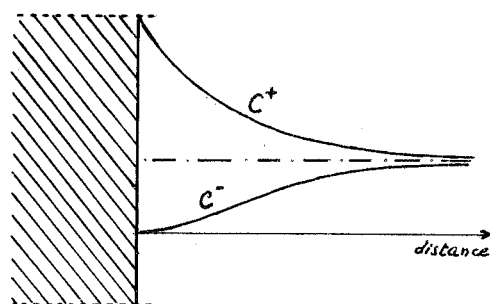


Fig. 37

diffuse (couche de Gouy) dont l'extension jusqu'à l'infini est régie par les forces thermiques et les propriétés spécifiques des ions. A cette couche ionique correspond un profil des potentiels électriques ψ reproduit sur la figure 38, et régi par l'équation de Poisson $\frac{d^2\psi}{dx^2} = \frac{\rho}{\epsilon}$.

Le potentiel varie linéairement dans la couche adsorbée, et décroît jusqu'à zéro dans la couche diffuse.

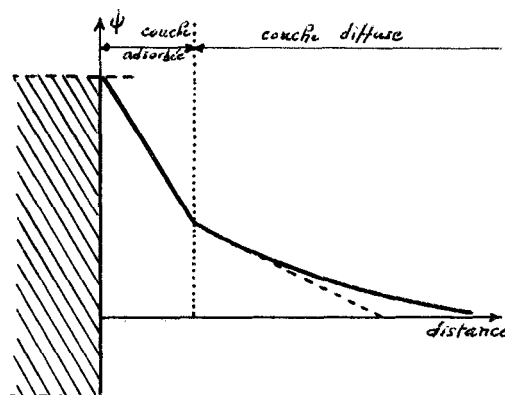


Fig. 38

On définit généralement une épaisseur moyenne de couche diffuse en considérant une densité de charge constante (potentiel variant linéairement), ou ce qui revient au même, par la distance du barycentre des charges d'espace. L'épaisseur équivalente ainsi définie dépend beaucoup de la concentration de la solution aqueuse.

Corrélativement à la formation de cette double couche, il peut y avoir échange d'ions entre la solution d'électrolyte et les cations de l'argile échange d'ions qui se fait en équivalent, et qui ne changera pas la conductivité de la solution dans la mesure où ces cations possèdent une mobilité voisine.

Le surcroît d'ions existant dans la double couche ionique, et provenant de l'argile, crée une conductivité superficielle des particules argileuses. Par rapport à un milieu poreux sans argile, il faut donc s'attendre à un supplément de conductivité apporté par cette conductivité superficielle. C'est l'étude de ce supplément de conductivité qui a été faite.

XI.3 - Comportement électrique d'un massif argileux

XI.31) Conditions expérimentales

- Les conditions électriques ont été, au cours de cette étude, celles définies dans la partie II. Le massif à étudier a été placé dans une cellule isolante en verre, et ses grandeurs électriques ϵ' et ϵ'' ont été déterminées à partir des grandeurs C^* et G^*/ω apparentes par les formules (IV,8). La fréquence choisie est 6,3 MHz.

- La cellule isolante est une cellule cylindrique, en verre de capacité $K = 20$ pF, de constante diélectrique $\epsilon_1 = 4,85$ et de paramètre $\epsilon_2 = 50$.

- Les massifs étudiés ont été constitués par un mélange homogène d'un sable classé de fine granulométrie (dimension 80-100 μ) et de Montmorillonite calcique naturelle provenant du gisement de Camp -Berteau (Maroc). Cet argile a été choisie parce qu'elle présentait une charge superficielle uniquement calcique. La solution aqueuse a été une solution du même cation (Ca^{++} sous forme de Cl_2Ca) de façon à éviter tout échange d'ions entre l'argile et la solution. Les saturations ont été réalisées par mélange de quantités d'eau connues et contrôle par pesée.

- L'étude a comporté la détermination des pertes diélectriques ϵ'' et de la constante diélectrique ϵ' en fonction de la saturation en eau, lorsque l'on fait varier le pourcentage en argile par rapport à la quantité de masse solide (donc à porosité constante) et la concentration en électrolytes de la solution aqueuse, repérée en résistivité (variant depuis 0,2 jusqu'à 100 $\Omega \cdot \text{m}$). On a mesuré dans les mêmes conditions les pertes diélectriques d'un massif de sable de même porosité, c'est-à-dire dans lequel l'argile a été remplacée poids pour poids par du sable, et l'on s'est attaché à la différence entre ces deux courbes, c'est-à-dire la conductivité supplémentaire apportée par la présence de l'argile.

XI.32) Principaux résultats

321) La figure 39 montre l'un des exemples de courbes obtenues. Les pertes diélectriques ϵ'' suivent la loi parabolique ① attendue dans le cas du massif de sable, loi qui dans ce cas s'est révélée très voisine de la parabole $y = ax^2$. Dans le cas du massif argileux, les pertes diélectriques augmentent très rapidement aux faibles saturations, pour se stabiliser ensuite à une loi parabolique identique à celle du sable, mais décalée d'une valeur constante. Ce résultat est particulièrement apparent sur la courbe ③ donnant le supplément de pertes diélectriques $\Delta\epsilon''$, de la courbe ② par rapport à la courbe ①, et montre l'intérêt qu'il y a de considérer cette différence.

322) Comme dans le cas des sables propres la proportionnalité entre ϵ' et ϵ'' est conservée. Cette relation a été vérifiée indirectement à l'aide de la relation qui décrit le point P* de coordonnées K-C*, G^*/ω (cf fig.40).

Comme dans le cas des sables propres, le point P* décrit un arc de cercle, ce qui se traduit pour le point π par une relation linéaire entre les coordonnées $\{\epsilon', \epsilon''\}$ et ϵ'' .

