



**HAL**  
open science

# Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide

Fabrice Golfier

► **To cite this version:**

Fabrice Golfier. Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide. Energie électrique. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2001. Français. NNT : 2001INPT037H . tel-00634112

**HAL Id: tel-00634112**

**<https://theses.hal.science/tel-00634112>**

Submitted on 20 Oct 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



# THESE

---

*présentée à*

L'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse

*pour obtenir le titre de*

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE  
DE TOULOUSE**

Spécialité : DYNAMIQUE DES FLUIDES

## **Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide**

par

**Fabrice GOLFIER**

Soutenue le 19 décembre 2001 devant le jury composé de :

**M. M. PRAT  
Mme B. BAZIN  
MM. A. MANGIN  
J.F. THOVERT  
P. BEHRA  
G. DACCORD  
M. QUINTARD**

**Président  
Examineur  
Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Directeur de thèse**

N° d'ordre : 1847

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>5</b>
1.1	Présentation du problème . . . . .	5
1.2	Echelle d'observation et méthode de changement d'échelle . . . . .	6
1.2.1	Les différentes échelles . . . . .	6
1.2.2	L'intérêt du changement d'échelle . . . . .	8
1.3	Objectifs de l'étude . . . . .	9
<b>I</b>	<b>Modélisation de la dissolution à l'échelle de Darcy</b>	<b>13</b>
<b>2</b>	<b>Etude bibliographique</b>	<b>15</b>
2.1	Etudes expérimentales . . . . .	15
2.2	Etudes numériques . . . . .	17
2.2.1	Modèle du tube capillaire . . . . .	17
2.2.2	Modèle réseau . . . . .	17
2.2.3	Approche adimensionnelle . . . . .	18
2.2.4	Modèle macroscopique . . . . .	18
2.3	Pourquoi un nouveau modèle ? . . . . .	19
<b>3</b>	<b>Etude expérimentale</b>	<b>21</b>
3.1	Choix du système . . . . .	21
3.2	Dispositif expérimental . . . . .	22
3.3	Résultats et discussion . . . . .	22
3.3.1	Figures de dissolution . . . . .	22
3.3.2	Propagation des wormholes et débit optimum d'injection . . . . .	24
<b>4</b>	<b>Modèle physique</b>	<b>29</b>
4.1	Equations à l'échelle du pore . . . . .	29
4.2	Equations à l'échelle de Darcy . . . . .	31
4.2.1	Equation macroscopique de l'écoulement . . . . .	31
4.2.2	Equations macroscopiques de transport et dissolution . . . . .	36
4.2.3	Problèmes de fermeture . . . . .	38
4.2.4	Mise sous forme adimensionnelle des équations . . . . .	42

<b>5</b>	<b>Modèle numérique</b>	<b>45</b>
5.1	Méthodes de résolution pour la partie écoulement . . . . .	46
5.2	Méthodes de résolution pour la partie transport et dissolution . . . . .	51
5.3	Résolution des problèmes de fermeture . . . . .	54
5.3.1	Coefficient de transfert de masse . . . . .	56
5.3.2	Tenseur de dispersion . . . . .	59
5.4	Formation des instabilités . . . . .	61
<b>6</b>	<b>Résultats et discussion</b>	<b>63</b>
6.1	Simulations 1D : propagation du front de dissolution . . . . .	63
6.1.1	Equilibre local (front de dissolution compact) . . . . .	63
6.1.2	Non-équilibre local (front de dissolution uniforme) . . . . .	66
6.2	Simulations 2D . . . . .	69
6.2.1	Régimes de dissolution . . . . .	69
6.2.2	Diagrammes de comportement . . . . .	74
6.2.3	Débit optimum d'injection et nombre de Damköhler optimum . . . . .	76
6.2.4	Etude adimensionnelle . . . . .	82
6.2.5	Aspect prédictif du modèle : comparaison avec les résultats expérimentaux et influence du choix des corrélations . . . . .	87
6.2.6	Application à des milieux 2D hétérogènes . . . . .	91
6.3	Extension du modèle en 3D : exemples de simulations . . . . .	96
6.4	Conclusions . . . . .	101
<b>II</b>	<b>Modélisation de la dissolution à l'échelle de la section</b>	<b>103</b>
<b>7</b>	<b>Etude bibliographique</b>	<b>105</b>
7.1	Introduction . . . . .	105
7.2	Intérêt d'une modélisation à l'échelle intermédiaire . . . . .	106
<b>8</b>	<b>Présentation du modèle</b>	<b>109</b>
8.1	Equation Macroscopique de l'écoulement . . . . .	109
8.2	Equation macroscopique de transport-réaction . . . . .	111
8.2.1	Dissolution en équilibre local ( $Da$ grand) : modèle double-milieu (à deux équations) . . . . .	111
8.2.2	Dissolution en non-équilibre local ( $Da$ petit) : Modèle simple-milieu ou à une équation . . . . .	114
8.3	Les coefficients effectifs : quelles corrélations ? . . . . .	117
8.3.1	Expression de la perméabilité macroscopique . . . . .	119
8.3.2	Expression du coefficient de transfert macroscopique . . . . .	124
8.4	Validation du modèle en 1D . . . . .	129
8.5	Conclusions . . . . .	134

<b>III</b>	<b>Conclusions et Perspectives</b>	<b>137</b>
<b>IV</b>	<b>Nomenclature, Annexes et Bibliographie</b>	<b>141</b>
<b>A</b>	<b>Corrélations pour les coefficients effectifs</b>	<b>147</b>



# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Présentation du problème

D'un point de vue général, le problème des écoulements réactifs en milieu poreux est rencontré dans de nombreux domaines d'applications : formations de dendrites dans la solidification des métaux en sidérurgie (Goyeau et al. 1999), évolution des fractures en géophysique (Bekri et al. 1997), formation des bassins karstiques (Groves & Howard 1994, Genthon et al. 2001) ou transport de polluants miscibles (NAPL par exemple) en hydrogéologie (Power & Abriola 1992, Miller et al. 1998) ou encore stimulations des puits par injection d'acide en génie pétrolier (Rowan 1959, Williams et al. 1979, Chang et al. 2001). Une des applications les plus originales, en particulier, est l'utilisation d'injection d'acide dans le sous-sol calcaire au Pays-Bas et la production de gypse qui en découle, par réaction de l'acide sulfurique sur le calcaire, pour rehausser le niveau du sol au dessus de l'altitude de la mer (Schuiling 1990, Speck et al. 1998).

En ce qui concerne l'industrie pétrolière, l'injection d'acide est une technique de stimulation fréquemment utilisée depuis plus de cinquante ans pour améliorer la productivité ou l'injectivité des puits. L'objectif recherché est l'augmentation de la perméabilité locale de la matrice. On peut distinguer deux types de traitements d'acidification :

- Les méthodes de *fracturation acide* pour des matrices initialement de faible porosité. La solution acide est injectée dans le réservoir à une pression suffisamment importante pour fracturer la matrice poreuse. Tandis que l'acide s'écoule le long de la fracture, il réagit avec la roche et érode les parois de la fracture. De cette manière, lorsque la pression hydraulique est stoppée et l'extraction mise en place, des fissures subsistent qui vont favoriser l'écoulement dans le réservoir.
- Les méthodes *d'acidification de matrice* lorsque le puits est endommagé. Ces endommagements sont généralement liés à des dépôts de particules organiques, d'émulsions qui obstruent partiellement ou totalement la zone autour du puits. L'acide est utilisé ici pour éliminer ces dépôts.

Une solution d'acide chlorhydrique relativement concentrée (typiquement 15%) est le réactif le plus couramment utilisé dans le traitement des carbonates.

La dissolution de la matrice poreuse est un processus instable similaire aux digitations

visqueuses (Daccord et al. 1986, Nittmann & Stanley 1987, Lenormand et al. 1988) qui conduit à la formation de canaux d'écoulement préférentiels appelés *wormholes*. Ces canaux ramifiés, dont la taille varie de celle du pore à quelques millimètres, sont le résultat d'instabilités générées par un couplage entre l'écoulement et la dissolution. Quand l'acide pénètre dans la formation rocheuse, il réagit avec le solide ce qui conduit à une augmentation de la perméabilité locale et donc du transfert de masse, entraînant par là même un accroissement de la dissolution. Les caractéristiques intrinsèques de la matrice poreuse (nature, perméabilité, hétérogénéité, réactivité, ...), les paramètres opératoires (débit d'injection, concentration de l'acide, ...) et les conditions thermodynamiques (pression, température) sont autant de facteurs jouant un rôle dans la mise en place des canaux de dissolution résultant de l'injection d'acide. Si, dans certains cas, la formation de ces wormholes est souhaitable (stimulation matricielle autour du puits par exemple), dans d'autres cas, on va chercher à limiter la pénétration de l'acide dans la formation (fracturation acide).

L'étude de l'injection d'une solution acide en milieu poreux revêt donc un intérêt capital dont le but est de prédire la formation ou non de wormholes, leur taille, profondeur et nombre moyens, la modification de perméabilité qui en résulte ainsi que le rôle des différents paramètres sur le résultat final.

Comme nous le verrons par la suite, les mécanismes physiques de dissolution peuvent être étudiés à différentes échelles (de l'échelle du pore à celle du réservoir).

## 1.2 Echelle d'observation et méthode de changement d'échelle

### 1.2.1 Les différentes échelles

La description d'un milieu poreux nécessite de préciser l'échelle d'observation à laquelle on se place. En ce qui concerne notre problème, 4 échelles d'observation sont distinguées (Fig. 1-1) :

- *L'échelle du pore* (échelle microscopique) où l'écoulement du fluide est décrit par la loi de Stokes. Deux phases sont ici considérées (phase fluide et phase solide) et la longueur caractéristique est celle du pore.
- *L'échelle de Darcy* (échelle locale) correspondant à un volume de milieu poreux suffisamment grand pour pouvoir l'assimiler à un milieu continu. Des propriétés locales telles que la porosité ou la perméabilité sont alors définies en tout point de l'espace. Cette échelle est caractérisée par la présence de deux régions distinctes : la région fluide du wormhole et la région de la matrice poreuse.
- *L'échelle de la carotte* (échelle de la section) où le volume de référence est suffisamment grand pour inclure les effets locaux de dissolution.
- *L'échelle du réservoir* (grande échelle) où la taille de la maille est de l'ordre de la centaine de mètres.

Nous bornerons notre étude aux trois premières échelles, la modélisation du processus de dissolution à l'échelle du réservoir étant au-delà de l'objectif de la thèse. A l'*échelle du pore*, la

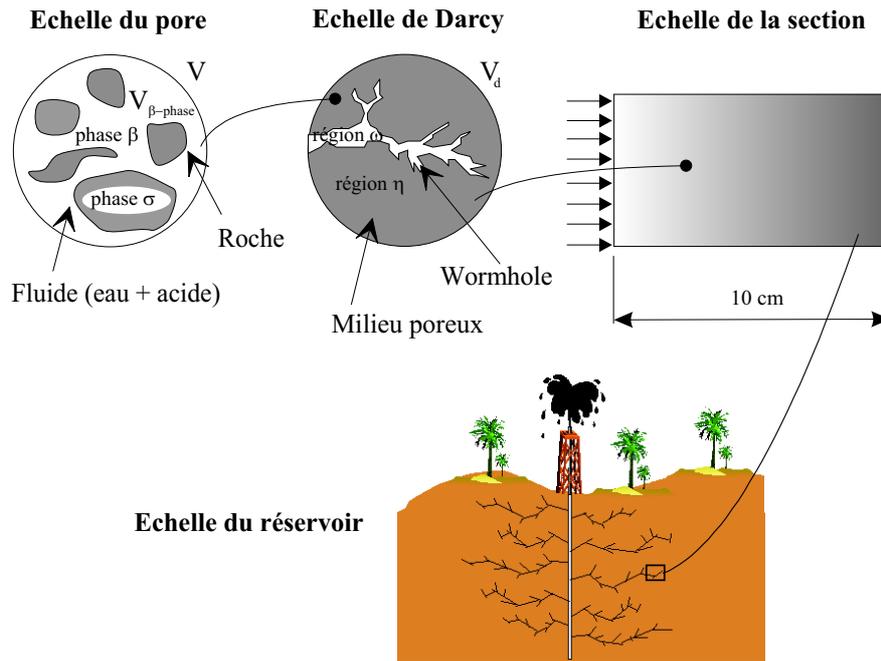


FIG. 1-1 – Les différentes échelles du problème

cinétique de dissolution est bien comprise. On peut distinguer trois principaux mécanismes à cette échelle (Daccord 1989, Fogler 1999).

1. Transport de l'acide par diffusion et advection jusqu'à la surface solide (transfert de masse),
2. Réaction chimique entre l'acide et la roche à la surface solide (réaction chimique),
3. Transport des produits de la réaction loin de la surface (transfert de masse).

Si le temps caractéristique de réaction chimique (étape 2) est très faible comparé à la cinétique de transfert (étape 1 et 3), l'acide est immédiatement consommé dès qu'il réagit avec le solide et le processus est dit *limité par le transfert de masse*. C'est le cas pour la dissolution de la calcite par l'acide chlorhydrique à des températures supérieures à  $0^\circ\text{C}$  (Lund et al. 1975). Dans le cas contraire, si la cinétique de transfert est lente, le processus est *limité par le taux de réaction*. C'est le cas par exemple pour la dissolution de la dolomie soumise à l'acide chlorhydrique pour des températures inférieures à  $50^\circ\text{C}$  (Lund et al. 1973). Nous restreindrons ici notre étude aux systèmes limités par le transfert de masse. Le modèle pourrait cependant facilement être adapté pour étudier l'autre classe de processus.

Il reste à définir une notion importante qui concerne les problèmes de changement d'échelle lorsque des hétérogénéités apparaissent : la notion de *non-équilibre massique local*, ce qui signifie dans notre cas que l'acide n'est pas immédiatement consommé dès qu'il s'infiltré dans le milieu poreux. Il est important de noter que cette notion est une notion macroscopique valable pour les échelles à partir de l'échelle de Darcy. La zone poreuse où se produit la dissolution est alors caractérisée par une porosité variable. A l'opposé, la dissolution en équilibre local conduit à un

front raide de dissolution entre la région fluide et le milieu poreux.

Il est important de souligner que l'hypothèse de réaction limitée par le transfert de masse, qui conduit à une condition limite de concentration nulle à l'interface liquide–solide à l'échelle du pore, ne doit pas être confondue avec l'hypothèse d'équilibre massique local, qui correspond à une concentration d'acide nulle à l'interface milieu fluide–poreux à l'échelle de Darcy. Ce sont deux mécanismes distincts à des échelles différentes, et une réaction limitée par le transfert de masse peut conduire aussi bien à un processus d'équilibre local que de non-équilibre local. C'est une différence majeure qui doit être soulignée car elle a souvent été à l'origine de confusions dans la littérature, spécialement dans les modèles de tube capillaire.

### 1.2.2 L'intérêt du changement d'échelle

La présentation de ces différentes échelles de description du problème nous amène au point suivant de notre travail : pourquoi un changement d'échelle ?

L'idéal serait bien entendu de pouvoir modéliser le phénomène de dissolution sur l'ensemble du réservoir à partir des propriétés microscopiques du domaine. La puissance de calcul des ordinateurs ne permet pas malheureusement à l'heure actuelle de simuler des modèles dont la taille des mailles coïncident avec l'échelle de mesure des paramètres. On utilise donc une technique de changement d'échelle pour diminuer le maillage. Ceci revient à affecter à chaque maille des propriétés physiques tenant compte des hétérogénéités à plus petite échelle.

L'objectif du changement d'échelle n'est donc pas de développer une représentation du réservoir dans son ensemble, mais plutôt de se donner les outils permettant de décrire le comportement de la maille et d'y affecter les nouvelles propriétés physiques propres à cette échelle.

Différentes méthodes de changement d'échelle existent, on peut citer : l'approche stochastique (Matheron 1965, GeHlar 1984, Dagan 1979, Dagan 1990), la théorie de l'homogénéisation (Sanchez-Palencia 1980), l'approche variationnelle (Rubinstein & Torquato 1989) et enfin la méthode de prise de moyenne volumique (Anderson & Jackson 1967, Marle 1967, Slattery 1967, Whitaker 1967). Une description détaillée de ces différentes approches et de leurs différences dépassent le cadre de ce travail.

Nous avons adopté ici la méthode de prise de moyenne volumique pour deux raisons. D'une part, elle n'entraîne pas d'hypothèses, du moins dans l'absolu, sur la microgéométrie du milieu (c'est aussi vrai pour d'autres méthodes comme la méthode d'homogénéisation) ; d'autre part, elle confère aux propriétés moyennées une signification d'un point de vue expérimental ce qui facilite la comparaison. Cette approche est basée sur la définition d'un opérateur de moyenne volumique qui associe à chaque grandeur microscopique la moyenne spatiale de la grandeur correspondante. Cette moyenne est définie sur un volume élémentaire, appelé V.E.R. (Volume Élémentaire Représentatif), suffisamment grand pour lisser les hétérogénéités microscopiques mais suffisamment petit pour conserver à la grandeur macroscopique un sens local. Nous en arrivons ainsi à l'idée fondamentale sur laquelle repose la théorie de prise de moyenne : la longueur caractéristique propre à une échelle donnée est très petite devant la longueur caractéristique de

l'échelle supérieure, ce qui peut s'exprimer plus simplement par la relation

$$l_\beta \ll l_\eta, l_\omega \ll L \quad (1.1)$$

où  $l_\beta$  représente la longueur caractéristique à l'échelle du pore,  $l_\eta$  et  $l_\omega$  les longueurs caractéristiques à l'échelle de Darcy respectivement pour la région poreuse et la région wormhole, et enfin  $L$  la longueur caractéristique à l'échelle de la section.

On peut ainsi définir la grandeur moyenne de la variable  $\Psi$  sur le volume  $V$  sous la forme :

$$\langle \Psi \rangle = \frac{1}{V} \int_V \Psi dV \quad (1.2)$$

$$= m_V * \Psi \quad (1.3)$$

où  $m_V$  représente la régularisatrice si l'on exprime la moyenne sous forme d'un produit de convolution (Matheron 1965, Anderson & Jackson 1967).

Nous rappelons ci dessous les théorèmes de prise de moyenne dont nous aurons aussi besoin par la suite :

$$\langle \nabla \Psi \rangle = \nabla \langle \Psi \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \Psi \mathbf{n}_{\beta\sigma} dA \quad (1.4)$$

$$\langle \nabla \cdot \Psi \rangle = \nabla \cdot \langle \Psi \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \Psi \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} dA \quad (1.5)$$

$$\left\langle \frac{\partial \Psi}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle \Psi \rangle}{\partial t} - \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \Psi \mathbf{w} \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} dA \quad (1.6)$$

où  $\mathbf{w}$  représente la vitesse de déplacement de l'interface  $A_{\beta\sigma}$ .

L'intérêt de la prise de moyenne est double : il permet d'obtenir une représentation macroscopique du problème considéré, compte tenu de certaines hypothèses, et de définir les nouvelles propriétés effectives, apparaissant lors du changement d'échelle, à travers un certain nombre de problèmes locaux sur des cellules représentatives, appelés *problèmes de fermeture*.

En ce qui concerne le problème étudié, le changement d'échelle appliqué au problème de dissolution à l'échelle du pore a fait l'objet de nombreuses études. Nous présenterons dans le chapitre 4 les éléments de ce problème ainsi qu'un modèle macroscopique approprié.

### 1.3 Objectifs de l'étude

Comme on le verra par la suite, les problèmes de changement d'échelle associés aux mécanismes de dissolution sont complexes, et à l'heure actuelle encore très ouverts. Nous ne cherchons pas ici à développer un modèle global de stimulation acide à l'échelle du réservoir mais plutôt à juger de la *capacité d'un modèle macroscopique à représenter la dissolution d'un milieu poreux*. Cette approche est envisagée à différentes échelles, à l'échelle de Darcy tout d'abord, puis,

compte tenu des résultats obtenus, à une échelle supérieure mais intermédiaire à l'échelle du réservoir.

Nous présentons tout d'abord dans le chapitre **2**, de manière non exhaustive, l'état de l'art sur le problème de dissolution en milieu poreux, pour des échantillons à l'échelle du laboratoire. Les différentes études réalisées, autant d'un point de vue expérimental que numérique, sont détaillées et comparées. Cette analyse met en lumière la nécessité de développer un nouveau modèle numérique permettant de décrire le mécanisme de propagation des wormholes.

L'étude expérimentale qui a servi à valider le modèle numérique est traitée dans le chapitre **3**. De manière à rendre aisé l'observation des figures de dissolution, un système eau-sel a été utilisé. Plusieurs séries d'expériences ont été réalisées en faisant varier le débit d'injection et la concentration de sel dans la solution. Les résultats, comparables à ceux d'un système acide-calcaire, sont rassemblés et présentés.

Une fois mise en place les équations décrivant l'écoulement et le transport-réaction à l'échelle microscopique ainsi que les conditions aux limites associées, nous nous intéressons au développement d'un modèle à l'échelle de Darcy en utilisant la méthode de prise de moyenne volumique. Nous adoptons une cinétique limitée par le transfert de masse associée à un modèle de non équilibre de masse local de manière à décrire l'ensemble des régimes de dissolution. Concernant l'équation de mouvement, nous utilisons une formulation de Darcy-Brinkman ce qui permet de simuler l'écoulement de manière continue aussi bien dans la zone fluide que dans les régions poreuses. Bien qu'à ce stade, nous disposions de la forme correcte des équations macroscopiques, ceci n'empêche pas les propriétés effectives, telles que la perméabilité, d'être dépendantes de l'historique de dissolution. Dans le modèle proposé, nous adoptons l'hypothèse que le processus historique peut être approximé par des relations directes entre les paramètres macroscopiques. Nous considérons, par exemple, que la perméabilité peut être reliée directement à la porosité, ce qui est une hypothèse classique en géochimie. Le problème est discuté en détail dans le chapitre **4**.

Le chapitre **5** est consacré à l'implémentation des méthodes numériques intervenant dans la résolution des équations macroscopiques. Une attention particulière est portée à la précision des schémas de transport. Les différentes méthodes sont ensuite validées sur des cas tests. La détermination des coefficients effectifs et la résolution des problèmes de fermeture sur des cellules unitaires est aussi présentée.

Finalement, les résultats des simulations 2D sont présentés et comparés aux résultats expérimentaux dans le chapitre **6**. La validité du modèle est tout d'abord testée en comparant la vitesse de propagation du front de dissolution 1D à la solution obtenue analytiquement. Il est montré que le modèle reproduit correctement les différentes figures de dissolution et met en évidence un débit optimum d'injection. L'influence des différents paramètres adimensionnels qui entrent en jeu est ensuite examinée, en particulier la relation entre le nombre de Damköhler et le débit optimum. Les résultats soulignent le rôle clé du nombre de Damköhler dans le mécanisme de propagation et l'importance de l'estimation du coefficient de transfert de masse dans le caractère prédictif du modèle. L'application possible du modèle à des milieux hétérogènes ou à des modélisations 3D est aussi mis en évidence.

Le modèle macroscopique à l'échelle de Darcy étant validé, il est possible de s'intéresser à une modélisation à des échelles supérieures. L'extrapolation directe des résultats de laboratoire à l'échelle du réservoir n'étant pas envisageable, il est nécessaire de passer par une échelle intermédiaire ou échelle de la section. Une présentation détaillée de cette démarche ainsi qu'une étude bibliographique sur les différents modèles simulant la dissolution à grande échelle est conduite dans le chapitre 7.

Les deux approches macroscopiques possibles, modèle à une équation et modèle à deux équations, sont détaillées dans le chapitre 8 et discutées en fonction de l'existence ou non de la condition de *non-équilibre local*. On retrouve là encore le problème de l'influence de l'historique de dissolution sur les coefficients effectifs et les corrélations reliant les grandeurs macroscopiques entre elles sont cette fois ci obtenues à partir des simulations réalisées à l'échelle inférieure. Des comparaisons avec des simulations de référence réalisées à l'échelle de Darcy permettent de juger de la pertinence de telles représentations.



Première partie

Modélisation de la dissolution à  
l'échelle de Darcy



## Chapitre 2

# Etude bibliographique

Nous allons présenter dans cette partie, les différentes approches, aussi bien expérimentales que numériques, utilisées jusqu'à présent pour étudier la dissolution en milieu poreux.

### 2.1 Etudes expérimentales

Les études expérimentales de dissolution ont été réalisées sur un large éventail de système fluide–minéraux, aussi bien dans le cas de processus limités par le transfert de masse que limités par le taux de réaction. Elles ont mis en évidence le développement d'instabilités, liées au couplage de l'écoulement en milieu poreux au processus de réaction chimique. Bien que la physique sous-jacente soit différente, la nature des instabilités est similaire à celle observée dans la formation de dendrites (Poirier 1987) ou le développement des digitations visqueuses (Daccord et al. 1986).

Hoefner & Fogler (1988) ont effectué des injections d'acide chlorhydrique dans des carottes rocheuses de calcaire ou de dolomite. Fredd & Fogler (1998*a*) et Fredd & Fogler (1999) ont étendu le champ de l'étude à des systèmes non limités par le transfert de masse (injection d'acide faible, d'agent gélifiant). La structure du wormhole obtenue est visualisée post-mortem, c'est-à-dire après percée de la carotte, soit en injectant un alliage à faible température de fusion (ex : métal liquide) et en dissolvant ensuite le milieu poreux soit grâce à la radiographie à neutrons. Outre les systèmes HCl-calcaires, Daccord, Lenormand & Lietard (1993) ont aussi étudié le plâtre soumis à l'action de l'eau dans diverses configurations expérimentales (géométrie circulaire et cylindrique). Wang et al. (1993) ont exploré les effets de la température, minéralogie, concentration de l'acide injecté et débit d'injection pour des carottes de dolomite et de calcaire d'Indiana ou de Glenn Rose. Bazin et al. (Bazin & Abdulhad 1999, Bazin 2000) ont conduit des expériences d'acidification aussi bien sur du calcaire que sur de la dolomite en testant différents types d'acide, comme par exemple les acides en émulsion ou les acides gélifiants (Chang et al. 2001, Lynn & Nasr-El-Din 2001). A notre connaissance, aucune expérience de dissolution n'a été réalisée sur le système eau–sel qui sera utilisé dans cette thèse.

Deux résultats fondamentaux peuvent être tirés de ces études. Premièrement, il existe *différents régimes de dissolution* qui sont fonction du débit d'injection, les autres paramètres

opératoires étant fixés. Si les résultats des différentes études expérimentales divergent sur le nombre exact de régimes de dissolution et sur leur terminologie, elles s'accordent néanmoins pour distinguer trois régimes principaux caractérisés par des mécanismes physiques bien distincts :

- **Un régime associé aux faibles débits où les processus diffusifs prédominent.** Les instabilités ne se développent pas ou pratiquement pas et on observe un front de dissolution de forme conique voire même plat qui se déplace lentement.
- **Un régime correspondant aux débits intermédiaires où le mécanisme convectif devient dominant.** Les instabilités se développent et on assiste à la propagation de wormholes plus ou moins ramifiés dans le milieu poreux.
- **Un régime observé aux hauts débits où le principe d'équilibre local n'est plus vérifié.** Les wormholes deviennent de plus en plus ramifiés et le front de dissolution est étalé. Des gradients de porosité apparaissent autour du front.

Une description plus détaillée des différents régimes de dissolution avec la terminologie associée, basée sur les travaux de Fredd & Miller (2000), sera donnée avec la présentation de nos résultats expérimentaux.

L'autre résultat important est la détermination du *débit d'injection optimum* (Hoefner & Fogler 1988, Wang et al. 1993, Bazin et al. 1995). Il correspond au volume minimum d'acide à injecter pour que le wormhole parcourt une longueur donnée, généralement la longueur du domaine étudié. Le débit optimum d'injection dépend de plusieurs paramètres, incluant la minéralogie de la roche (calcaire ou dolomite pour les formations carbonatées), la température et la concentration acide. L'influence des différents paramètres opératoires sur le processus d'injection acide a été étudiée en détail par Bazin & Abdulahad (1999). Pour résumer, on peut dire que le débit optimum augmente avec :

- la concentration d'acide injecté.
- La longueur de la carotte.
- La perméabilité.
- La température.

Il est observé que les conditions optimales sont liées à la formation d'un wormhole dominant avec peu de ramifications. Ce résultat montre une relation entre les régimes de dissolution et le débit optimum. Wang et al. (1993) ont fait d'ailleurs correspondre l'optimum au passage des conditions d'équilibre local au non-équilibre local. Quant à Hoefner & Fogler (1988) et Fredd & Fogler (1999), ils ont observé une dépendance entre le nombre de Damköhler et la propagation des wormholes. Ils ont ainsi pu déterminer une valeur optimum du nombre de Damköhler, appelé nombre de Damköhler optimum ( $Da_{opt} = 0.29$ ), correspondant au débit optimum d'injection, quelles que soient les conditions expérimentales. Il faut toutefois nuancer ce résultat en soulignant que les expériences ont été réalisées sur des échantillons de longueur identique et pour un nombre de pouvoir acide constant <sup>1</sup>. Par la suite, Fredd & Fogler (1999)

---

<sup>1</sup>Comme nous le verrons par la suite dans le chapitre 4, le nombre de Damköhler,  $Da$ , représente la quantité d'acide consommée sur la quantité d'acide amenée par convection tandis que le nombre de pouvoir acide,  $N_{ac}$ , traduit le pouvoir acidifiant de la solution.

ont observé que la structure du wormhole ainsi que le volume de pore injecté pour percer dépendaient aussi d'un second nombre adimensionnel, appelé paramètre cinétique  $\Gamma$ . Ce nombre adimensionnel représente le rapport entre la vitesse de réaction à la surface et le taux global de dissolution (il vaut 1 dans le cas d'une réaction limitée par le taux de réaction). La combinaison de ces deux nombres adimensionnels fournit, selon eux, une description complète de la formation des wormholes.

## 2.2 Etudes numériques

Différentes approches ont été développées pour représenter la formation du wormhole depuis les premiers travaux de Schechter & Gidley (1969) sur les modèles de croissance de pore.

### 2.2.1 Modèle du tube capillaire

L'approche la plus simple consiste à supposer qu'un wormhole de forme cylindrique s'est déjà développé (Hung et al. 1989, Wang et al. 1993, Buijse 1997, Huang et al. 1997, Huang et al. 1999, Gdanský & Van Domelen 1999). Dans les premiers modèles, le solide n'est pas poreux et la dissolution des parois du tube est simulée en résolvant l'équation de transport à l'intérieur des tubes. Le champ de vitesse est calculé en utilisant les équations de Darcy ou de Stokes (écoulement de Poiseuille) à l'intérieur du tube. Le champ de concentration est déterminé à partir des conditions de cinétique de dissolution réelles aux parois (concentration d'acide nulle dans le cas d'un processus limité par le transfert de masse) et en tenant compte de la diffusion moléculaire dans la phase liquide. Ce modèle simplifié donne une bonne compréhension du rôle des nombres adimensionnels contrôlant la dissolution. L'autre intérêt d'un tel modèle est d'illustrer la notion de changement d'échelle. Si la concentration est moyennée par section le long de l'axe du tube, la concentration moyenne n'est plus en équilibre avec la concentration aux parois, et un terme cinétique apparaît dans l'équation de transfert monodimensionnelle. Des améliorations ont par la suite été apportées telles que l'introduction de fuites aux parois (murs poreux) et de densité de population de wormholes (Huang et al. 1999). Cependant, ce modèle est basé sur une forme et une direction prédéfinies du wormhole et ne peut pas décrire les structures ramifiées observées au cours des expériences.

### 2.2.2 Modèle réseau

L'approche réseau revient à considérer la dissolution du solide à l'échelle des grains dans une structure bi ou tri-dimensionnelle. Généralement, l'espace entre deux pores est représenté par un cylindre capillaire. Contrairement au modèle précédent, la vitesse et la concentration ne sont pas résolues par les équations de Stokes mais remplacées par leurs propriétés moyennées. Le débit moyen est supposé être proportionnel à la différence de pression (loi de Poiseuille) et la dissolution proportionnelle à la vitesse et concentration moyennes (Hoefner & Fogler 1988, Daccord et al. 1989). Les simulations réseaux peuvent reproduire, du moins qualitativement, les tendances observées expérimentalement pour les régimes de dissolution et l'obtention d'un débit

optimum d'injection. La difficulté majeure dans l'approche réseau réside dans l'application à des systèmes à grande échelle, à cause du nombre limité de pores pris en compte dans les simulateurs. Outre le problème de la taille, l'approche réseau ne tient pas compte de la coalescence des pores, ce qui peut conduire à des difficultés de représentation du comportement de la zone fluide. Ceci peut expliquer les différences observées entre les données expérimentales et les résultats de simulation, en particulier pour le débit optimum comme précisé par Fredd & Fogler (1998*b*). Des essais pour obtenir un modèle physiquement plus représentatif ont été entrepris par Hoefner & Fogler (1988) et Fredd & Fogler (1999). Bien qu'une représentation de la géométrie et de la physique plus conforme à la réalité ait été introduite, ce type de modèle requiert encore une solution approximée pour l'évolution de l'interface aussi bien que pour la solution des équations de Navier-Stokes. En outre, cette approche n'a été développée que pour les lits de billes tassées.

### 2.2.3 Approche adimensionnelle

Une approche différente, utilisée en mécanique des fluides ou dans les processus thermiques, est basée sur le développement de corrélations à l'échelle de l'échantillon proprement dit (Daccord, Lenormand & Lietard 1993, Daccord, Lietard & Lenormand 1993, Frick et al. 1994). Tous les paramètres physiques impliqués dans ce problème sont introduits sous forme de nombres adimensionnels. Les relations entre les paramètres observés et les nombres adimensionnels sont déterminées soit à partir des expériences soit en utilisant des considérations théoriques. Par exemple, Daccord, Lenormand & Lietard (1993) ont utilisé les propriétés d'auto-similarité de la structure des wormholes en régime ramifié pour écrire la dépendance d'échelle sous la forme d'une loi puissance caractérisée par la dimension fractale. Ces approches ont été partiellement validées par des expériences eau-gypse. Bien que ces travaux donnent des résultats qualitatifs (diagramme de comportement de dissolution), ils ne peuvent être utilisés en tant qu'outils prédictifs.

Une approche similaire a été développée par Fredd & Fogler (1999) et Fredd (2000). En se basant sur leurs résultats expérimentaux, ils ont couplé leur théorie sur le nombre de Damköhler optimum avec un modèle de croissance de wormhole afin de prédire le volume de pore injecté. Fredd & Fogler (1999) ont utilisé comme modèle de croissance des modèles réseaux 2D et 3D dont les limitations ont déjà été évoquées précédemment. Fredd (2000), par contre, a développé un modèle de tube capillaire qui prend en compte les effets de perte de fluide et de compétition entre les wormholes. Bien que les résultats semblent intéressants d'un point de vue prédictif, on retrouve ici les limitations liées au modèle de tube capillaire (hypothèse sur la géométrie du wormhole) ainsi que des confusions au niveau de l'estimation des pertes de fluide (les pertes de fluide sont nulles dans des conditions d'équilibre local de dissolution et non dans l'hypothèse d'une réaction limitée par le transfert de masse comme il le prétend).