Dans la suite les diagrammes ne montreront que les pertes diélectriques qui sont la grandeur déterminée avec la meilleure précision (erreur inférieure à 5 %) et nous raisonnerons en conductivités, celles-ci étant, à la fréquence fixe choisie, proportionnelles aux pertes diélectriques.

fig. 39

évolution en fonction de la saturation de la conductivité
d'un massif argileux, comparée à celle d'un massif
sans argile

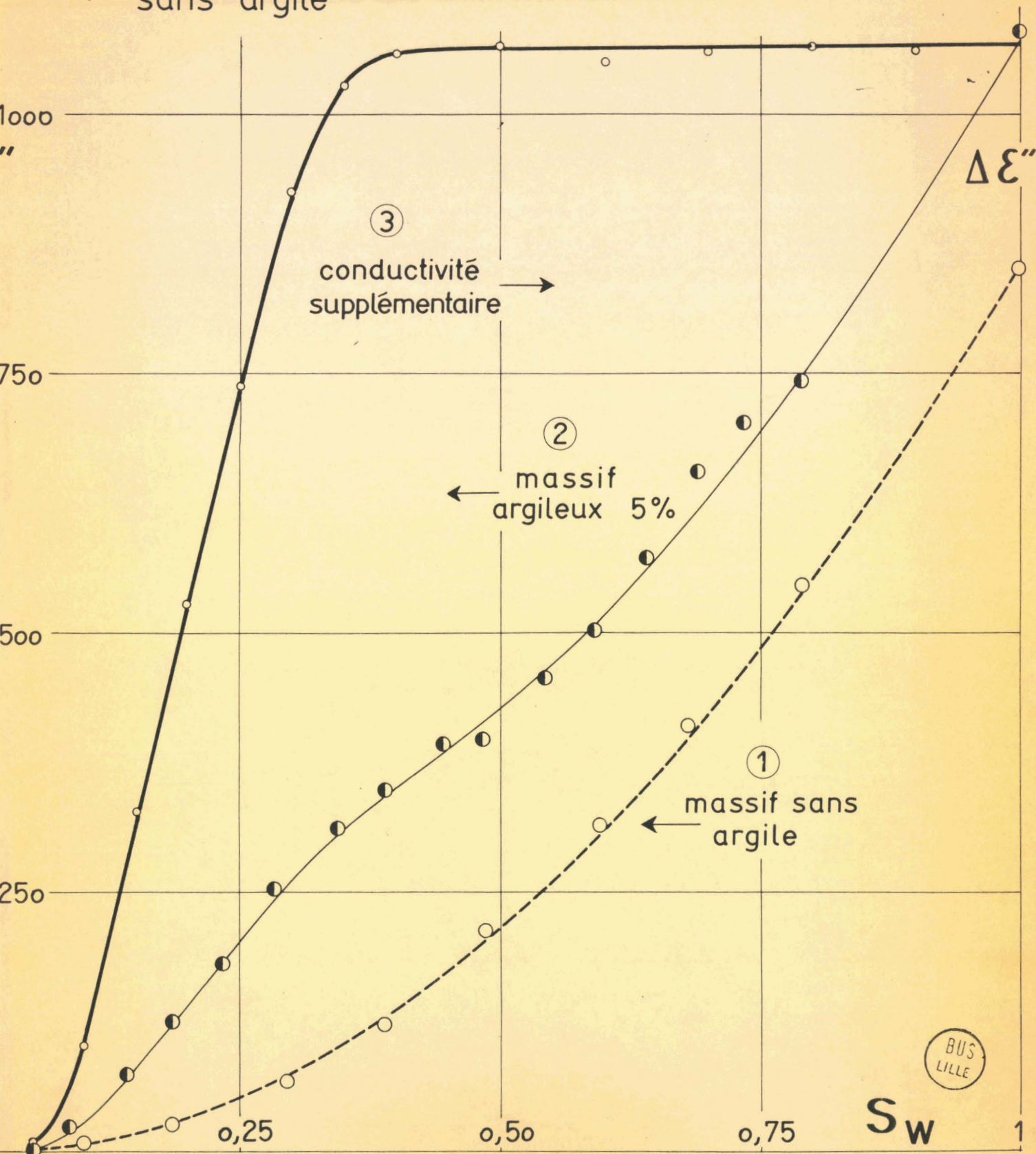
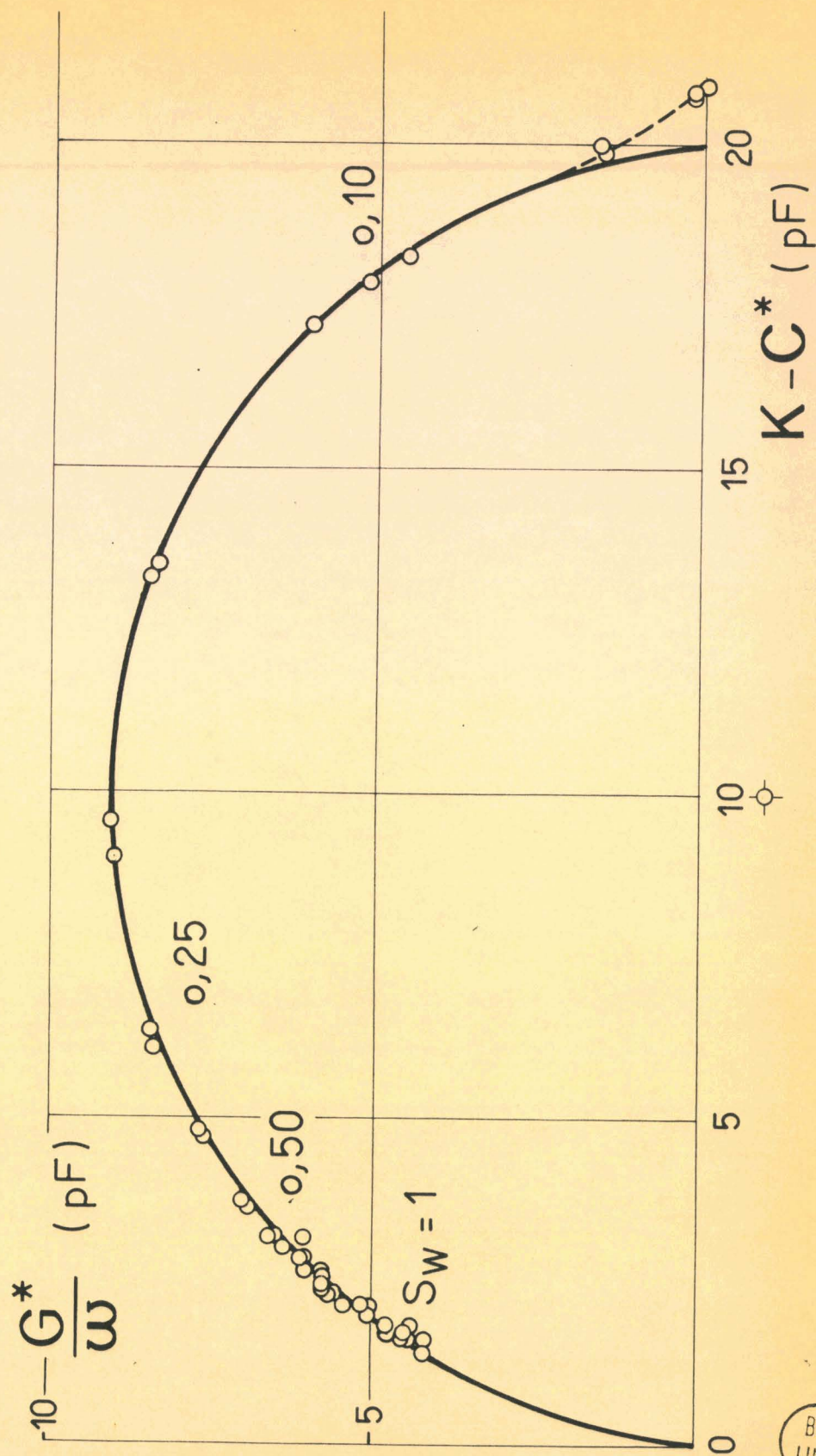