### 2.2.4 Modèle macroscopique

Une dernière approche reste à présenter : les modèles macroscopiques, qui permettent de décrire le problème à une échelle d'observation supérieure et donc sur des domaines d'étude plus

larges. Un modèle basé sur les équations continues à l'échelle de Darcy a ainsi été développé par Liu et al. (1997) et Chen et al. (1997). Le simulateur résoud les équations macroscopiques d'écoulement, de transport acide et de réaction chimique. A la différence des méthodes de changement d'échelle classiques, ces équations sont tirées du génie chimique et obtenues de manière heuristique. Si le phénomène de digitation et de wormholing a bien été capturé, le modèle ne fournit pas une description complète des différents régimes de dissolution et échoue à prédire correctement les conditions optimales d'injection.

## 2.3 Pourquoi un nouveau modèle ?

Tous ces efforts ont conduit à une meilleure compréhension des mécanismes physiques intervenant dans la dissolution d'un milieu poreux et le développement des wormholes. Néanmoins, la plupart des modèles existants échouent à décrire de manière autrement que *qualitative* la nature couplée de l'écoulement et de la réaction sans tenir compte d'hypothèse sur la géométrie du wormhole, ou sont limités à des domaines d'étude de faible dimension ou de forme particulière (lit de billes tassées par exemple). En outre, l'utilisation de modèles macroscopiques à l'échelle de Darcy n'a pas conduit jusqu'à présent à une exploration de l'ensemble des figures de dissolution.

En conclusion, l'analyse de cette étude bibliographique nous amène à l'objectif de cette première partie : démontrer la capacité d'un modèle à l'échelle de Darcy à décrire les différents régimes de dissolution et à représenter le développement des wormholes (Golfier, Zarcone, Bazin, Lenormand, Lasseux & Quintard 2002), étape préalable avant de pouvoir envisager une étude à des échelles supérieures.



## Chapitre 3

# Etude expérimentale

Parallèlement à notre travail numérique, des expériences de dissolution d'un massif de sel ont été menées par Sandrine Leclerc (1998) et Vincent Brare (1999) sous la direction de César Zarcone. L'ensemble des données expérimentales recueillies va ainsi pouvoir servir de base de données et d'outil de validation au modèle numérique développé.

### 3.1 Choix du système

Les résultats expérimentaux sont obtenus par l'injection d'une solution saline sous-saturée dans un massif de sel. Ce système est comparable au calcaire dissout sous l'effet de l'acide, le processus de dissolution étant dans les deux cas limité par le transfert de masse. L'avantage principal est de pouvoir visualiser la propagation des wormholes au fur et à mesure de l'injection. En outre, les expériences sont relativement courtes et faciles à mettre en place. La comparaison entre les systèmes eau-sel et acide-calcaire peut s'effectuer sur la base du pouvoir de dissolution de la solution déterminé par le  $N_{ac}$ . En effet, la fraction de roche dissoute par l'acide,  $\beta C_{acide}$ , correspond à la différence entre la limite de solubilité du NaCl dans l'eau ( $C_{sat} = 360 \text{ g.l}^{-1}$  à  $20^\circ\text{C}$ ) et la concentration de sel dans la solution  $C_{NaCl}$ . Nous avons ainsi :

$$C_{acide} = \frac{(C_{sat} - C_{NaCl})}{\beta} \quad (3.1)$$

où  $\beta$  représente le coefficient stoechiométrique de la réaction et  $C_{acide}$  la concentration d'acide dans la solution.

Comme le modèle développé par la suite fait référence à l'acide, cette relation est utilisée pour la modélisation des résultats expérimentaux où une concentration d'acide équivalente est associée à chaque concentration de sel. Il faut noter que, pour ce système, une augmentation de la concentration de sel correspond à une diminution de la concentration d'acide dans le cas d'un système acide-calcaire.

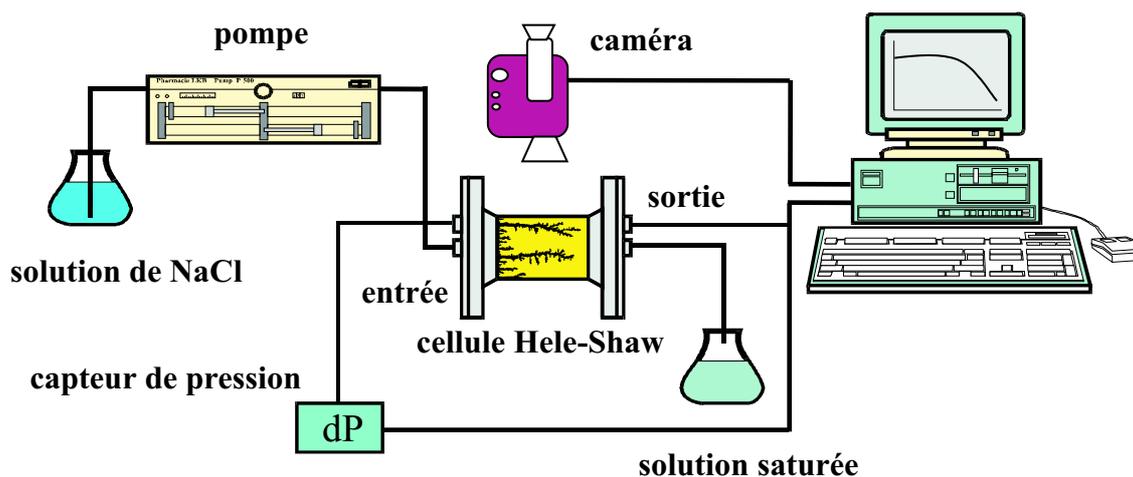


FIG. 3-1 – Dispositif expérimental

## 3.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté Fig. 3-1. La cellule Hele-Shaw utilisée est transparente et mesure 25 cm de longueur, 5 cm de large et 1 mm d'épaisseur. Le domaine sera donc considéré bidimensionnel pour une comparaison future avec nos simulations numériques. Les grains de sel, de forme rectangulaires, sont tassés à sec, le diamètre moyen des grains étant d'environ  $300 \mu\text{m}$ . Une fois tassé, sa porosité est d'environ 0.36. Au début de l'expérience, le milieu est complètement saturé avec de l'eau sursaturée en sel et la perméabilité est mesurée. Une perméabilité moyenne de  $1.5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$  est observée. Une solution de concentration de sel fixée est ensuite injectée à débit constant et à température ambiante tandis que la perte de charge entre l'entrée et la sortie de la carotte est mesurée à l'aide d'un capteur de pression. Tout au long de l'injection, l'évolution de la figure de dissolution est enregistrée à l'aide d'une caméra vidéo. L'enregistrement de la perte de charge et des images de dissolution est piloté par un ordinateur.

Plusieurs séries d'expériences ont été réalisées pour des concentrations de sel variant entre  $50 \text{ g.l}^{-1}$  et  $340 \text{ g.l}^{-1}$ , et pour des débits d'injection allant de  $5 \text{ cc.h}^{-1}$  à  $350 \text{ cc.h}^{-1}$ . La reproductibilité des expériences a été vérifiée et est parfaitement satisfaisante comme le montrent les résultats donnés Fig. 3-2 où nous avons reporté la variation de longueur du wormhole en fonction du temps pour deux expériences réalisées dans les mêmes conditions.

## 3.3 Résultats et discussion

### 3.3.1 Figures de dissolution

D'un point de vue qualitatif, les résultats (Fig. 3-3) sont similaires à ceux observés dans la littérature pour un système acide-calcaire (Hoefner & Fogler 1988). En se basant sur la classification de Fredd & Miller (2000), fondée sur une observation expérimentale, 5 figures de

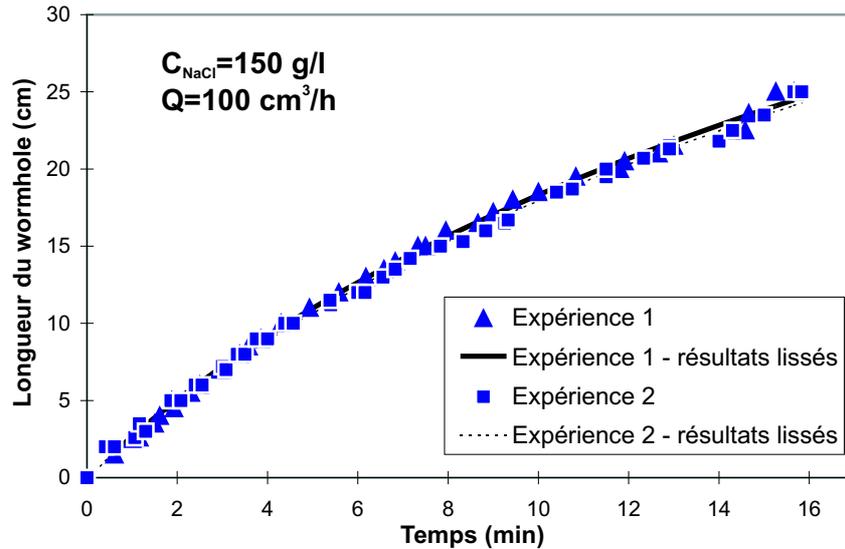


FIG. 3-2 – Reproductibilité des résultats expérimentaux dans les mêmes conditions d’injection

dissolution distinctes, fonctions du débit d’injection, ont été observés, trois cas limites (*a*, *c* et *e*) et deux cas intermédiaires (*b*, *d*) comme expliqué ci-dessous :

- (a) **Dissolution compacte ou faciale** : A faible débit, l’acide est complètement consommé sur la face d’entrée de la carotte. Le mécanisme de diffusion contrôle le processus de dissolution et empêche le développement des instabilités.
- (b) **Wormholes coniques** : En augmentant légèrement le débit, des instabilités commencent à apparaître bien que le régime soit encore fortement influencé par la diffusion. En pénétrant dans le milieu poreux, le fluide érode les parois des canaux d’écoulement pour créer un wormhole de forme conique.
- (c) **Wormholes prépondérants (régime de wormholing)** : A des débits intermédiaires, l’acide pénètre préférentiellement dans les pores les plus larges pour former des canaux d’écoulement ce qui conduit à la formation d’un wormhole prépondérant. Le débit optimum peut être observé dans ce régime. Les variations de concentration dans le milieu poreux commencent à être significatives bien que les variations de porosité restent caractéristiques d’un front raide.
- (d) **Wormholes ramifiés** : A hauts débits, les wormholes deviennent de plus en plus fins et ramifiés et le front de dissolution est plus étalé.
- (e) **Dissolution uniforme** : Enfin, à très hauts débits, le réactif pénètre dans tous les pores de la matrice poreuse. Le front de dissolution est étalé sur toute la longueur de l’échantillon, ce qui correspond à un non-équilibre local de dissolution. Il est intéressant de remarquer qu’un processus de non-équilibre local puisse lui aussi conduire à un déplacement stable.

Ce dernier régime était malheureusement situé hors du champ d’investigation de notre dispositif expérimental, de par l’utilisation d’un milieu poreux non consolidé. Il nous a en effet

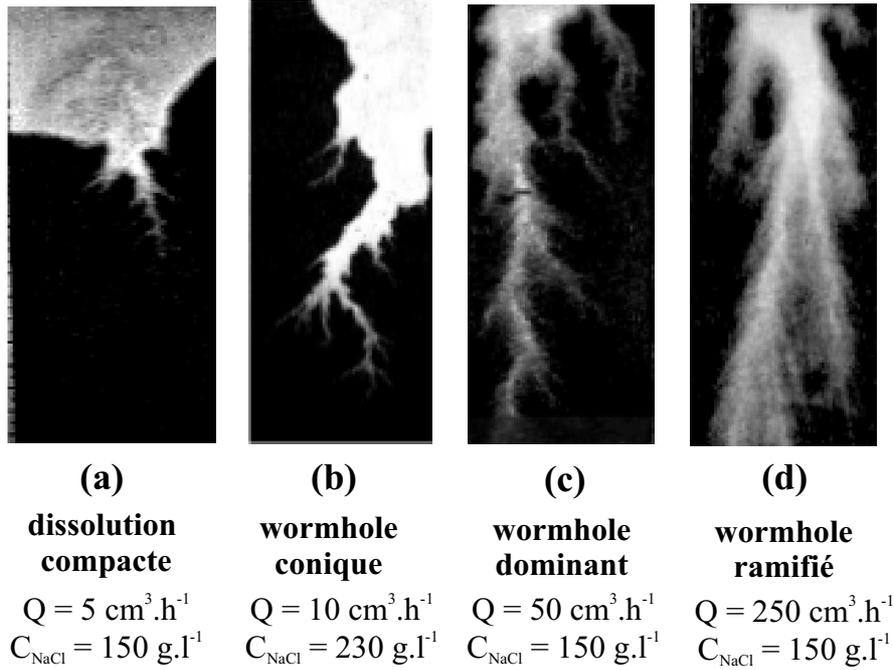


FIG. 3-3 – Exemple de figures expérimentales de dissolution

été impossible de réaliser des injections à très hauts débits sans entraîner un déplacement des particules de sel. Pour finir, afin de souligner l'importance de l'historique dans le développement de la figure de dissolution résultant de l'injection, un exemple de propagation de wormhole au cours du temps est représenté Fig. 3-4,  $L_w$  étant la longueur du wormhole. Ces images montrent bien le phénomène de concurrence entre les instabilités à des temps très courts, et le développement d'un wormhole prépondérant qui entraîne l'extinction des autres canaux d'écoulement.

### 3.3.2 Propagation des wormholes et débit optimum d'injection

Les expériences ont aussi confirmé l'existence d'un débit optimum d'injection, c'est-à-dire la quantité minimale d'acide à injecter pour percer la carotte. Les résultats expérimentaux obtenus pour une concentration de sel de  $150 \text{ g.l}^{-1}$  et  $230 \text{ g.l}^{-1}$  sont représentés Figs. 3-5 et 3-6, et montrent la propagation du wormhole en fonction du nombre de volumes de pore injectés  $V/V_P$ . Ce volume définit le rapport du volume d'acide injecté sur le volume de fluide total et s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{V}{V_P} = \frac{t Q}{V \varepsilon_\beta} \quad (3.2)$$

Le volume de pore injecté correspondant à la percée du milieu est noté  $V_{BT}$ . Si dans les données expérimentales présentées ci-dessous, la percée correspond à la traversée de toute la cellule, dans la présentation de nos simulations numériques, par contre, la longueur de référence définissant la percée sera  $L/2$  où  $L$  est la longueur du domaine (pour être plus précis,  $V_{BT}^{num} = V/V_P$  en  $L/2$ ). Ce critère sera utilisé afin de faciliter le dépouillement des résultats numériques.