fig. 40

diagramme $(K - C^*) - G^*/\omega$ pour un massif argileux



323) A teneur d'argile constante, pour différentes valeurs de la concentration en électrolytes :

- L'étude à saturation complète en fonction de la conductivité de la solution montre que par rapport au cas des sables qui exprime une proportionnalité entre les conductivités du massif et de la solution

$$\sigma = \frac{1}{F_e} \sigma_w$$

le massif argileux donne lieu à une droite de même pente, décalée d'une certaine ordonnée à l'origine

$$\sigma' = \frac{1}{F_e} \sigma_w + b$$

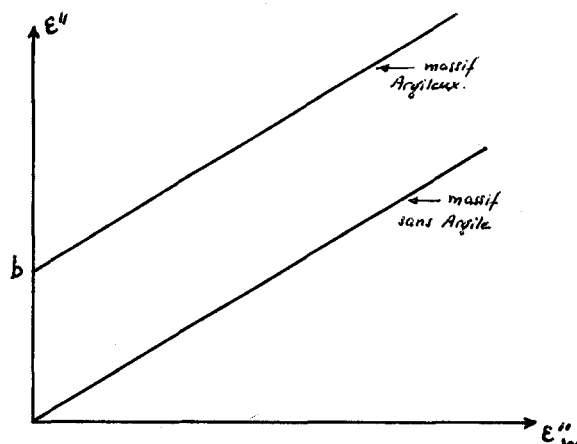


Fig. 41

- En fonction de la saturation, cette conductivité supplémentaire, tracée sur la figure 42 montre les propriétés suivantes :

- La conductivité supplémentaire est nulle ou très faible tant que la saturation est inférieure à une certaine saturation s_{w0} indépendante de la solution en électrolyte.
- Aux fortes saturations, la conductivité supplémentaire présente un palier de valeur b indépendant de la concentration de la solution en électrolyte, atteint d'autant plus vite que celle-ci est plus forte. Cet aspect apparaît nettement également sur la figure 41.
- Aux fortes concentrations en électrolytes ($\rho_w < 1 \Omega \cdot m$), la variation de cette conductivité est linéaire entre ces deux bornes en fonction de la saturation.

324) A concentration de solution constante, en fonction de la teneur en argile, le supplément de conductivité présente les caractéristiques suivantes (fig. 43) :

- La saturation s_{w0} correspondant à la naissance de la conductivité supplémentaire est proportionnelle à la teneur en argile.
- Il en est de même du palier de conductivité b .
- Aux fortes concentrations en électrolytes lorsque la partie croissante est linéaire, cette pente est conservée quelle que soit la teneur en argile.

fig. 42

évolution pour différentes valeurs de la résistivité
de la solution aqueuse, de la conductivité supplé-
mentaire en fonction de la saturation