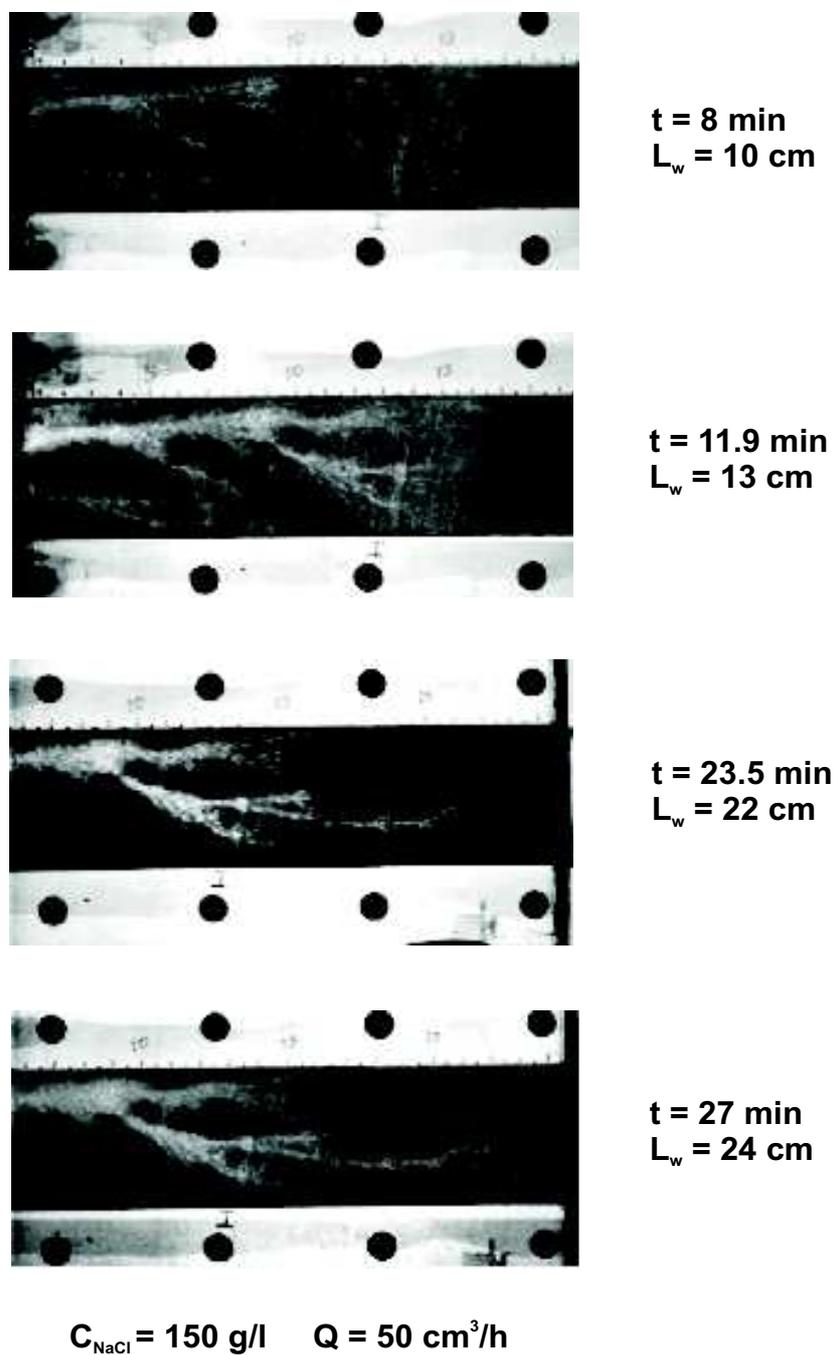


FIG. 3-4 – Historique de la dissolution en régime de wormholing

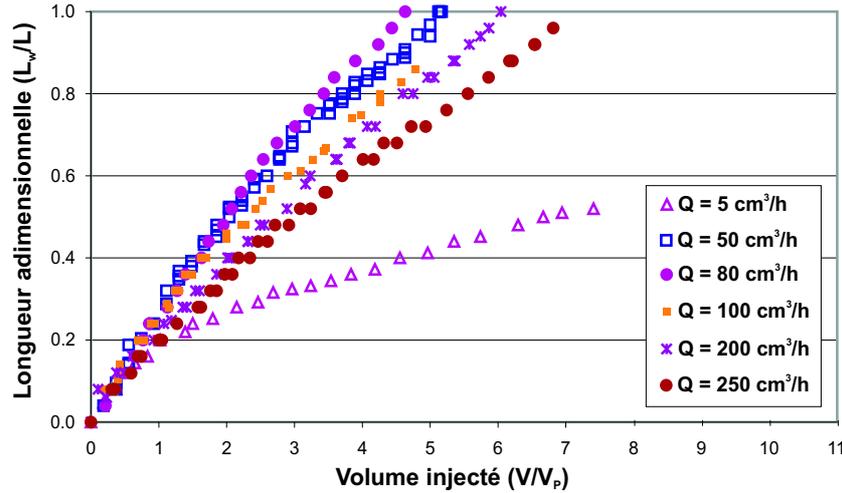


FIG. 3-5 – Longueur adimensionnelle du wormhole en fonction du volume de pore injecté pour une concentration de NaCl de  $150 \text{ g.l}^{-1}$

Ces figures traduisent clairement l'existence d'un débit optimum d'injection et sont caractérisées par deux comportements différents. Le volume de pore pour percer diminue au fur et à mesure que le débit augmente jusqu'à ce que le débit optimum d'injection soit atteint. A ce stade, le volume  $V_{BT}$  augmente de nouveau si l'on continue à accroître le débit d'injection.

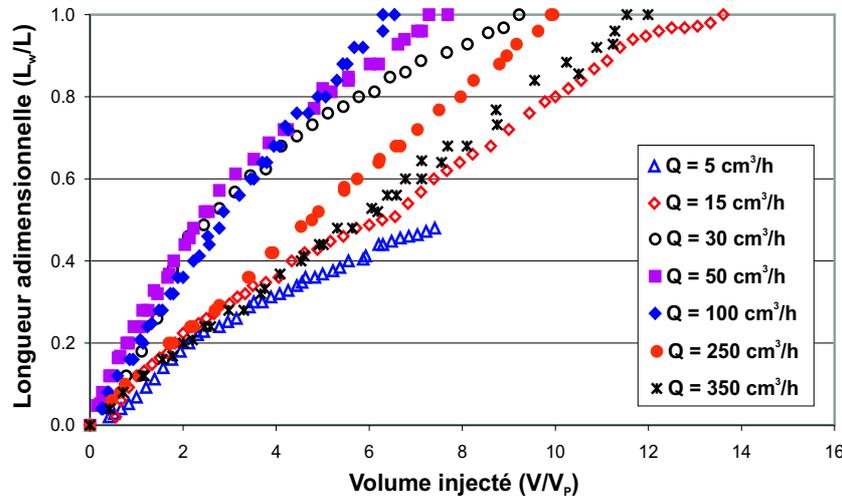


FIG. 3-6 – Longueur adimensionnelle du wormhole en fonction du volume de pore injecté pour une concentration de NaCl de  $230 \text{ g.l}^{-1}$

Afin de mettre en évidence l'influence de la concentration sur ces débits optimaux, les résultats des Figs. 3-5 et 3-6 ont été rassemblés avec les résultats obtenus pour une concentration de sel  $C_{NaCl} = 50 \text{ g.l}^{-1}$ , sur la Fig. 3-7 où nous avons représenté le volume de pore pour percer en fonction du débit d'injection. Le débit optimum est reporté ici en coordonnées log-log. Nous avons obtenu expérimentalement des débits optimaux de  $100 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$ ,  $80 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$  et

$70 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  pour respectivement des concentrations de sel de  $50 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ ,  $150 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  et  $230 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ . Une droite de pente 1/3 pour les débits d'injection supérieurs à l'optimum est observé, ce qui est en parfait accord avec les résultats obtenus sur les systèmes acide-calcaire (Daccord et al. 1989, Bazin 2000).

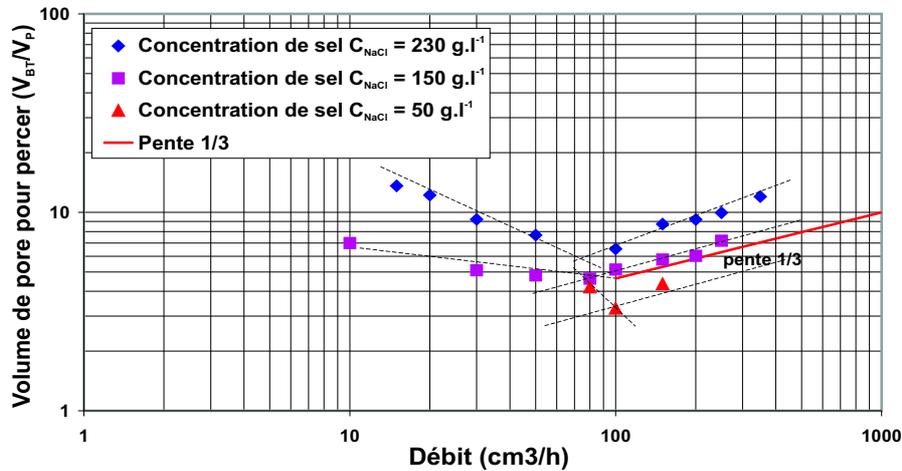


FIG. 3-7 – Volume de pore pour percer en fonction du débit d'injection pour différentes concentrations

A partir de cette figure, deux observations importantes peuvent être effectuées. D'une part, le débit optimum augmente lorsque la concentration de sel diminue. D'autre part, le volume de pore pour percer diminue en même temps que la concentration. Compte tenu du fait qu'une diminution de la quantité de sel injectée pour un système eau-sel correspond à une augmentation de la concentration d'acide pour un système HCl-calcaire, ces résultats vont dans le sens de ceux observés en acidification (Wang et al. 1993, Bazin et al. 1997).

Comme mentionné ci-dessus, nous avons observé expérimentalement des tendances qui sont en parfait accord avec les résultats obtenus par les études de dissolution précédentes sur d'autres systèmes. Cette étude expérimentale nous a permis de rassembler une grande quantité de données, en particulier en ce qui concerne l'évolution de la propagation et de la structure des wormholes au cours du temps. Elles peuvent à priori être interprétées par un modèle bidimensionnel et seront utilisées pour valider nos simulations numériques. Étant donné l'équivalence entre les modèles de dissolution acide et de dissolution de sel, nous garderons par la suite la même terminologie pour les deux phénomènes.



# Chapitre 4

## Modèle physique

Le développement d'un modèle de dissolution à l'échelle de Darcy n'étant pas immédiat, il est nécessaire de bien détailler les équations à l'échelle du pore afin de comprendre les limites et les problèmes associés à une description continue à l'échelle de Darcy.

### 4.1 Equations à l'échelle du pore

Nous allons dans un premier temps définir les notations utilisées dans ce problème. A l'échelle du pore, la phase solide et la phase fluide sont identifiées respectivement comme la phase- $\sigma$  et la phase- $\beta$ . Dans les équations qui vont suivre,  $A_{\beta\sigma}$  représente l'aire interfaciale entre les deux phases et  $\mathbf{n}_{\beta\sigma}$  le vecteur unitaire normal à la surface dirigé de la phase- $\beta$  vers la phase- $\sigma$ . De plus, nous notons respectivement  $c_{A\beta}$  et  $c_{\sigma\beta}$  la concentration massique des espèces acide et solide dans la phase- $\beta$ , et  $c_{B\beta}$  la concentration massique de l'eau dans la phase fluide.

Nous prenons ici comme hypothèse que les concentrations des espèces diffusées dans la phase- $\beta$  sont faibles et que le transport de l'acide (ou de la roche dissoute) dans l'eau ne modifie pas les caractéristiques physiques initiales du liquide, sa masse volumique  $\rho_\beta$  et sa viscosité  $\mu$ . Ainsi, le calcul de l'écoulement peut être résolu de manière indépendante du problème de transport-réaction (pour un champ de porosité donné,  $\varepsilon_\beta$ ). En outre, les termes inertiels sont considérés négligeables dans l'équation de mouvement et nous utiliserons les équations de Stokes. Enfin, nous noterons respectivement  $\mathbf{v}_{A\beta}$  et  $\mathbf{v}_\beta$  la vitesse de l'espèce acide et la vitesse moyenne dans la phase fluide.

En ce qui concerne la réaction chimique à l'échelle microscopique entre l'acide et la roche, celle-ci peut être exprimée dans le cas général par la relation suivante à l'interface  $A_{\beta\sigma}$

$$-D\nabla c_{A\beta} \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} = k_c (c_{A\beta})^n \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.1)$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion moléculaire,  $k_c$  est la constante de taux de réaction et  $n$  est l'ordre de la réaction chimique (Fogler 1999). Dans le cas qui nous intéresse, les réactions étant limitées par le transfert de masse, la condition limite à l'interface fluide-solide, Eq. (4.1), se

simplifie et l'on obtient :

$$c_{A\beta} = 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.2)$$

Cette relation sera utilisée par la suite dans tout le développement du modèle. Il faut toutefois garder à l'esprit que ceci n'est qu'une approximation et que la concentration à l'interface n'est en réalité pas nulle mais considérée négligeable par rapport à la concentration dans le domaine fluide. Il n'y aurait cependant pas de difficulté mathématique quelconque à développer un calcul similaire dans le cas général.

Etant donné toutes les hypothèses énoncées ci-dessus, le problème à l'échelle microscopique peut finalement être écrit comme suit :

**Equation de conservation du mouvement :**

$$-\nabla p_\beta + \mu \nabla^2 \mathbf{v}_\beta = -\rho_\beta \mathbf{g} \quad (4.3)$$

C.L. 1 :

$$\mathbf{v}_\beta - \mathbf{n}_{\beta\sigma} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \mathbf{v}_\beta = 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.4)$$

**Equations de conservation de la masse et des espèces :**

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_\beta = 0 \quad (4.5)$$

$$\frac{\partial c_{A\beta}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_{A\beta} c_{A\beta}) = 0 \text{ dans la phase-}\beta \quad (4.6)$$

$$\frac{\partial c_{\sigma\beta}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_{\sigma\beta} c_{\sigma\beta}) = 0 \text{ dans la phase-}\beta \quad (4.7)$$

$$\frac{\partial \rho_\sigma}{\partial t} = 0 \text{ dans la phase-}\sigma \quad (4.8)$$

C.L. 1 :

$$\rho_\beta (\mathbf{v}_{B\beta} - \mathbf{w}) \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} = 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.9)$$

où  $\mathbf{w} \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma}$  est la vitesse de l'interface  $A_{\beta\sigma}$ . Ici, nous avons écrit la condition limite pour l'espèce passive (habituellement l'eau), au lieu d'une condition limite pour le mélange, car elle nous sera nécessaire par la suite dans le développement du modèle.

C.L. 2 :

$$c_{A\beta} = 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.10)$$

C.L. 3 :

$$\begin{aligned} -\rho_\sigma \mathbf{w} \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} &= c_{\sigma\beta} (\mathbf{v}_{\sigma\beta} - \mathbf{w}) \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} \text{ sur } A_{\beta\sigma} \\ &= -\beta c_{A\beta} (\mathbf{v}_{A\beta} - \mathbf{w}) \cdot \mathbf{n}_{\beta\sigma} \end{aligned} \quad (4.11)$$

L'équation (4.11) représente la relation entre le flux de roche dissoute et le flux d'acide consommé,  $\beta$  étant le coefficient stoechiométrique de la réaction chimique.

La résolution du problème de dissolution à cette échelle représente une tâche extrêmement compliquée et requiert la connaissance de la structure microscopique du milieu, aussi avons nous

adopté dans cette étude une vision plus macroscopique, en utilisant les équations à l'échelle de Darcy.

## 4.2 Equations à l'échelle de Darcy

Les équations macroscopiques régissant la dissolution ont tout d'abord été introduites de manière heuristique en génie chimique sous la forme d'une équation de convection–dispersion et d'un terme source prenant en compte le transfert de masse à l'interface (voir par exemple une introduction générale sur le génie chimique dans Fogler 1999). Des démonstrations théoriques ont par la suite été réalisées en utilisant des techniques de prise de moyenne, et le lecteur pourra se référer à Quintard & Whitaker (1999) pour une discussion plus poussée des hypothèses associées à ce type de problème. Il est toutefois important d'estimer les limites et de comprendre les difficultés soulevées par un modèle de dissolution à l'échelle de Darcy. Pour cette raison et sur la base d'une analyse plus complète fournie par Sahimi et al. (1990) des différentes approches utilisées pour décrire les réactions fluide–solide dans un milieu poreux, nous rappellerons ci-dessous les principales difficultés qui apparaissent lors du développement d'un tel modèle macroscopique.

Nous suivrons les notations associées à la théorie de prise de moyenne volumique formulées dans Quintard & Whitaker (1999) et rappelées dans le chapitre 1. Les quantités moyennées à l'échelle de Darcy sont définies en se basant sur les travaux de Anderson & Jackson (1967), Marle (1967), Slattery (1967) ou Whitaker (1967). Par exemple, la vitesse de filtration est donnée par

$$\mathbf{V}_\beta = \langle \mathbf{v}_\beta \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_{\beta\text{-phase}}} \mathbf{v}_\beta dV \quad (4.12)$$

où  $V_{\beta\text{-phase}}$  représente le volume de la phase- $\beta$  contenue dans le volume élémentaire représentatif (V.E.R.),  $V$ , donné Fig. 1-1, et les moyennes intrinsèques de pression et de concentration sont définies par

$$P_\beta = \langle p_\beta \rangle^\beta = \frac{1}{V_{\beta\text{-phase}}} \int_{V_{\beta\text{-phase}}} p_\beta dV \quad (4.13)$$

$$C_{A\beta} = \langle c_{A\beta} \rangle^\beta = \frac{1}{V_{\beta\text{-phase}}} \int_{V_{\beta\text{-phase}}} c_{A\beta} dV \quad (4.14)$$

### 4.2.1 Equation macroscopique de l'écoulement

#### Milieu fluide–poreux : Equation de Darcy-Brinkman

A l'échelle de Darcy représentée Fig. 1-1, trois régions peuvent être identifiées : une zone fluide créée par la dissolution complète du domaine, le milieu poreux initial et une zone de transition caractérisée par un gradient de porosité qui peut éventuellement se développer dans des conditions de non-équilibre local. Les zones fluides et poreuses seront modélisées en utilisant soit les équations de Stokes soit la loi de Darcy. Cette approche est valide à la condition de considérer *la vitesse à l'interface comme faible*, ce qui est généralement acceptable dans la

plupart des problèmes de dissolution. Au niveau du front de dissolution, une relation macroscopique doit être satisfaite entre ces deux modèles, soit au travers d'une interface macroscopique entre les zones fluides et poreuses dans le cas de l'équilibre local, soit par le biais d'un gradient de porosité en non-équilibre.