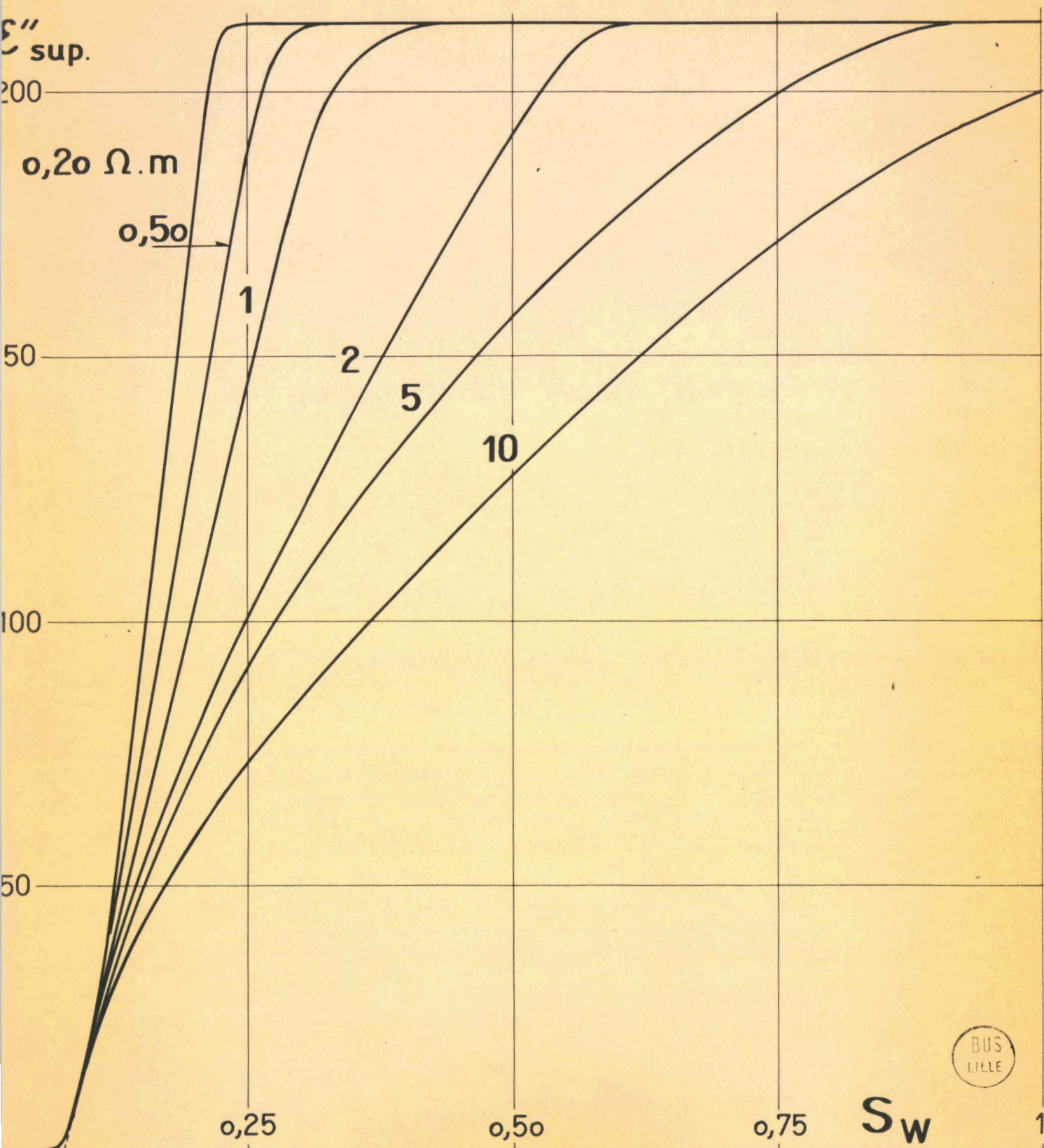
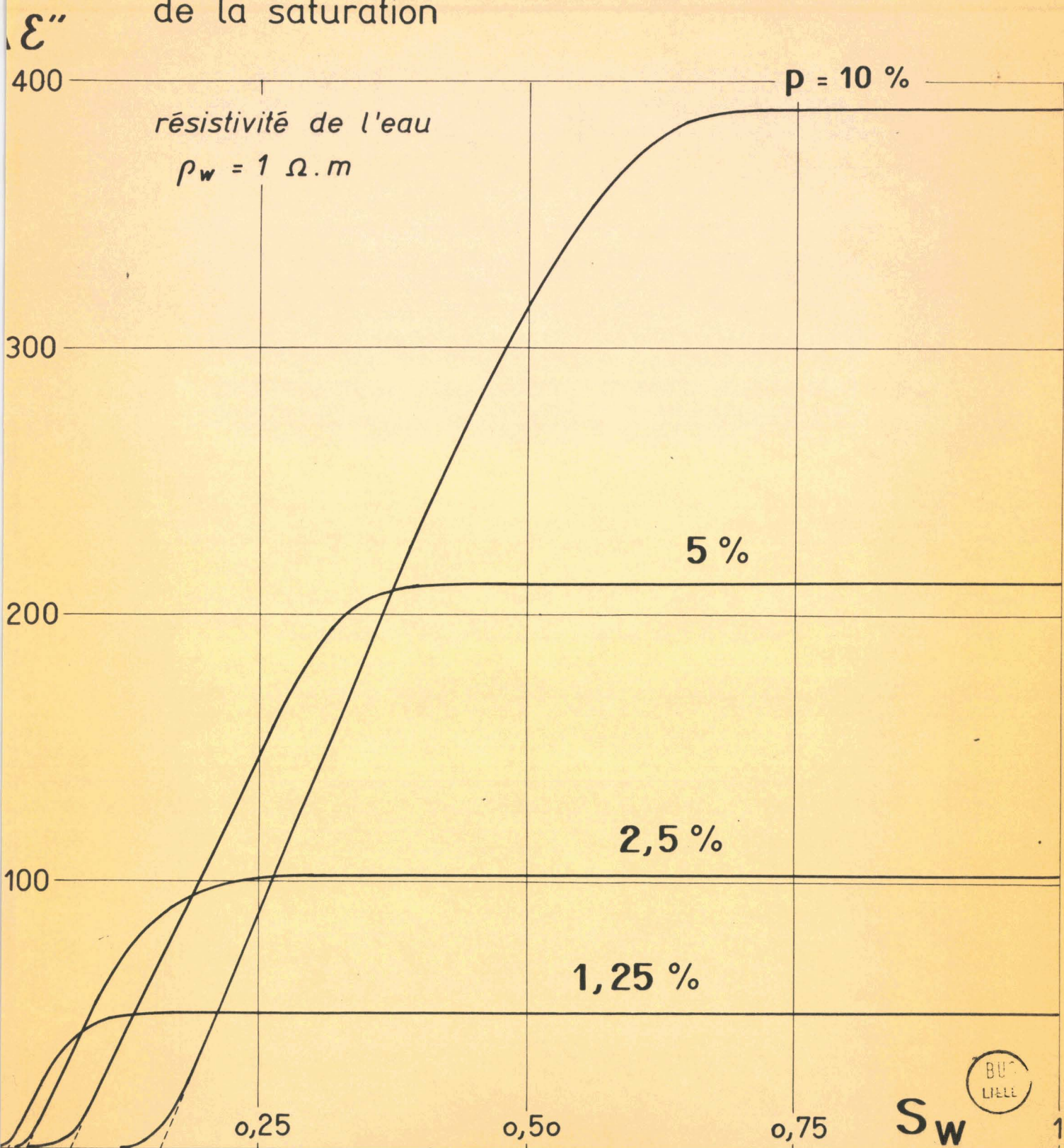


fig. 43

évolution pour différentes teneurs p en argile
de la conductivité supplémentaire en fonction
de la saturation



- Il en résulte que la saturation s_{w1} d'atteinte du palier de conductivités est également proportionnelle à la teneur en argile.

Tous ces résultats sont particulièrement simples, et laissent prévoir, nous allons le voir un comportement simple des particules argileuses elles-mêmes, et également des particules argileuses à l'intérieur du milieu poreux.

XI.4 - Interprétation du comportement électrique des massifs argileux, par l'introduction de la double couche

XI.41) Identification avec la conductivité superficielle

Le fait que l'augmentation de la teneur en argile se traduise en particulier par une augmentation de la conductivité supplémentaire dans le rapport des teneurs en argile, donc des surfaces des plaques argileuses sans aucune dépendance d'un facteur de forme quelconque introduit par le milieu poreux, confirme les idées admises généralement (réf. 29,30) à savoir que l'argile intervient dans la conductivité d'un milieu poreux directement sous la forme d'un terme de conductivité propre indépendant du milieu poreux et ne dépendant que de la quantité d'argile, donc de la surface des particules argileuses, et ceci bien que ces particules se trouvent à l'état dispersé d'une façon homogène dans le massif. Il est tout naturel d'admettre que ce terme représente directement la conductivité superficielle des particules argileuses, celles-ci s'ajoutant directement en parallèle à la conductivité apportée par l'eau remplissant les pores.

XI.42) Influence de la double couche ionique

La nette dépendance de la conductivité superficielle avec la concentration en électrolyte de la solution aqueuse incite à relier cette conductivité à la présence de la double couche ionique, qui, nous l'avons dit, dépend beaucoup de ce facteur.

Cette double couche ionique est due à la mise en solution des cations compensateurs de l'argile. Une fois tous ces cations mis en solution, on conçoit l'atteinte d'un état d'équilibre pour la double couche, défini par le nombre de cations compensateurs par unité de surface et par la concentration de la solution, qui fixe à la fois la répartition des charges dans cette double couche et son épaisseur équivalente. Cet équilibre n'est plus alors altéré par un apport supplémentaire d'eau, cet apport supplémentaire ne venant plus que remplir progressivement les pores d'eau libre, suivant le même processus que dans les sables sans argile. Ceci suppose évidemment que les dimensions des pores sont supérieures à l'épaisseur équivalente de la double couche ce qui est en général le cas. Cet état d'équilibre

pour la double couche ionique correspondant à la mise en solution de l'ensemble des ions de l'argile, se traduit par un palier pour la conductivité superficielle, palier qui est donc proportionnel à la surface de l'argile, donc également à la teneur en argile. Ce palier est indépendant de la concentration en électrolytes de la solution, sauf vraisemblablement aux très fortes concentrations, où la mobilité ionique pourrait être diminuée par les interactions mutuelles des ions, que nous avons négligées, et aux très faibles concentrations, où, si ce palier était atteint, il pourrait être affecté par l'échange d'ions qui se produit avec les ions de nature différente présents à l'état d'impuretés, soit dans la solution, soit à la surface de l'argile, et de mobilité différente.

Suivant cette interprétation, la saturation s_{w1} d'atteinte de ce palier, correspond à la quantité d'eau nécessaire pour saturer la double couche et est donc proportionnelle à la quantité d'argile donc à la surface totale des particules argileuses, le coefficient de proportionnalité étant l'épaisseur de la double couche δ . Lorsque l'on porte cette saturation s_{w1} en fonction de la résistivité de la solution ρ_w , on trouve une courbe du type parabolique (fig. 44).

Ce résultat est identique aux résultats expérimentaux et théoriques reliant l'épaisseur δ de cette double couche (réf. 32,34,36,37) à la concentration c de la solution par une formule du type

$$\delta = \delta_0 + \frac{\alpha}{\sqrt{c}} \quad (\text{XI}, 1)$$

δ_0 étant l'épaisseur de la première couche absorbée.

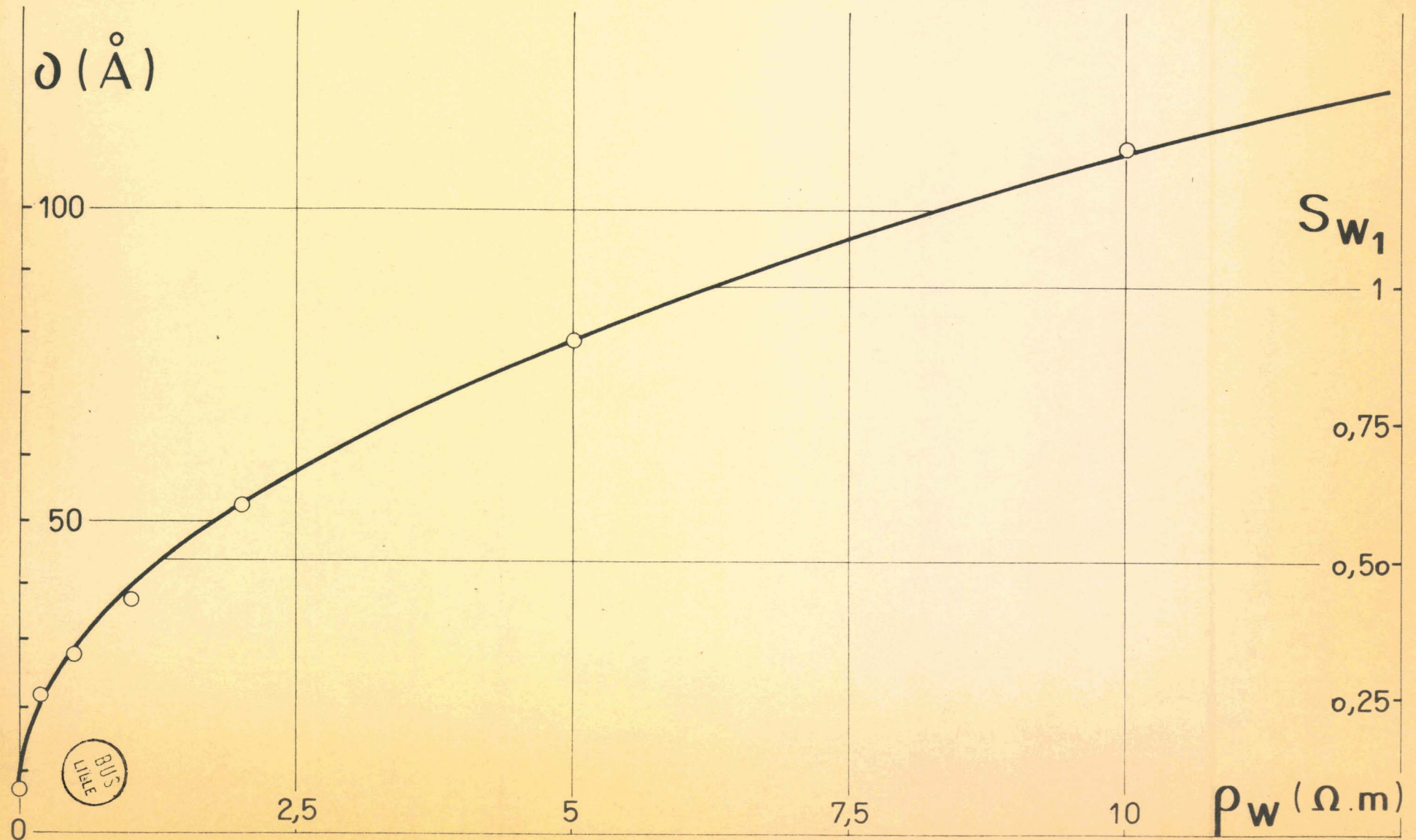
Les épaisseurs de couches déduites de la connaissance de cette saturation d'atteinte du palier de conductivité superficielle varient entre quelques Å° et quelques dizaines d'Å°, valeurs du même ordre de grandeur que celles généralement admises.