Le traitement des conditions aux limites à l'interface milieu fluide–milieu poreux a été le sujet de nombreuses études (Arquis & Caltagirone 1984, Vafai & Thiyagaraja 1987, Vignes-Adler et al. 1987, Larrea 1991, Larrea et al. 1992, Saleh et al. 1993, Naimi 1997, Kuznetsov 1997). La première approche consiste à écrire des conditions limites appropriées à l'interface et la forme la plus usitée correspond au travail de Beavers & Joseph (1967). Pour un écoulement monodimensionnel d'un fluide tangentiel à l'interface fluide–poreux selon la direction  $x$ , cette relation est écrite de la manière suivante

$$\frac{\partial V_x^{stokes}}{\partial y} = \frac{\alpha_{beaver}}{K^{1/2}} \left( V_x^{stokes} - V_x^{darcy} \right) \quad (4.15)$$

où  $\alpha_{beaver}$  est un paramètre adimensionnel qui dépend de la structure du milieu poreux considéré,  $V_x^{stokes}$  est la vitesse dans le milieu fluide,  $V_x^{darcy}$  est la vitesse de filtration dans le milieu poreux,  $K$  est la perméabilité et  $x$  et  $y$  sont les coordonnées tangentielles et normales à l'interface fluide-poreux. L'introduction de telles conditions aux limites a aussi été discutée dans Ochoa-Tapia & Whitaker (1995a) et Ochoa-Tapia & Whitaker (1995b). Une autre approche (voir une discussion récente dans Goyeau et al. 1997), suggère que les équations de Stokes, la loi de Darcy et la condition à la limite (4.15) peuvent être représentées pour des milieux poreux faiblement ou moyennement perméables par une formulation continue correspondant à l'équation de Darcy-Brinkman (Brinkman 1947). Cette dernière équation est habituellement écrite sous la forme

$$\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{V}_\beta - \nabla P_\beta + \rho_\beta \mathbf{g} - \mu \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{V}_\beta = 0 \quad (4.16)$$

L'erreur faite en utilisant cette formulation continue est de l'ordre de la taille du grain (Vignes-Adler et al. 1987). Ce modèle fut à l'origine développé de manière empirique comme une correction à la loi de Darcy pour les milieux à fortes porosités (Brinkman 1947) et fut plus tard justifié par les travaux théoriques de Tam (1969), Levy (1981) ou Rubinstein (1986). Le coefficient  $\mu/\varepsilon_\beta$  dans l'Eq. (4.16) est souvent dénommé la viscosité effective,  $\tilde{\mu}$ , et son expression a soulevé de nombreuses questions dans la littérature, essentiellement à cause du fait qu'une estimation expérimentale directe est extrêmement difficile. Brinkman, par exemple, a suggéré de prendre  $\tilde{\mu} = \mu$  tandis que des relations plus complexes prenant en compte la porosité  $\varepsilon_\beta$  ont été introduites par la suite par Lundgren (1972), Durlofsky & Brady (1987) ou Lhuillier et al. (1999). Même si cela reste encore un point de controverse (Nield 1983), l'utilisation d'une telle formulation continue peut aussi être étendue à la description de l'écoulement dans un système à double milieu fluide–poreux, comme celui considéré dans ce présent travail (Beckermann et al. 1987, Beckermann et al. 1988, Gartling 1988). Dans l'hypothèse d'un équilibre local, cela évite, en effet, l'utilisation de conditions particulières à l'interface comme celles proposées par Beavers & Joseph pour coupler le modèle de Stokes à la loi de Darcy. D'autre part, le terme

visqueux diffusif peut décrire correctement l'écoulement de type couche limite qui se développe dans la zone poreuse proche de l'interface, comme cela a été démontré par Vafai (Vafai & Tien 1982, Vafai & Thiyagaraja 1987) ou par Liu et al. (1997). Dans la zone fluide où  $K$  est grand (théoriquement infini), le modèle de Stokes est vérifié tandis que dans la région poreuse pour laquelle la perméabilité  $K$  est faible, le terme visqueux devient négligeable et le modèle se ramène à la loi de Darcy.

Dans le cas d'un non-équilibre local, où une zone de dimension finie avec des gradients de porosité apparaît, l'utilisation d'un modèle de Brinkman continu soulève des questions plus délicates. En effet, dans ce cas précis, il peut être démontré théoriquement que des termes additionnels associés aux gradients de porosité doivent être conservés lorsqu'on applique les méthodes de changement d'échelle aux équations du mouvement à l'échelle du pore (Ochoa-Tapia & Whitaker 1995*a*, Ochoa-Tapia & Whitaker 1995*b*, Goyeau et al. 1997, Whitaker 1999). Même si une étude plus approfondie est requise afin d'être précis sur la contribution de ces termes, les travaux sur des milieux réels dont la porosité varie indiquent que ce modèle se révèle être très précis quand il est utilisé avec des perméabilités variables, pourvu que les gradients de porosité ne soient pas trop grands (Goyeau et al. 1999). Dans une première approche, ces résultats nous encouragent à utiliser l'équation de Darcy-Brinkman, Eq. (4.16), pour la conservation de la quantité de mouvement dans les différentes situations envisagées dans ce travail. Ceci est d'autant plus vrai que la zone de transition entre la zone fluide (Stokes) et poreuse (Darcy), quand elle existe, est vraisemblablement de faible épaisseur. Les simulations numériques seront utilisées a posteriori pour vérifier la validité de cette hypothèse.

Nous allons maintenant nous intéresser à la corrélation qui relie la perméabilité à la porosité. La perméabilité est bien définie, il est vrai, quand la géométrie de l'interface fluide–solide est connue. Cependant, cette interface peut évoluer d'une manière complexe au cours du processus de dissolution entraînant une variation de l'indicatrice de phase et par là même de la porosité. Une relation directe entre ces deux variables macroscopiques peut donc dépendre de l'historique de dissolution, du au couplage entre l'écoulement et le mécanisme de réaction. La validité de cette hypothèse a été étudiée à partir de simulations à l'échelle du pore par Bekri et al. (1995) et des situations similaires sont observées dans les problèmes de formation de dendrites en solidification (Poirier 1987, Goyeau et al. 1999). Il est souvent admis, pour un problème de dissolution donné et un échantillon considéré, l'existence d'une corrélation reliant directement la perméabilité à la porosité, soit  $K(\varepsilon)$  au lieu de  $K(t)$  et  $\varepsilon(t)$  (Fogler et al. 1976, Liu et al. 1997). Nous adopterons ici ce point de vue, en gardant en mémoire que cette hypothèse constitue une approximation préjudiciable à une comparaison précise avec les résultats expérimentaux. Il doit être souligné cependant que le modèle de dissolution proposé est totalement *indépendant* de la relation de perméabilité-porosité utilisée. Ce choix est fonction de la quantité d'informations disponibles pour le système considéré. Dans la présentation de nos simulations au chapitre **6**, nous utiliserons la relation classique, quoique grossière, de Kozeny-Carman (Ergun 1952) pour représenter une telle corrélation, très peu d'information étant disponible sur la structure à l'échelle du pore du massif de sel. Si nous considérons que la tortuosité du milieu évolue de manière linéaire par rapport à l'aire caractéristique des particules durant la dissolution, nous

pouvons alors écrire

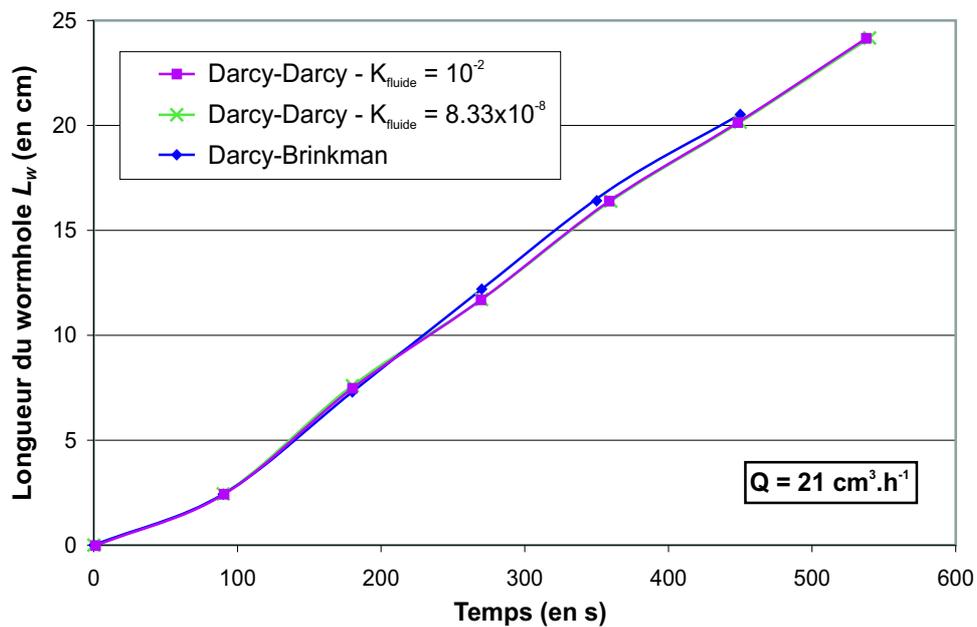
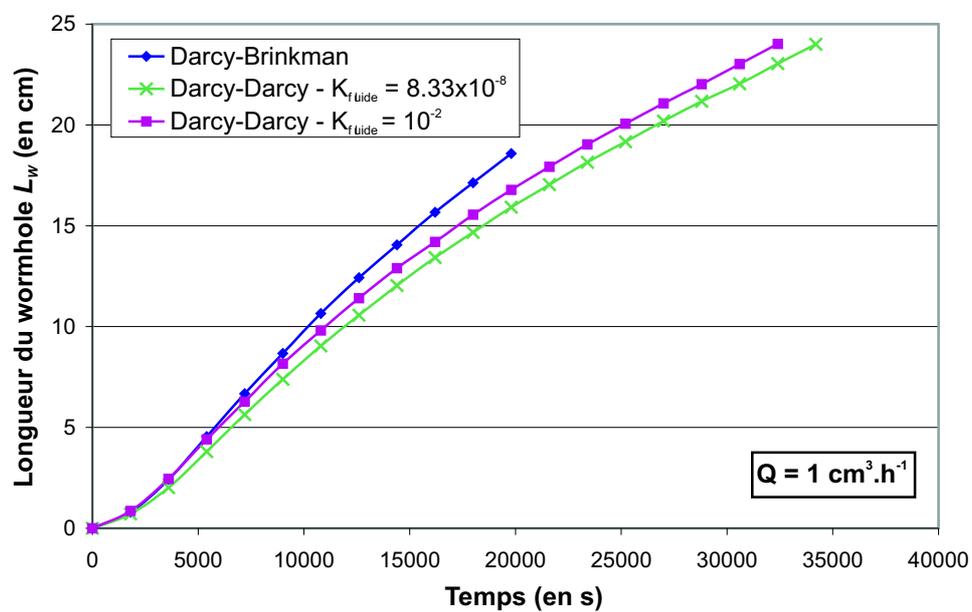
$$\frac{K}{l_\beta^2} = k_{cte} \left( \frac{\varepsilon_\beta}{1 - \varepsilon_\beta} \right)^3 \quad (4.17)$$

où  $l_\beta$  est la longueur caractéristique à l'échelle du pore (taille moyenne des grains) et  $k_{cte}$  est une constante dépendant de la nature du milieu. Bien que l'utilisation d'une relation de Kozeny-Carman dans un tel modèle soit une hypothèse forte, il s'avère que ce choix joue un rôle mineur dans les conditions d'équilibre local, où un front raide délimite la zone poreuse et la région fluide (il n'y a donc pas de zone de transition pour la porosité ou la perméabilité). Son influence est sensible uniquement pour les régimes en non-équilibre local (débit optimum et au-delà) où une légère modification de la porosité locale peut entraîner une variation de plusieurs ordres de grandeur de la perméabilité durant la formation des wormholes. L'impact du choix de la corrélation de perméabilité-porosité sera étudiée au § 6.2.5.

### Comparaison avec l'approche Darcy–Darcy

Il peut sembler au premier abord inutile de rentrer dans de tels détails au niveau de la description de l'écoulement et de nombreux modèles numériques de wormholes ont été développés en gardant l'équation classique de Darcy (Nilson & Griffiths 1990). Dans une telle configuration, on suppose alors que la zone fluide relaxe simplement le champ de pression comme le ferait une zone poreuse très perméable. Elle est ainsi remplacée par un milieu poreux de grande perméabilité obéissant à la loi de Darcy. La difficulté d'une telle approche est d'estimer correctement la valeur de la perméabilité  $K_f$  associée à la zone fluide. En effet, s'il suffit pour l'équation de Darcy-Brinkman d'employer une perméabilité  $K_f$  qui soit suffisamment forte pour tendre vers le modèle de Stokes, dans le cas de l'approche Darcy-Darcy, la vitesse prédite pour la zone fluide reste toujours proportionnelle à la valeur de  $K_f$  utilisée. L'impact de la perméabilité de la zone fluide sur la propagation du wormhole pour le modèle Darcy-Darcy et la comparaison avec la formulation Darcy-Brinkman est représentée Figs. 4-1 et 4-2.

Si l'écart n'est pas significatif pour des figures de dissolution de type wormholing (l'épaisseur du tube étant faible, le profil d'écoulement donné par Stokes est proche de celui prédit par Darcy), les différences deviennent plus nettes, par contre, lorsqu'on s'intéresse aux écoulements en régime conique où le comportement de la zone fluide est prépondérant. Cette approche reste néanmoins parfaitement valable pour certaines configurations, d'autant plus que la formulation de Darcy-Brinkman reste très coûteuse en temps de calcul. Dans le cas d'un écoulement entre deux plaques planes, par exemple, la perméabilité équivalente du milieu peut être reliée à l'épaisseur entre les plaques, de même, dans le cas d'un écoulement 3D, si l'on adopte l'hypothèse que le wormhole peut être assimilé à un tube cylindrique, on peut exprimer la perméabilité à l'intérieur du wormhole en fonction du rayon du tube. Cependant, le modèle Darcy-Brinkman n'a pas besoin de *supposer* un diamètre de tube, alors que le diamètre de tube doit être connu a priori dans le cas du modèle Darcy-Darcy. Il faut donc être prudent dans l'utilisation de ce dernier modèle, et vérifier que l'on ne commet pas d'erreur significative.

FIG. 4-1 – Comparaison des modèles Darcy-Darcy et Darcy-Brinkman en *régime wormholing*FIG. 4-2 – Comparaison des modèles Darcy-Darcy et Darcy-Brinkman en *régime conique*

### 4.2.2 Equations macroscopiques de transport et dissolution

En se basant sur l'étude bibliographique réalisée sur les modèles réseaux ou de tubes capillaires, nous avons mis en évidence le fait que la concentration moyenne dans le milieu poreux n'est pas nécessairement nulle, et pour cette raison, un modèle de *non-équilibre massique local* a été adopté. Ce choix nous permet d'obtenir un modèle plus général capable de reproduire l'ensemble des régimes de dissolution depuis le régime compact (interface raide entre le milieu fluide et le milieu poreux), jusqu'au régime uniforme (faible gradient de porosité). Les modèles de non-équilibre local sont plus fréquemment rencontrés dans les problèmes de transfert de chaleur qui ont bénéficié d'un intérêt accru. L'hypothèse de *non-équilibre thermique local* est ici le pendant de l'hypothèse de *non-équilibre massique local* dans les problèmes de transfert de masse. Si la contrainte d'*équilibre local* est valide, une équation macroscopique unique décrit le problème (Carbonell & Whitaker 1984, Nozad et al. 1985). Dans le cas contraire, le modèle requiert l'introduction de deux équations macroscopiques comme l'ont démontré les résultats de Carbonell & Whitaker (1984), Zanotti & Carbonell (1984a), Zanotti & Carbonell (1984b), Kaviany (1991) et Quintard et al. (1997). Pour en revenir au problème de transfert de masse, ce type d'hypothèse a été utilisé dans la modélisation de transport de polluant (DeZabala & Radke 1986, Powers et al. 1991, Miller et al. 1998), de processus de filtration (Quintard & Whitaker 1995a) ou dans l'acidification des grès par exemple (Fogler et al. 1976, Schechter 1992).

Nous allons maintenant détailler la méthode de changement d'échelle reliant la physique à l'échelle du pore au modèle à l'échelle de Darcy (Quintard & Whitaker 1994a, Quintard & Whitaker 1999).

Considérons la moyenne volumique de l'équation de conservation de la masse pour la phase fluide. Une fois utilisés les théorèmes de prise de moyenne (Marle 1967, Howes & Whitaker 1985, Gray et al. 1993), nous obtenons

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{V}_\beta = -\frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}) \, dA \quad (4.18)$$

D'après (4.9) nous avons

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (\mathbf{v}_{B\beta} - \mathbf{w}) = 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.19)$$

De plus, l'hypothèse relative au cas du traceur utilisée pour les espèces  $A$  et  $\sigma$ , permet d'écrire

$$\begin{aligned} c_{B\beta} \mathbf{v}_{B\beta} &= c_{B\beta} \mathbf{v}_\beta - D \nabla c_{B\beta} \\ &\approx c_{B\beta} \mathbf{v}_\beta \end{aligned} \quad (4.20)$$

Cette dernière équation est introduite dans la condition à la limite (4.19) pour fournir la relation suivante

$$\mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (\mathbf{v}_\beta - \mathbf{w}) \approx 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.21)$$

Finalement, l'Eq. (4.18) peut être approximée comme suit

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{V}_\beta = 0 \quad (4.22)$$

A ce stade, nous pouvons faire usage de l'hypothèse que le mécanisme de dissolution est suffisamment lent pour être considéré comme un *processus quasi-stationnaire*, et ceci est cohérent avec l'hypothèse associée à l'Eq. (4.21). En conséquence, nous pouvons coupler l'équation de Darcy-Brinkman avec la relation suivante

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_\beta = 0 \quad (4.23)$$

ce qui complète la formulation de l'écoulement.

Nous pouvons maintenant moyenner l'équation de conservation de la masse, Eq. (4.6), pour l'espèce acide

$$\left\langle \frac{\partial c_{A\beta}}{\partial t} \right\rangle + \langle \nabla \cdot (\mathbf{v}_{A\beta} c_{A\beta}) \rangle = 0 \quad (4.24)$$

En appliquant le théorème de transport général et le théorème de moyenne spatiale (Whitaker 1985) à cette équation, ceci nous donne

$$\frac{\partial \langle c_{A\beta} \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_{A\beta} c_{A\beta} \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} c_{A\beta} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (\mathbf{v}_{A\beta} - \mathbf{w}) dA = 0 \quad (4.25)$$

L'hypothèse de solution diluée pour l'espèce  $A$  conduit à :

$$c_{A\beta} \mathbf{v}_{A\beta} = c_{A\beta} \mathbf{v}_\beta - D \nabla c_{A\beta} \quad (4.26)$$

En introduisant cette relation dans l'Eq. (4.25), nous pouvons écrire

$$\underbrace{\frac{\partial (\varepsilon_\beta C_{A\beta})}{\partial t}}_{\text{accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\beta c_{A\beta} \rangle}_{\text{convection}} + \underbrace{\frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} c_{A\beta} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (\mathbf{v}_{A\beta} - \mathbf{w}) dA}_{\text{flux interfacial}} = \underbrace{\nabla \cdot \langle D \nabla c_{A\beta} \rangle}_{\text{diffusion}} \quad (4.27)$$

Ici, cette équation est couplée avec le problème aux limites à l'échelle microscopique, et en particulier avec l'Eq. (4.10). Cette dernière équation associée avec un transport rapide à l'échelle du pore peut conduire à un modèle d'équilibre local caractérisé par

$$C_{A\beta} = 0 \quad (4.28)$$

Un modèle de non-équilibre local a été discuté dans la littérature, et le lecteur pourra trouver de plus amples détails sur le développement des équations locales dans Quintard & Whitaker (1994a) et Quintard & Whitaker (1999). Si l'on considère que *l'évolution de la forme de l'interface au cours du temps* est suffisamment lente, une bonne approximation du problème

conduit à la forme suivante de l'équation locale

$$\varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\beta^* \cdot \nabla C_{A\beta}) - \alpha C_{A\beta} \quad (4.29)$$

où  $\alpha$  représente le coefficient de transfert de masse et dans laquelle des termes secondaires ont été supprimés, leur influence étant négligeable.

Nous sommes maintenant prêts à nous intéresser au *taux de dissolution* de la phase- $\sigma$ . La méthode de changement d'échelle appliqué à l'Eq. (4.8) conduit à

$$\frac{\partial \varepsilon_\sigma \langle \rho_\sigma \rangle^\sigma}{\partial t} - \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \rho_\sigma \mathbf{n}_{\sigma\beta} \cdot \mathbf{w} \, dA = 0 \quad (4.30)$$

Comme  $\rho_\sigma$  est constant, nous avons  $\langle \rho_\sigma \rangle^\sigma = \rho_\sigma$  et d'après la relation immédiate  $\varepsilon_\sigma + \varepsilon_\beta = 1$ , nous obtenons

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot \mathbf{w} \, dA \quad (4.31)$$

Or, Quintard & Whitaker (1999) ont montré que

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} c_{A\beta} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (\mathbf{v}_{A\beta} - \mathbf{w}) \, dA = -\frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot D \nabla c_{A\beta} \, dA \quad (4.32)$$

Nous pouvons maintenant faire usage de ce résultat et de la condition à la limite sur  $A_{\beta\sigma}$  donnée par l' Eq. (4.11) pour exprimer l'Eq. (4.31) sous la forme

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = -\frac{\beta}{\rho_\sigma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot D \nabla c_{A\beta} \, dA \right) \quad (4.33)$$

dans laquelle nous reconnaissons le flux d'échange massique de l'espèce  $A$ . Etant donné les approximations faites dans le développement théorique, nous obtenons (Quintard & Whitaker 1999)

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = \frac{\beta \alpha C_{A\beta}}{\rho_\sigma} \quad (4.34)$$

Le paramètre clé est ici le coefficient d'échange de masse,  $\alpha$ , et il faut remarquer que si sa valeur est suffisamment grande, la concentration macroscopique dans le milieu poreux est proche de la concentration à l'équilibre, c'est-à-dire  $C_{A\beta} = 0$ . Le modèle peut par conséquent être utilisé pour modéliser aussi bien des conditions d'équilibre local que de non équilibre local.

### 4.2.3 Problèmes de fermeture

Les équations macroscopiques présentées ci-dessus font intervenir de nouvelles grandeurs, ( $\alpha$  et  $D_\beta^*$ , Eq. 4.29), et ces propriétés effectives découlent de la résolution des problèmes de fermeture proposés dans Quintard & Whitaker (1994a) et Quintard & Whitaker (1999). Les

grandes étapes de l'introduction de ces problèmes sont proposées ci-dessous.

Nous introduisons tout d'abord la décomposition de Gray pour les champs de vitesse et de concentration (Gray 1975), tels que

$$\mathbf{v}_\beta = \varepsilon_\beta^{-1} \mathbf{V}_\beta + \tilde{\mathbf{v}}_\beta \quad (4.35)$$

$$c_{A\beta} = C_{A\beta} + \tilde{c}_{A\beta} \quad (4.36)$$

où  $\tilde{\mathbf{v}}_\beta$  et  $\tilde{c}_{A\beta}$ , respectivement les déviations spatiales de vitesse et de concentration, sont à moyenne nulle sur le volume de prise de moyenne

$$\langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \rangle = 0 \quad (4.37)$$

$$\langle \tilde{c}_{A\beta} \rangle = 0 \quad (4.38)$$

L'utilisation de la décomposition spatiale dans l'Eq. (4.27) fournit (Carbonell & Whitaker 1983)

$$\begin{aligned} & \frac{\partial(\varepsilon_\beta C_{A\beta})}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}) + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot c_{A\beta} (\mathbf{v}_{A\beta} - \mathbf{w}) dA \\ &= \nabla \cdot \left[ D \left( \varepsilon_\beta \nabla C_{A\beta} + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \tilde{c}_{A\beta} dA \right) \right] - \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \tilde{c}_{A\beta} \rangle \end{aligned} \quad (4.39)$$

A ce stade de l'analyse, nous devons faire usage de l'Eq. (4.18). Nous multiplions cette relation par  $C_{A\beta}$  et soustrayons le résultat de l'Eq. (4.39) pour obtenir (Chella et al. 1998)

$$\begin{aligned} & \varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot c_{A\beta} (\mathbf{v}_{A\beta} - \mathbf{w}) dA \\ &= \nabla \cdot \left[ D \left( \varepsilon_\beta \nabla C_{A\beta} + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \tilde{c}_{A\beta} dA \right) \right] - \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \tilde{c}_{A\beta} \rangle \end{aligned} \quad (4.40)$$

Pour finir, l'introduction de l'Eq. (4.32) dans l'Eq. (4.40) conduit à

$$\begin{aligned} & \varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} - \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot D \nabla C_{A\beta} dA \\ &= \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot D \nabla \tilde{c}_{A\beta} dA - \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \tilde{c}_{A\beta} \rangle \\ &+ \nabla \cdot \left[ D \left( \varepsilon_\beta \nabla C_{A\beta} + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \tilde{c}_{A\beta} dA \right) \right] \end{aligned} \quad (4.41)$$

Afin de développer une équation pour la déviation spatiale de la concentration, nous divisons

l'Eq. (4.41) par  $\varepsilon_\beta$  et soustrayons le résultat de l'Eq. (4.6) pour construire le résultat suivant :

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial \tilde{c}_{A\beta}}{\partial t} + \underbrace{\tilde{\mathbf{v}}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta}}_{\text{terme convectif}} + \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \tilde{c}_{A\beta} - \underbrace{\varepsilon_\beta^{-1} \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \tilde{c}_{A\beta} \rangle}_{\ll \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \tilde{c}_{A\beta}} \\
 & = \underbrace{\nabla \cdot (D \nabla \tilde{c}_{A\beta})}_{\text{terme diffusif}} - \varepsilon_\beta^{-1} D \nabla \cdot \underbrace{\left[ \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \tilde{c}_{A\beta} dA \right]}_{\ll \nabla \cdot (D \nabla \tilde{c}_{A\beta})} - \frac{\varepsilon_\beta^{-1}}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot D \nabla \tilde{c}_{A\beta} dA \quad (4.42)
 \end{aligned}$$

Les termes négligés dans l'équation ci-dessus sont identifiés comme des *termes non-locaux*, c'est-à-dire pour lesquels la déviation spatiale de concentration n'est pas évaluée uniquement au centre du volume de prise de moyenne. Ces termes étant des quantités moyennées, l'ordre de grandeur est en  $\circ(1/l_\eta)$  tandis que les autres termes sont de l'ordre de  $\circ(1/l_\beta)$  ce qui permet de les négliger, à condition que la contrainte de séparation des échelles soit vérifiée (Quintard & Whitaker 1994b). Dans le cas des mécanismes de dissolution, cela se produit à une certaine distance du front de dissolution, lorsque l'écoulement est établi. Cette hypothèse couplée avec la contrainte de quasi-stationnarité permet de se ramener à une équation locale et de s'affranchir des effets spatiaux et historiques sur la solution.

La décomposition spatiale appliquée à la condition limite (4.10) complète le problème de fermeture :

C.L.2 :

$$\tilde{c}_{A\beta} = \underbrace{-C_{A\beta}}_{\text{terme source}} \quad \text{sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.43)$$

Dans ces équations, les termes non homogènes peuvent être vus comme des termes sources pour  $\tilde{c}_{A\beta}$  et cela suggère que  $\tilde{c}_{A\beta}$  peut être représenté par :

$$\begin{aligned}
 \tilde{c}_{A\beta} &= c_{A\beta} - C_{A\beta} \\
 &= \mathbf{b}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} - s_\beta C_{A\beta} \quad (4.44)
 \end{aligned}$$

où  $\mathbf{b}_\beta$  et  $s_\beta$  sont les variables de fermeture des problèmes associés définis ci-dessous.

### Problème I a

$$\tilde{\mathbf{v}}_\beta + \mathbf{v}_\beta \cdot \nabla \mathbf{b}_\beta = \nabla \cdot (D \nabla \mathbf{b}_\beta) - (\varepsilon_\beta)^{-1} \mathbf{u}_\beta \quad (4.45a)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{b}_\beta = 0 \quad \text{sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.45b)$$

$$\mathbf{b}_\beta(r + l_i) = \mathbf{b}_\beta(r) \quad i = 1, 2, 3 \quad (4.45c)$$

$$\langle \mathbf{b}_\beta \rangle^\beta = 0 \quad (4.45d)$$

où  $\mathbf{u}_\beta$  dans l'Eq. (4.45a) est donné par

$$\mathbf{u}_\beta = \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (D \nabla \mathbf{b}_\beta) dA \quad (4.46)$$

**Problème I b**

$$\mathbf{v}_\beta \cdot \nabla s_\beta = \nabla \cdot (D \nabla s_\beta) + (\varepsilon_\beta)^{-1} \alpha \quad (4.47a)$$

$$\text{C.L.1} \quad s_\beta = 1 \quad \text{sur } A_{\beta\sigma} \quad (4.47b)$$

$$s_\beta(r + l_i) = s_\beta(r) \quad i = 1, 2, 3 \quad (4.47c)$$

$$\langle s_\beta \rangle^\beta = 0 \quad (4.47d)$$

où le coefficient de transfert de masse  $\alpha$ , Eq. (4.47a), est défini par

$$\alpha = \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \cdot (D \nabla s_\beta) \, dA \quad (4.48)$$

L'écriture donnée ici des problèmes de fermeture qui contrôlent le champ  $\tilde{c}_{A\beta}$  suppose que la région représentative soit une cellule unitaire dans un milieu spatialement périodique ce qui implique que l'on néglige les effets des forts gradients. Ce faisant, les effets de la zone d'établissement sont négligés. Pour illustrer ce propos, on prendra l'exemple du transfert de masse dans un tube (Zanotti & Carbonell 1984c, Mahinpey et al. 2001). En fonction de l'abscisse par rapport à l'entrée du tube, on distinguera deux zones :

1. Une zone d'établissement, dans laquelle le coefficient d'échange de masse est très sensible au nombre de Péclet et à la position (ce comportement, d'un point de vue du changement d'échelle, pourrait être qualifié de non-local),
2. Une zone de comportement asymptotique, dans laquelle le coefficient d'échange de masse devient constant (et ne dépend pas du nombre de Péclet) et inférieur aux valeurs obtenues dans la zone d'établissement.

Le problème de fermeture proposé correspond, pour un milieu périodique, à la zone asymptotique. On s'attend donc à obtenir des coefficients d'échange de masse plus faible que ceux dans la zone directe du front, et moins sensibles au nombre de Péclet. Le cas du transfert de masse dans un tube a été étudié spécifiquement dans un article récent, dont on n'exposera pas les détails ici (Golfier, Quintard & Whitaker 2002).

L'utilisation de ces expressions dans l'Eq. (4.41) conduit à la forme macroscopique suivante de l'équation de transport acide :

$$\begin{aligned} \varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} - \nabla \cdot (\mathbf{d}_\beta C_{A\beta}) - (\mathbf{u}_\beta - D \nabla \varepsilon_\beta) \cdot \nabla C_{A\beta} \\ = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\beta^* \cdot \nabla C_{A\beta}) - \alpha C_{A\beta} \end{aligned} \quad (4.49)$$

avec

$$\mathbf{d}_\beta = -D \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} s_\beta \, dA + \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta s_\beta \rangle \quad (4.50)$$

$$\mathbf{D}_\beta^* = D \left( \varepsilon_\beta \mathbf{I} + \frac{1}{V} \int_{A_{\beta\sigma}} \mathbf{n}_{\beta\sigma} \mathbf{b}_\beta \, dA \right) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\beta \mathbf{b}_\beta \rangle \quad (4.51)$$

Les deux derniers termes dans le membre de gauche de l'Eq. (4.49) sont habituellement

négligés, et l'on retrouve ainsi l'expression classique de l'Eq. (4.29). Ces deux problèmes de fermeture permettent de relier les caractéristiques physiques à l'échelle du pore avec les paramètres effectifs de l'Eq. (4.29). Ils peuvent être utilisés pour estimer le tenseur de dispersion de la phase- $\beta$ ,  $\mathbf{D}_\beta^*$ , et le coefficient de transfert de masse,  $\alpha$ , pour une forme donnée de l'interface fluide-solide. Comme souligné par Quintard & Whitaker (1999), ces problèmes de fermeture peuvent être utilisés de deux manières différentes :

- Pour calculer les paramètres de transport effectifs pour des interfaces de géométrie donnée. On peut par exemple considérer que la dissolution de l'interface se fait de manière homogène ce qui permet de s'affranchir de l'évolution temporelle de l'interface.
- Pour calculer les paramètres de transport effectifs, pour une interface de géométrie initiale, puis, à partir des champs de concentrations calculés à l'échelle de Darcy à l'instant  $t$ , les utiliser pour déterminer les taux de dissolution en chaque point de l'interface. Cette méthode nous permet d'obtenir la forme de l'interface à l'instant  $t + 1$ , le processus étant répété de manière itérative. De cette manière, les problèmes de fermeture et les équations à l'échelle de Darcy sont résolus de manière couplée ce qui permet de prendre en compte toute la complexité de l'historique du processus de dissolution. Cette seconde approche est bien sûr beaucoup plus délicate que la précédente, et il est d'une grande importance en terme de temps de calcul de déterminer dans quelles conditions il est nécessaire de maintenir une telle complexité.

Comme pour la perméabilité, les propriétés effectives peuvent dépendre du processus de dissolution d'une manière historique (voir par exemple les simulations à l'échelle du pore développées par Bekri et al. 1995). Dans ce travail, nous adoptons l'approche traditionnelle, et nous approximons le comportement historique du système en introduisant une relation directe avec la porosité du système et le nombre de Péclet à l'échelle du pore, soit :  $\mathbf{D}_\beta^*(\varepsilon_\beta, Pe_{cell})$  et  $\alpha(\varepsilon_\beta, Pe_{cell})$ . Cependant, de manière similaire à la relation de perméabilité-porosité, le choix d'une corrélation particulière est d'une importance secondaire dans le modèle. Différents choix peuvent être effectués sans aucune difficulté pour l'implémentation du modèle. Il est néanmoins très important de souligner l'impact de ces hypothèses sur le calcul des coefficients effectifs. Des différences entre la solution numérique et les corrélations expérimentales ont été observées par Quintard et al. (1997). Les travaux de Cushman et al. (Cushman 1997, Cushman & Moroni 2001a, Cushman & Moroni 2001b) en particulier, ont souligné l'influence des effets non-locaux sur le tenseur de dispersion et l'équation moyennée associée. La solution donnée par le problème de fermeture correspond en effet au *cas asymptotique* comme indiqué plus haut. Le choix de la cellule unitaire est à ce titre tout à fait significatif : si le choix de conditions périodiques est parfaitement pertinent loin des conditions de bord, celui-ci devient plus discutable lorsqu'on se rapproche du front de dissolution ou des limites macroscopiques du domaine.