XI.43) Cas des très faibles saturations

La correspondance entre la saturation d'atteinte du palier s_{w1} et l'épaisseur de la double couche ionique, incite à faire correspondre à la saturation s_{w0} de démarrage de la conductivité superficielle, la première couche adsorbée. Les résultats expérimentaux montrent que l'épaisseur de cette couche déduite de ces considérations serait de 7,5 Å°. On sait d'autre part que la fixation des molécules d'eau adsorbées sur les feuillets argileux se fait suivant un réseau lié à celui de l'argile. Dans le cas de la Montmorillonite, ces molécules peuvent se fixer suivant plusieurs couches à raison de trois molécules d'eau par maille, et par couche, au sommet de triangles équilatéraux décalés formant un réseau hexagonal lié au réseau de l'argile (fig. 45). Le calcul théorique donne dans ces conditions et en supposant

fig. 44

relation entre l'épaisseur de la double couche ionique , et la résistivité de la solution aqueuse



deux couches adsorbées une épaisseur $\delta_0 = 7,65 \text{ \AA}$ valeur en bon accord avec la valeur expérimentale précédente et qui confirme cette hypothèse.

Cette première couche d'eau adsorbée ne participe pas à la conduction. En attendant les résultats de certaines expériences en fonction de la fréquence, il est probable qu'il faut voir ici comme certains auteurs (réf. 38, 39) les résultats d'un mécanisme de relaxation en basse fréquence qui se traduirait à la fréquence

choisie $f = 6,3 \text{ MHz}$ par une faible constante diélectrique, et de faibles pertes diélectriques, ce mécanisme de relaxation résultant d'un phénomène de polarisation dont il est d'ailleurs difficile de déterminer l'origine exacte.

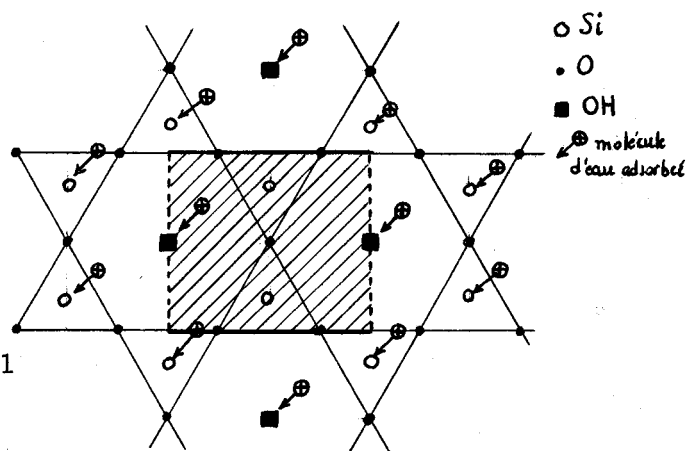


Fig. 45

XI.5 - C o n c l u s i o n s

L'introduction de la notion de double couche ionique, couche bimoléculaire adsorbée, et couche diffuse, permet donc de comprendre l'ensemble des phénomènes électriques accompagnant le processus de saturation des massifs argileux, ainsi que ce processus lui-même qui se fait successivement suivant les trois mécanismes ci-après :

- Formation de la première couche adsorbée,
- Formation de la couche diffuse,
- Remplissage des pores par l'eau libre comme dans le cas des massifs sans argile.

Les résultats expérimentaux montrent d'autre part que, au cours de ces trois mécanismes de saturation, les particules argileuses interviennent au point de vue électrique par l'addition d'un terme supplémentaire en parallèle, qui ne dépend que de la quantité de celles-ci. On peut ainsi, tout au moins dans le cas des fortes concentrations en électrolytes de la solution donner une équation traduisant la conductivité des massifs argileux en fonction de la saturation en eau s_w , et du seul paramètre p teneur en argile :

$$\sigma' = \sigma + p \sigma_{sh} \quad (\text{XI}, 2)$$

dans cette expression σ est la conductivité due à l'eau libre remplissant les pores, elle s'exprime comme dans le cas des massifs sans argile par une relation parabolique du type $\sigma = A s_w + B s_w^2$

σ_{sh} est la conductivité des particules argileuses, et prend plusieurs forme suivant l'étape de saturation :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \sigma_{sh} = 0 & \text{pour } s_w < s_{w_0} \\ \sigma_{sh} = b \frac{s_w - s_{w_0}}{s_{w_1} - s_{w_0}} & \text{pour } s_{w_0} < s_w < s_{w_1} \\ \sigma_{sh} = b & \text{pour } s_{w_1} < s_w < 1 \end{array} \right. \quad (XI, 3)$$

Les saturations caractéristiques s_{w_0} et s_{w_1} sont respectivement égales à $S\delta_0$ et $S\delta$, S étant la surface totale des particules argileuses et δ et δ_0 étant définis en fonction de la résistivité ρ_w de l'eau par la courbe de la figure 44.

Pour la saturation totale $s_w = 1$ et lorsque $s_{w_1} < 1$, c'est-à-dire lorsque le palier b de conductivité superficielle est atteint, on retrouve la formule proposée par certains auteurs (réf. 29, 30), à savoir exprimée en termes de résistivités, l'équation :

$$\frac{1}{R'} = \frac{1}{R} + \frac{P}{R_{sh}}$$

R étant la résistivité du massif sans argile correspondant, c'est-à-dire dans lequel les particules argileuses conductrices sont remplacées par des particules isolantes de sable. Le terme $1/R$ est généralement écrit sur la forme équivalente $\frac{1}{F_e R_w}$ faisant intervenir le facteur de formation du massif ainsi défini.

Les formules (XI,2) et (XI,3) ne font donc que confirmer dans un cas plus général les équations précédemment admises dans le cas des très basses fréquences.