#### 4.2.4 Mise sous forme adimensionnelle des équations

A ce stade, nous avons un système complet d'équations macroscopiques capable de décrire l'écoulement, le transport acide et la dissolution au sein du domaine à l'échelle de Darcy. Ces

équations peuvent être mises sous forme adimensionnelle en introduisant les variables adimensionnées définies ci-dessous

$$\mathbf{D}' = \frac{\mathbf{D}'_\beta}{D} \quad \mathbf{V}' = \frac{\mathbf{V}_\beta}{|\mathbf{V}_0|} \quad P' = \frac{P_\beta l}{\mu |\mathbf{V}_0|} \quad x'_i = \frac{x_i}{l} \quad t' = \frac{|\mathbf{V}_0| t}{l} \quad C' = \frac{C_{A\beta}}{C_0} \quad (4.52)$$

où  $|\mathbf{V}_0|$  et  $C_0$  correspondent aux conditions aux limites d'entrée en vitesse et concentration et  $l$  est une longueur caractéristique. Celle-ci a été choisie arbitrairement égale à  $\sqrt{K}$ , une longueur représentative de l'échelle du pore. On notera que la géométrie du milieu poreux sera décrite via un certain nombre de paramètres adimensionnels, faisant intervenir comme référence la longueur  $l$ . L'objectif d'une telle démarche est de mettre en évidence les nombres adimensionnels qui contrôlent le processus et de dégager ainsi les variables indépendantes. Ceci nous amène au système d'équations suivant :

$$\frac{1}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{V}' - \nabla P' + \frac{Re}{Fr} \frac{\mathbf{g}}{|\mathbf{g}|} - \mathbf{V}' = 0 \quad (4.53)$$

$$\varepsilon_\beta \frac{\partial C'}{\partial t'} + \mathbf{V}' \cdot \nabla C' = \frac{1}{Pe} \nabla \cdot (\mathbf{D}' \cdot \nabla C') - Da C' \quad (4.54)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t'} = \frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} Da N_{ac} C' \quad (4.55)$$

Au niveau de l'équation de mouvement, outre les nombres de Reynolds  $Re$  et de Froude  $Fr$  qui apparaissent clairement dans l'Eq. (4.53), on peut mettre en évidence deux nombres adimensionnels supplémentaires, exhibés par le choix des variables d'adimensionnement, le nombre de Darcy  $N_D$  et le rapport de forme  $F$ .

$$Re = \frac{\rho_\beta |\mathbf{V}_0| l}{\mu} \quad Fr = \frac{|\mathbf{V}_0|^2}{|\mathbf{g}| l} \quad N_D = \frac{K}{x_1^2} \quad F = \frac{x_1}{x_2} \quad (4.56)$$

Ici,  $N_D$  détermine l'importance relative du terme de Darcy sur le terme visqueux de Stokes tandis que le rapport entre le nombre de Reynolds  $Re$  et le nombre de Froude  $Fr$  définit l'influence de la gravité par rapport aux effets de viscosité.

On retrouve aussi les nombres adimensionnels caractéristiques des problèmes de transport réactif, classiquement référencés dans la littérature (Buijse 1997, Daccord, Lenormand & Lietard 1993, Daccord, Lietard & Lenormand 1993) et qui apparaissent dans les Eqs. (4.54) et (4.55) :

- Le nombre de Péclet qui représente l'importance du transport convectif sur le transport par diffusion,

$$Pe = \frac{|\mathbf{V}_0| l}{D} \quad (4.57)$$

- Le nombre de Damköhler défini comme la fraction d'acide consommé sur la quantité d'acide amené par convection,

$$Da = \frac{\alpha l}{|\mathbf{V}_0|} \quad (4.58)$$

- Le nombre de pouvoir acide qui représente le pouvoir dissolvant de l'acide, c'est-à-dire la

masse de solide dissout par unité de masse de roche présente,

$$N_{ac} = \frac{\varepsilon_{\beta} C_0 \beta}{(1 - \varepsilon_{\beta}) \rho_{\sigma}} \quad (4.59)$$

On peut y rajouter le nombre cinétique, défini comme le rapport entre le flux d'acide consommé par la réaction chimique et le flux diffusif, et fréquemment utilisé dans les études de dissolution,

$$\begin{aligned} K_i &= Da \cdot Pe \\ &= \frac{\alpha l^2}{D} \end{aligned} \quad (4.60)$$

Dans le chapitre suivant, le modèle numérique développé pour résoudre le système complet d'équations est présenté.

# Chapitre 5

## Modèle numérique

Nous présentons dans ce chapitre les méthodes numériques employées dans notre simulateur pour résoudre les équations d'écoulement et de transport-réaction, ainsi que le calcul des coefficients effectifs associés. Les équations sont discrétisées sur un maillage cartésien uniforme tri-dimensionnel. La géométrie des milieux considérés est approximée en affectant des valeurs constantes par bloc au champ de perméabilité  $\mathbf{K}$  ( $\mathbf{K}$  sphérique, c'est-à-dire  $\mathbf{K} = K\mathbf{I}$ ) et de porosité  $\varepsilon_\beta$  constantes. Ces valeurs sont réactualisées à chaque pas de temps pour tenir compte de l'évolution du front de dissolution. Compte tenu de l'hypothèse adoptée du cas du traceur, le problème de Darcy-Brinkman stationnaire est résolu pour un champ de porosité donné. Les coefficients effectifs intervenant dans les équations de transport (tenseur de dispersion  $\mathbf{D}_\beta^*$  et coefficient de transfert  $\alpha$ ) sont alors calculés à partir des problèmes de fermeture pour un champ de vitesse et de pression donné. L'équation de transport, Eq. (4.29), peut ainsi être résolue et le profil de concentration obtenu est utilisé pour calculer l'équation de dissolution, Eq. (4.34). On obtient un nouveau champ de porosité, et par là même le champ de perméabilité correspondant, via la relation de Kozeny-Carman, Eq. (4.17). A ce stade, l'ensemble de la procédure est répété de manière itérative afin d'actualiser la figure de dissolution.

Divers types de conditions aux limites peuvent être imposées aux parois du domaine et ont été implémentées dans le simulateur : condition de symétrie, mur imperméable, condition de périodicité et, pour la zone d'entrée, injection à pression ou débit constant.

- *Condition de symétrie* : soit  $\mathbf{n}$  la normale à la paroi et  $\mathbf{t}$  la composante tangentielle. On

a :

$$\mathbf{V}_\beta \cdot \mathbf{n} = 0 \quad \frac{\partial V_t}{\partial \mathbf{n}} = 0 \quad \frac{\partial P_\beta}{\partial \mathbf{n}} = 0 \quad (5.1)$$

- *Condition de type mur* : On a pour le champ de vitesse à la paroi :

$$\begin{aligned} \mathbf{V}_\beta &= 0 \text{ si le milieu jouxtant la paroi est fluide} \\ \mathbf{V}_\beta \cdot \mathbf{n} &= 0 \text{ si le milieu jouxtant la paroi est poreux} \end{aligned} \quad (5.2)$$

et une condition de symétrie sur le champ de pression.

- *Condition de périodicité* : Le champ de vitesse est périodique c'est-à-dire  $\mathbf{V}_\beta(x) = \mathbf{V}_\beta(x+l)$ . En ce qui concerne la pression, lorsque le fluide est soumis à une perte de charge  $h_0$

dans la direction  $\mathbf{a}$ , le champ  $P_\beta(x)$  peut se décomposer sous la forme d'un terme linéaire et d'une perturbation qui est périodique. Soit :

$$P_\beta = -h_0 \mathbf{x} \cdot \mathbf{a} + \bar{P}_\beta \quad (5.3)$$

avec :

$$\bar{P}_\beta(x) = \bar{P}_\beta(x + l) \quad (5.4)$$

- *Injection à Pression constante* : La pression est maintenue constante à l'entrée tandis que la vitesse normale à la paroi est déterminée par symétrie ( $\frac{\partial V_n}{\partial n}|_{\text{entrée}} = 0$ ). Les autres composantes du vecteur vitesse sont fixées à zéro.
- *Injection à Débit constant* : On impose les mêmes conditions sur la vitesse et la pression que pour l'injection à pression constante. Le débit initial, calculé au temps  $t = 0$ , est ensuite conservé par une méthode de type prédicteur-correcteur en faisant varier la pression uniforme imposée à l'entrée à chaque pas de temps.
- *Sortie à Pression constante* : mêmes conditions sur pression et vitesse que pour l'injection à pression constante.

## 5.1 Méthodes de résolution pour la partie écoulement

Comme écrit ci-dessus, le système d'équations régissant l'écoulement dans le domaine est le suivant :

$$\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{V}_\beta - \nabla P_\beta - \frac{\mu}{\mathbf{K}} \mathbf{V}_\beta = 0 \quad (5.5)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_\beta = 0 \quad (5.6)$$

Le problème que soulève ce système linéaire est le couplage entre un opérateur d'ordre 1 et d'ordre 2 ce qui rend difficile l'utilisation des méthodes de résolution classiquement employées pour les équations de Stokes, du type Lagrangien Augmenté. La méthode retenue est un algorithme d'Uzawa (Robichaud et al. 1990) pour sa facilité de mise en oeuvre et sa robustesse couplé à une méthode originale de type Prédicteur-Correcteur de manière à accélérer la convergence. Nous décomposons les champs de vitesse et de pression comme suit :

$$P_\beta = P_\beta^* + \tilde{P}_\beta \quad (5.7)$$

$$\mathbf{V}_\beta = \mathbf{V}_\beta^* + \tilde{\mathbf{V}}_\beta \quad (5.8)$$

où  $P_\beta^*$  et  $\tilde{P}_\beta$  représentent respectivement les champs de pression prédit et corrigé, et  $\mathbf{V}_\beta^*$  et  $\tilde{\mathbf{V}}_\beta$  respectivement les vitesses prédites et corrigées.

### *Etape du prédicteur*

Nous calculerons tout d'abord les champs prédits de vitesse et pression en ayant dans l'idée d'obtenir une estimation assez proche de la partie darcéenne des équations. Aussi  $P_\beta^*$  et  $\mathbf{V}_\beta^*$

sont vues comme les solutions du problème de Darcy classique suivant

$$\nabla P_\beta^* = \rho_\beta \mathbf{g} - \mu \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{V}_\beta^* \quad (5.9)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_\beta^* = 0 \quad (5.10)$$

Les équations (5.9) et (5.10) sont combinées pour donner

$$\nabla \cdot \left( \frac{\mathbf{K}}{\mu} \cdot (\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g}) \right) = 0 \quad (5.11)$$

Les schémas classiques utilisés pour résoudre un écoulement de Darcy monophasique en milieu hétérogène peuvent ainsi être appliqués. Afin d'éviter d'obtenir des champs de pression oscillants selon les variables d'espace, le maillage est décalé en vitesse et pression. Nous utilisons une formulation aux volumes finis projetée sur un maillage cartésien et les flux aux interfaces des cellules sont approximés à l'aide d'une moyenne harmonique permettant d'obtenir un schéma au second ordre (Ahmadi & Quintard 1996). On obtient un système linéaire qui est résolu grâce à un algorithme itératif, **BI-CGSTAB**, qui se révèle être 15 à 20% plus efficace que l'algorithme classique du **BIGRADIANT CONJUGUE** (Van Der Vorst 1992). Le champ  $\mathbf{V}_\beta^*$  est ensuite calculé à partir du champ de pression  $P_\beta^*$  à l'aide de l'Eq. (5.9). La discrétisation de l'Eq. (5.9) nous donne ainsi si l'on néglige la gravité (pour la composante selon x) :

$$(\mathbf{V}_x^*)_{i-1/2,j,k} = -\frac{1}{\Delta x \Delta y \Delta z} \int_{k-1/2}^{k+1/2} \int_{j-1/2}^{j+1/2} \int_{i-1}^i \frac{K}{\mu} \frac{\partial P_\beta^*}{\partial x} dx dy dz \quad (5.12)$$

$$= -\frac{1}{\Delta x} \left[ \frac{K_{i-1,j,k}}{\mu} (P_{i-1/2,j,k}^* - P_{i-1,j,k}^*) + \frac{K_{i,j,k}}{\mu} (P_{i,j,k}^* - P_{i-1/2,j,k}^*) \right] \quad (5.13)$$

avec :

$$P_{i-1/2,j,k}^* = \left( \frac{K_{i-1,j,k} P_{i-1,j,k}^* + K_{i,j,k} P_{i,j,k}^*}{K_{i-1,j,k} + K_{i,j,k}} \right) \quad (5.14)$$

tel que la pression  $P_{i-1/2,j,k}$  à l'interface vérifie la condition de continuité des flux :

$$K_{i-1,j,k} \left( \frac{\partial P_\beta}{\partial x} \right)_{i-1/2-\varepsilon,j,k} = K_{i,j,k} \left( \frac{\partial P_\beta}{\partial x} \right)_{i-1/2+\varepsilon,j,k} \quad (5.15)$$

tandis que pour l'équation (5.11), nous avons (la gravité étant toujours négligée) :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{K}{\mu} \frac{\partial P_\beta^*}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \frac{K}{\mu} \frac{\partial P_\beta^*}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{K}{\mu} \frac{\partial P_\beta^*}{\partial z} \right) = 0 \quad (5.16)$$

La discrétisation du premier terme donne par exemple :

$$\frac{1}{\Delta x \Delta y \Delta z} \int_{k-1/2}^{k+1/2} \int_{j-1/2}^{j+1/2} \int_{i-1/2}^{i+1/2} \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{K}{\mu} \frac{\partial P_\beta^*}{\partial x} \right) dx dy dz \quad (5.17)$$

$$= \frac{1}{\Delta x} \left( \frac{K_{i,j,k}}{\mu} \left( \frac{\partial P_\beta}{\partial x} \right)_{i+1/2-\varepsilon,j,k} - \frac{K_{i,j,k}}{\mu} \left( \frac{\partial P_\beta}{\partial x} \right)_{i-1/2+\varepsilon,j,k} \right) \quad (5.18)$$

$$= \frac{K_{i,j,k}}{\mu} \frac{2}{(\Delta x)^2} (P_{i+1/2,j,k} - 2P_{i,j,k} + P_{i-1/2,j,k}) \quad (5.19)$$

*Etape du correcteur*

Une fois l'étape du prédicteur achevée, on résout les équations de pression et vitesse corrigées qui sont écrites sous la forme

$$\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \tilde{\mathbf{V}}_\beta - \nabla \tilde{P}_\beta - \mu \mathbf{K}^{-1} \cdot \tilde{\mathbf{V}}_\beta = -\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{V}_\beta^* \quad (5.20)$$

$$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{V}}_\beta = 0 \quad (5.21)$$

Nous résolvons ce système à l'aide d'un algorithme itératif d'Uzawa (Fortin & Glowinski 1982) qui peut être résumé comme suit :

Soit  $\tilde{P}_\beta^n$  donné, trouver  $\tilde{P}_\beta^{n+1}$  et  $\tilde{\mathbf{V}}_\beta^n$  solutions de

$$\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \tilde{\mathbf{V}}_\beta^n - \mu \mathbf{K}^{-1} \cdot \tilde{\mathbf{V}}_\beta^n = \nabla \tilde{P}_\beta^n - \frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{V}_\beta^* \quad (5.22)$$

$$\tilde{P}_\beta^{n+1} = \tilde{P}_\beta^n - \rho \nabla \cdot \tilde{\mathbf{V}}_\beta^n \quad (5.23)$$

où  $\rho$  est le pas de descente de l'algorithme (avec  $0 < \rho < 2$ ).

La convergence du schéma est imposée par la condition suivante

$$\left| \tilde{P}_\beta^{n+1} - \tilde{P}_\beta^n \right| \leq \varepsilon_0 \quad (5.24)$$

correspondant à un champ de vitesse dont la divergence est inférieure à  $\varepsilon_0/\rho$ .

Il ne reste plus maintenant qu'à discrétiser l'Eq. (5.20). Si l'on considère la composante selon  $x$ , on a :

– Pour le terme de Darcy :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Delta x \Delta y \Delta z} \int_{k-1/2}^{k+1/2} \int_{j-1/2}^{j+1/2} \int_i^{i+1} \frac{\mu}{K} \tilde{V}_x dx dy dz &= \left( \frac{\mu}{K} \right)_{i+1/2,j,k} \left( \tilde{V}_x \right)_{i+1/2,j,k} \\ &= \frac{\mu (K_{i,j,k} + K_{i+1,j,k})}{2K_{i,j,k} K_{i+1,j,k}} \left( \tilde{V}_x \right)_{i+1/2,j,k} \end{aligned} \quad (5.25)$$

– Pour le terme de gradient de pression :

$$\frac{1}{\Delta x \Delta y \Delta z} \int_{k-1/2}^{k+1/2} \int_{j-1/2}^{j+1/2} \int_i^{i+1} \frac{\partial \tilde{P}}{\partial x} dx dy dz = \frac{1}{\Delta x} [\tilde{P}_{i+1,j,k} - \tilde{P}_{i,j,k}] \quad (5.26)$$

– Pour le terme de diffusion visqueuse :

$$\begin{aligned} & \frac{1}{\Delta x \Delta y \Delta z} \int_{k-1/2}^{k+1/2} \int_{j-1/2}^{j+1/2} \int_i^{i+1} \frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \left( \frac{\partial^2 \tilde{V}_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \tilde{V}_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \tilde{V}_x}{\partial z^2} \right) dx dy dz \\ &= \left( \frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \right)_{i+1/2,j,k} \left[ \begin{aligned} & \frac{1}{\Delta x} \left( \frac{\partial \tilde{V}_x}{\partial x} \right)_{i+1-\varepsilon,j,k} - \frac{1}{\Delta x} \left( \frac{\partial \tilde{V}_x}{\partial x} \right)_{i+\varepsilon,j,k} \\ & + \frac{1}{\Delta y} \left( \frac{\partial \tilde{V}_x}{\partial y} \right)_{i+1/2,j+1/2-\varepsilon,k} - \frac{1}{\Delta y} \left( \frac{\partial \tilde{V}_x}{\partial y} \right)_{i,j-1/2+\varepsilon,k} \\ & + \frac{1}{\Delta z} \left( \frac{\partial \tilde{V}_x}{\partial z} \right)_{i+1/2,j,k+1/2-\varepsilon} - \frac{1}{\Delta z} \left( \frac{\partial \tilde{V}_x}{\partial z} \right)_{i+1/2,j,k-1/2+\varepsilon} \end{aligned} \right] \\ &= \frac{\mu (\varepsilon_{i,j,k} + \varepsilon_{i,j,k})}{2\varepsilon_{i,j,k}\varepsilon_{i,j,k}} \left[ \begin{aligned} & \left( \frac{(\tilde{V}_x)_{i+3/2,j,k} - 2(\tilde{V}_x)_{i+1/2,j,k} + (\tilde{V}_x)_{i-1/2,j,k}}{(\Delta x)^2} \right) \\ & + \left( \frac{(\tilde{V}_x)_{i+1/2,j+1,k} - 2(\tilde{V}_x)_{i+1/2,j,k} + (\tilde{V}_x)_{i+1/2,j-1,k}}{(\Delta y)^2} \right) \\ & + \left( \frac{(\tilde{V}_x)_{i+1/2,j,k+1} - 2(\tilde{V}_x)_{i+1/2,j,k} + (\tilde{V}_x)_{i+1/2,j,k-1}}{(\Delta z)^2} \right) \end{aligned} \right] \quad (5.27) \end{aligned}$$

Dans le but de valider ce modèle de Darcy-Brinkman dans le cadre de la résolution de l'écoulement pour des milieux à deux régions fluide-poreux, nous avons étudié le cas du canal fluide à parois poreuses (cf. Fig. 5-1).