C O N C L U S I O N

La majeure partie de ce travail repose essentiellement sur le concept de polarisation interfaciale qui, nous l'avons vu, résulte dans un diélectrique hétérogène de la possibilité pour les porteurs de charges de se déplacer et de se fixer sur la surface limitant les zones de nature différente constituant ce diélectrique.

Cette propriété microscopique réagit sur le comportement diélectrique de celui-ci, c'est-à-dire sur les deux grandeurs caractéristiques de la permittivité complexe, la constante diélectrique ϵ' et les pertes diélectriques ϵ'' (que nous avons relié à la conductivité σ), ϵ' et σ cessant d'être des constantes en courant alternatif, mais devenant des fonctions complexes en fonction de la fréquence de ce courant. Nous avons pu mettre en évidence dans le cas des milieux poreux envisagés, cette propriété, mais les spectres en fréquence obtenus ne nous ont pas permis encore d'en tirer des renseignements sur la morphologie microscopique de ces milieux poreux.

Par contre, en dépit de leur complexité microscopique, ces milieux poreux présentent à fréquence fixe une configuration électrique macroscopique qui se traduit par des lois simples. Ceci nous a permis d'exploiter un autre aspect de la polarisation interfaciale : celle qui se produit aux surfaces de contact séparant ce milieu poreux considéré comme globalement homogène, d'une paroi isolante. Un tel ensemble parois + milieu poreux se comporte comme un diélectrique unique, qui disposé entre les armatures d'un condensateur se manifeste par une capacité et une conductance "apparentes" aisément mesurables. Nous avons expliciter ces deux grandeurs en fonction des paramètres tant électriques que géométriques définissant les deux couches diélectriques, et notamment la saturation en eau, et nous avons fait apparaître une combinaison sans dimensions de ces grandeurs apparentes, le rapport $\frac{\Delta C^*}{G^*/\omega}$ des variations de capacité aux variations de conductance, qui suit une loi simple en fonction de la saturation, aisément utilisable pour une mesure non destructive de ce paramètre.

La mise en oeuvre pratique d'une méthode de mesure basée sur cette propriété est aisée. En dépit de la complexité apparente résultant du grand nombre de paramètres intervenant effectivement, on peut aisément contrôler l'influence de chacun de ceux-ci et en déduire des conditions de mesure optima permettant d'atteindre les paramètres utiles, la saturation en eau notamment, avec une bonne précision. Ceci tient naturellement au fait que, nous l'avons dit, le spectre des grandeurs apparentes envisagées reproduit très fidèlement l'empreinte de chacune des couches.

La dernière partie de ce travail enfin, montre qu'une telle méthode est assez générale. Ce point mérite d'être noté, car le dispositif de la cellule de mesure, avec une paroi isolante séparant les électrodes de mesure du milieu à étudier, présente des avantages certains. Les grandeurs apparentes résultant de ce dispositif et les grandeurs réelles du milieu interposé entre les parois sont en fait reliées par une propriété géométrique simple, une inversion, ce qui permet de remonter aisément à ces grandeurs réelles, à partir des grandeurs mesurées. Nous avons montré les résultats que l'on peut tirer, par cette méthode, concernant le processus de saturation en eau des milieux poreux argileux, à titre d'exemple, mais il apparaît clairement que cette méthode peut être généralisée à tout problème où il s'agit de mesurer ou de contrôler les paramètres diélectriques propres à une phase solide ou fluide, ou des paramètres qui leur sont liés. Un tel résultat ouvre certainement des possibilités pour l'étude des milieux poreux et d'une façon générale de tout mélange hétérogène de deux phases de conductivité ou de constante diélectrique différentes.

TABLEAU DES NOTATIONS

Remarque :

- les indices h, w et g représentent respectivement l'huile, l'eau et le gaz,
- toutes les lettres notées d'un * représentent les valeurs apparentes résultant de l'effet des parois.

A, A', B, B'	Constantes
b	Constante
C	Capacité
c	Concentration en électrolytes de la phase aqueuse
C_o	Capacité active des électrodes
$\vec{D}_o$	Vecteur excitation du champ électrique
d	Epaisseur de milieu poreux
d_1	Epaisseur des parois
$\vec{E}_1$	Vecteur champ électrique
F	Facteur de forme des particules conductrices
F_e	Facteur de formation
f	Fréquence
f_o	Fréquence du maximum de l'effet de parois
f_M	Fréquence optima de mesure
G	Conductance
$(G/\omega)_o$	Amplitude maxima du phénomène de parois
G_1	Conductance de la résistance de mesure du G-B mètre
$G(\tau)$	Fonction de distribution des temps de relaxation
h	Hauteur des électrodes
$\mathcal{J}(X)$	Partie imaginaire de X
j	Nombre imaginaire unité
K	Capacité des parois isolantes
k	Constante

$\vec{P}$	Vecteur polarisation
P_o	Polarisation statique
P_∞	Polarisation correspondant à une fréquence hertzienne infinie ($\sim 10^{11} \text{ Hz}$)
P_d	$P_o - P_\infty$
p	Pourcentage de particules (chap. V)
p	Teneur en argile (chap. XI)
R	Résistance, ou rayon de courbure (§ VII,3)
R_1	Résistance du G-B mètre
R_{sh}	Résistance des particules argileuses
$\Re(X)$	Partie réelle de X
r	Rayon de courbure (§ VII,3), résistance
S	Surface des électrodes
s	Saturation
S_{w0}	Saturation en eau de démarrage de la conductivité superficielle (chap. XI)
S_{w1}	Saturation en eau d'atteinte du palier de conductivité superficielle (chap. XI)
t	Temps
V	Volume (chap. I)
V_p	Volume des pores
V_T	Volume total de milieu poreux
V	Tension (chap. VI)
Y	Admittance
Z^*	$\frac{\omega \Delta C^*}{G^*}$
α	Polarisabilité (chap. II) - angle
δ	Angle de perte (chap. II)
δ	Épaisseur de la double couche ionique (chap. XI)
δ_o	Épaisseur de la première couche adsorbée
$\delta(X)$	Erreur commise sur la grandeur X
ϵ	Constante diélectrique complexe ou permittivité
ϵ'	Constante diélectrique réelle

ϵ''	Pertes diélectriques
ϵ_0	Constante diélectrique statique
ϵ_0	Constante diélectrique du vide = $8,854.10^{-12}$ dans le système international
ϵ_∞	Constante diélectrique pour les très hautes fréquences
ϵ_s	Constante diélectrique du massif sans eau
ϵ_1	Constante diélectrique des parois isolantes
θ	Complément du demi angle d'ouverture des électrodes (chap. VII)
μ	Constante de proportionnalité entre ϵ' et ϵ''
ξ	$\frac{K/\epsilon_1}{C_0}$ rapport entre la capacité active des parois et celle du massif
ρ	Résistivité
σ	Conductivité normalisée = $\frac{[\sigma]_{\Omega^{-1}.m^{-1}}}{\epsilon_0} = \frac{1}{8,854.10^{-12}} [\sigma]_{\Omega^{-1}.m^{-1}}$
σ_{sh}	Conductivité des particules argileuses
τ	Temps de relaxation
ϕ	Porosité
Ψ, Φ	Fonctions (chap. IV)
$\psi = \psi(s_w)$	Fonction parabolique de la saturation en eau, proportionnelle à ϵ''
ω	Pulsation du courant définie par la formule $\omega = 2\pi f$

Symbole des unités

Toutes les unités sont exprimées dans le système international.

Hz	Hertz ou cycle par seconde
MHz = 10^6 Hz	Megahertz
KHz = 10^3 Hz	Kilohertz
pF = 10^{-12} F	Picofarad
Ω x m	ohm x mètre, unité de résistivité
μ = 10^{-4} cm	Micron
$\text{\AA}$ = 10^{-8} cm	Angstroem

B I B L I O G R A P H I E

- 1 ARCHIE (C.E.) - Trans. AIME 146 p.54 (1942)
- 2 DUNLAP (H.F.), BILHARTZ (H.L.), SCHULER (E.) and BAILEY (C.R.) -
Journal of Petroleum Technology, vol.1, n° 10
(oct. 1949)
- 3 RUST (C.F.) - Journal of Petroleum Technology, vol.4, n° 9
(sept. 1952)
Journal of Petroleum Technology, vol.4, n° 12
(déc. 1952)
- 4 DE WITTE (L.) - The Oil and Gas Journal (25 Aug. 1950)
- 5 NOREL (G.) - Rapport Institut Français du Pétrole, réf.7281
(Avril 1962)
- 6 WINSAUER (W.O.), SHEARIN (H.M.), MASSON (P.H.), WILLIAMS (M.) -
Bull. of Amer. Assoc. of Petrol. Geologists
36, p.253 (fév. 1952)
- 7 VON HIPPEL (A.R.) - "Dielectrics and Waves" John Wiley and Sons Inc.
London (1954)
- 8 BOTTCHEER (C.J.F.) - "Theory of Electric Polarisation" Elsevier
Publis. Cy Amsterdam (1952)
- 9 CONSTANT (E.) - Thèse Faculté des Sciences de Lille (déc. 1962)
- 10 BOUE (J.) - Diplôme d'études Supérieures - Faculté des
Sciences de Rennes (1960)
- 11 BRIANT (J.) - Rapport Institut Français du Pétrole, réf.6385
(Mai 1961)
- 12 MAXWELL (J.C.) - "A Treatise on Electricity and Magnetism"
Oxford 3rd. Ed. vol.2, p.440 (1892)
- 13 WAGNER (K.W.) - Ann. Physik, 40, p.817 (1913)
- 14 WAGNER (K.W.) - Arch. Electrotech. 2, p.371 (1914)
- 15 KAUZMANN (W.) - Rev. of Modern Physics 14, p.12 (janv. 1942)
- 16 COLE (K.S.) and COLE (R.H.) - Journ. of Chem. Phys. 9, p.341 (1941)
- 17 FUOSS (R.M.) and KIRKWOOD (J.G.) - Journ. of Amer. Chem. Soc. 63,
p.385 (1942)
- 18 LORD RAYLEIGH - Phys. Magn. 34, p.481 (1892)

- 19 WIENER - Abhandl Math. Phys. Kl. Sachs Acad. Wiss.
(Leipzig) 32, p.507 (1913)
- 20 FRICKE (H.) - Physics 1, p.106 (1931)
- 21 FRICKE (H.) - Journal of Phys. Chem. 57, p.934 (1953)
- 22 SILLARS (R.W.) - Journ. of the Inst. of Elect. Eng. 80, p.378
(1937)
- 23 YAGER (W.A.) - Physics 7, p.434 (1936)
- 24 DAVIDSON and COLE - Journ. of Chem. Phys. 18, p.1417 (1950)
- 25 SIMANDOUX (P.) - Rapport Institut Français du Pétrole réf.7198
(Mars 1962)
- 26 JACQUIN (C.) - Rapport Institut Français du Pétrole réf.8280
(Mars 1963)
- 27 GABILLARD (R.) - Effet de cohération dans un milieu poreux
imprégné d'un liquide conducteur - I.R.E.L.
- 28 JACQUIN (C.), SIMANDOUX (P.) - Rapport Institut Français du Pétrole
réf.7852 (oct. 1962)
- 29 PATNODE (H.W.) and WYLLIE (M.R.J.) - Journal of Petrol. Technology
vol. 2, n° 2 (fev. 1950)
- 30 DE WITTE (L.) - The Oil and Gas Journal, p. 120 (25 Aug. 1950)
- 31 HILL (H.J.) and MILLBURN (J.D.) - Journal of Petrol. Technology,
vol.8, n°3 (Mars 1956)
- 32 DU BASTY (W.) - Rapport Institut Français du Pétrole, réf.7259
(Mars 1962)
- 33 VERWEY-OVERBEEK - "Theory of the Stability of Liophobic Colloids"
Elsevier Publ. Cy Amsterdam (1948)
- 34 GOUY - Journ. de Phys. 9, p.457 (1910)
- 35 STERN - Z. Electro. Chem. 30, p.508 (1924)
- 36 BIKERMAN (J.J.) - "Surface Chemistry" - Academic Press. Inc. Publis.
New-York, p.428 (1958)
- 37 BIKERMAN (J.J.) - Phil Mag 7, 33, p.384 (1942)
- 38 BIRKS (J.B.) - Editor. "Progress in Dielectrics" - Heywood
and Cy Ltd. London (1961)
- 39 MUIR (J.) - Trans. Farad. Soc. 50, p.249 (1954).
- 40 LEBRUN (A.), LOUAGE (F.) - C.R. Acad. Sciences, t. 253, p. 2204
(13-11-1961).

089364 295