FIG. 5-1 – cas test du canal

Le fluide s'écoule uniquement selon la direction axiale  $x$ , le problème prend la forme suivante

(en considérant  $\mathbf{K}_{fluide} \rightarrow \infty$  dans la zone fluide) :

$$-\frac{dP_\beta}{dx} + \mu \frac{d^2 v_x}{dy^2} = 0 \quad \text{dans le canal} \quad (5.28)$$

$$\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \frac{d^2 u_x}{dy^2} - \frac{dP_\beta}{dx} - \frac{\mu}{K} u_x = 0 \quad \text{dans le milieu poreux} \quad (5.29)$$

$$v_x = u_x \quad \text{à } y = \pm \frac{h}{2} \quad (5.30)$$

$$\mu \frac{dv_x}{dy} = \frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \frac{du_x}{dy} \quad \text{à } y = \pm \frac{h}{2} \quad (5.31)$$

$$u_x \rightarrow -\frac{K}{\mu} \frac{dP_\beta}{dx} \quad \text{pour } y \rightarrow \pm\infty \quad (5.32)$$

la solution analytique nous donne alors (Larrea 1991) :

$$v_x = \frac{1}{2\mu} \frac{dP_\beta}{dx} \left( y^2 - \frac{h^2}{4} - h\sqrt{K\varepsilon_\beta} - 2K \right) \quad \text{dans le canal} \quad (5.33)$$

$$u_x = -\frac{K}{\mu} \frac{dP_\beta}{dx} + \sqrt{\frac{\varepsilon_\beta}{K}} \frac{\varepsilon_\beta}{\mu} \frac{dP_\beta}{dx} \frac{h}{2} \exp\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_\beta}{K}} \left(\frac{h}{2} + y\right)\right) \quad \text{dans la zone poreuse } y < 0 \quad (5.34)$$

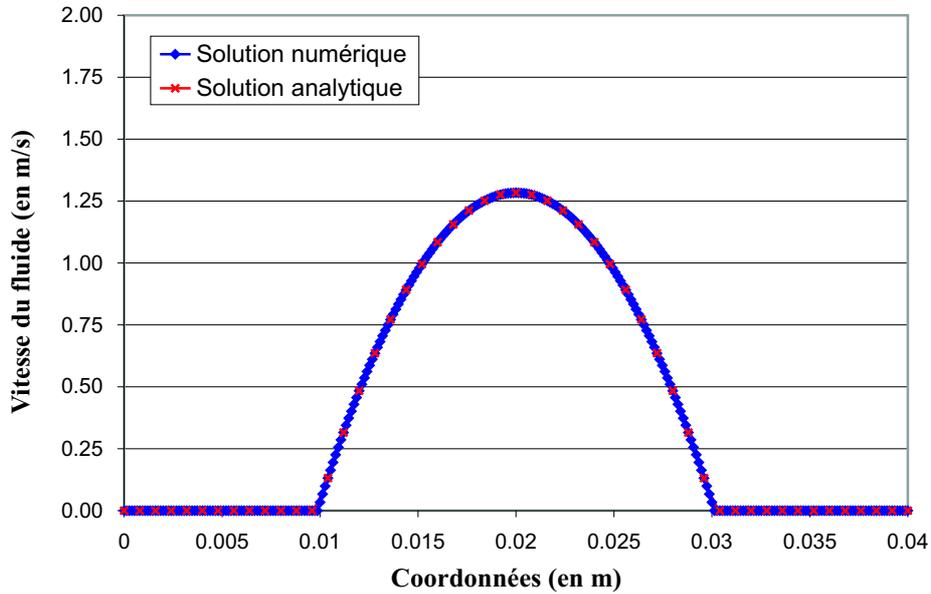


FIG. 5-2 – Comparaison des profils de vitesse

La comparaison avec la solution numérique avec 300 mailles selon  $y$  est donnée en Fig. 5-2 pour  $h = 4 \text{ cm}$ ,  $\mu = 10^{-3} \text{ Pa.s}$ ,  $K = 10^{-12} \text{ m}^2$ ,  $\varepsilon_\beta = 0.38$  et  $\frac{dP_\beta}{dx} = 25 \text{ Pa.m}^{-1}$ . On observe une parfaite superposition des profils de vitesse.

## 5.2 Méthodes de résolution pour la partie transport et dissolution

La résolution de l'équation de transport (4.29) nécessite un schéma à la fois robuste et précis. Nous utiliserons ici une méthode des pas fractionnaires ou time-splitting pour découpler l'équation en sa partie hyperbolique (terme convectif) et sa partie elliptique (terme diffusif) associée au terme d'échange interfacial. Il est nécessaire d'apporter ici quelques précisions sur les différents processus de transport intervenant dans le problème de dissolution. Chacun d'eux exhibe des constantes de temps caractéristiques si différentes qu'il est difficile d'utiliser un même schéma et un même pas de temps pour résoudre l'Eq. (4.29) de manière globale. On peut distinguer en effet :

- **Le terme de transport convectif** auquel on peut associer un temps caractéristique de convection déterminé par la condition CFL :  $t_{conv} = \lambda \max(V_\beta/\varepsilon_\beta) / \Delta x$  où  $\lambda$  correspond à la constante CFL.
- **le terme de transport diffusif** caractérisé par un pas de temps diffusif :  $t_{diff} = L^2/D$
- **le terme d'échange massique** qui présente un temps caractéristique  $t_\alpha$  de l'ordre de  $1/\alpha$ . Ce pas de temps reste toutefois difficile à définir précisément et nous préférons conserver dans nos calculs le pas de temps convectif pour contrôler le processus de transfert interfacial.

L'intérêt d'une méthode de time-splitting est de pouvoir utiliser la méthode de résolution numérique ainsi que les pas de temps de calcul les plus appropriés à chacun des termes de l'équation. L'inconvénient est qu'elle découple totalement les différents mécanismes physiques. Il est donc nécessaire de bien vérifier qu'une telle approche n'induit pas des erreurs numériques au niveau du transport du front de dissolution (Tardy & Quintard 1999). Des tests seront effectués dans ce sens au chapitre 6.1 où nous comparerons les résultats numériques obtenus pour la propagation d'un front 1D avec la solution analytique. Bien que des tentatives aient été effectuées pour traiter de manière couplée le transport et le terme de transfert (Burton 1993, Hubbard & Garcia-Navarro 2000, Ahmad & Berzins 2001), cette approche reste néanmoins la meilleure en l'état actuel des connaissances.

Nous écrivons donc l'Eq. (4.29) sous la forme suivante :

$$\varepsilon_\beta \frac{C_{A\beta}^{n+1} - C_{A\beta}^* + C_{A\beta}^* - C_{A\beta}^n}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\beta^* \cdot \nabla C_{A\beta}) - \alpha C_{A\beta} \quad (5.35)$$

Nous chercherons dans un premier temps le vecteur solution  $C_{A\beta}^*$  de la partie convective de l'équation

$$\varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla C_{A\beta} = 0 \quad (5.36)$$

puis nous introduirons ce résultat pour résoudre la partie diffusive associée au terme de flux d'échange interfacial

$$\varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\beta^* \cdot \nabla C_{A\beta}) - \alpha C_{A\beta} \quad (5.37)$$

La partie convective hyperbolique nécessite d'être précis à l'ordre deux en espace. Il existe un schéma qui est d'ordre deux dans les zones régulières de la solution : le schéma de Lax-Wendroff. Malheureusement, ce schéma est connu pour donner des oscillations autour des chocs. Deux schémas quasi d'ordre deux ont donc été implémenté : une version améliorée par Bruneau et al. (1997) du schéma à limiteur de flux de **Takacs (1985)**, qui utilise une approximation du premier ordre au niveau des chocs et du deuxième ordre là où la solution est régulière, et le schéma de **Harten (1983)** qui rentre dans la catégorie des schémas anti-diffusés. Ce sont deux schémas TVD (Total Variation Diminishing), non oscillants et stables dans l'espace  $L^\infty$ .

On a comparé les résultats obtenus par ces deux schémas pour la propagation d'un front de concentration se déplaçant à vitesse constante (Fig. 5-3) et exponentielle (Fig. 5-4) dans le cas d'un transport d'effluent en milieu poreux. A titre de comparaison, la solution obtenue à l'aide du schéma **Power-law** (version améliorée du schéma **Amont**, voir Patankar 1980) que l'on trouve classiquement dans les codes industriels pétroliers est aussi présentée.

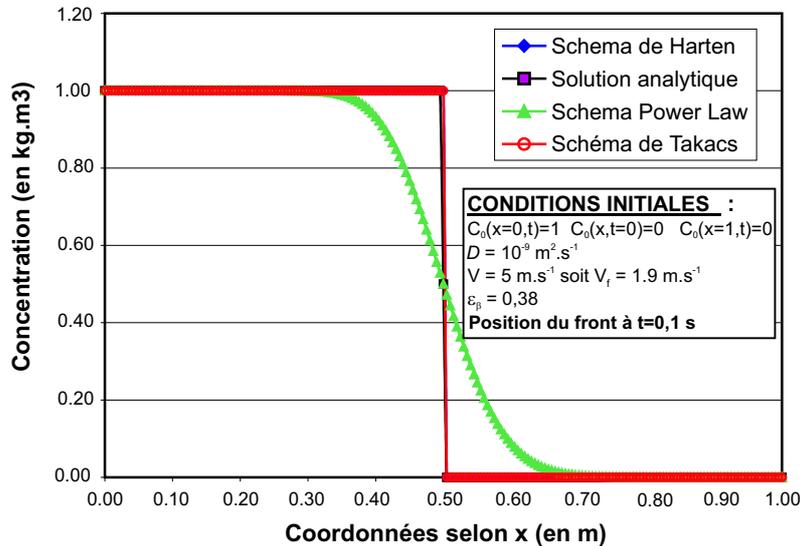


FIG. 5-3 – Propagation d'un front de concentration à vitesse constante

On constate bien entendu une bien meilleure précision des schémas quasi d'ordre deux sur ce type de schéma fortement diffusif. En ce qui concerne les différences entre nos deux schémas TVD, on peut observer dans le cas de l'injection à vitesse variable un léger gain en précision avec le schéma de **Takacs**. C'est donc ce schéma qui sera utilisé pour la suite de nos calculs.

Ces deux schémas ont été écrits en trois dimensions direction par direction ce qui signifie que les termes croisés de flux selon les directions  $xy$ ,  $xz$  ou  $yz$  ont été négligés. L'effet d'orientation des mailles dû à l'utilisation d'un schéma discrétisé direction par direction a donc été testé dans le cas d'un problème de transport par convection de colline de concentration gaussienne au sein d'un écoulement en rotation. Les conditions initiales et aux limites de ce problème sont définies

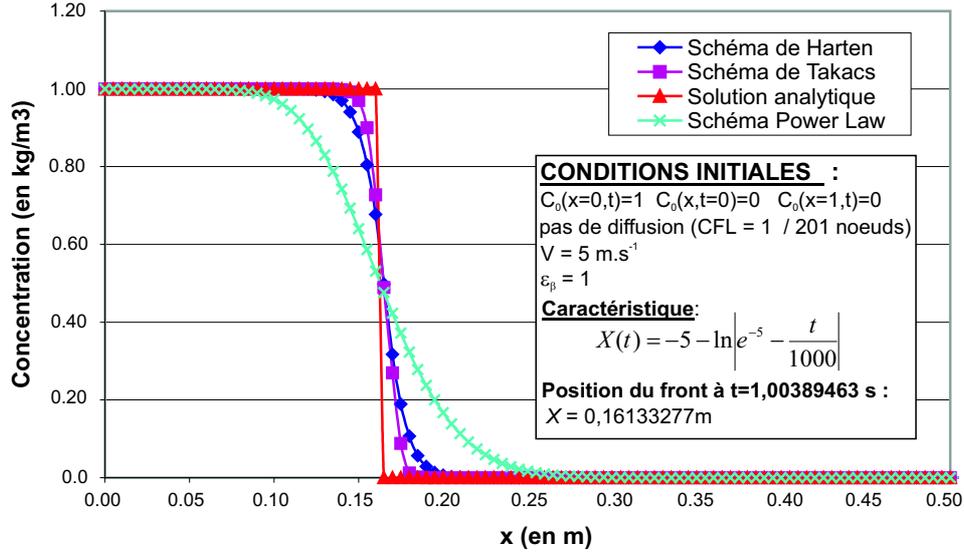


FIG. 5-4 – Propagation d'un front de concentration à vitesse exponentielle

de la manière suivante :

$$c(x, y, 0) = \exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma_0^2} - \frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_0^2}\right) \quad (5.38)$$

$$c(x, y, t) \rightarrow 0 \quad \text{quand } x^2 + y^2 \rightarrow \infty \quad (5.39)$$

$$u(y) = -\omega y \text{ est la vitesse selon } x \quad (5.40)$$

$$v(x) = \omega x \text{ est la vitesse selon } y \quad (5.41)$$

où  $x_0$  et  $y_0$  représentent le centre de masse du champ de concentration initial,  $\sigma_0$  sa déviation standard et  $\omega$  la fréquence angulaire de rotation.

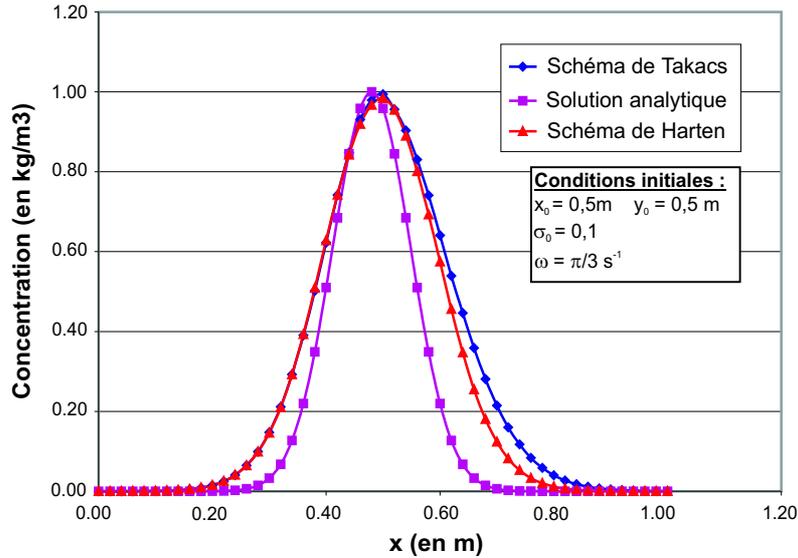
Les résultats numériques sont comparés à la solution analytique obtenue par la méthode des caractéristiques (Figs. 5-5 et 5-6).

On constate effectivement une influence du maillage qui entraîne un léger décalage des profils de concentration plus importante selon  $x$  pour **Harten** et selon  $y$  pour **Takacs**. Le degré de précision obtenu est cependant jugé suffisant.

En ce qui concerne la partie diffusive auquel vient s'ajouter le terme de flux d'échange interfacial, donnée par l'Eq. (5.37), elle est discrétisée classiquement avec un schéma implicite. Nous obtenons un système sous forme matricielle  $\mathbf{AC}^{n+1} = \mathbf{b}$  que nous résolvons avec l'algorithme **BI-CGSTAB**, comme pour la partie écoulement.

Enfin, l'Eq. (4.34) est discrétisée de manière explicite par :

$$\varepsilon_\beta^{n+1} = \varepsilon_\beta^n + \frac{\delta t \beta \alpha C_{A\beta}^n}{\rho_\sigma} \quad (5.42)$$


 FIG. 5-5 – Profil de concentration gaussienne en  $x_0$ 

Nous avons ainsi complètement discrétisé les équations macroscopiques de notre modèle. Il nous reste maintenant à déterminer les composantes du tenseur de dispersion macroscopique et le coefficient de transfert de masse.

### 5.3 Résolution des problèmes de fermeture

En absence de données expérimentales pour la dissolution du sel, le coefficient de transfert de masse et le tenseur de dispersion apparaissant dans les équations macroscopiques sont déterminés à partir des problèmes de fermeture détaillés dans le § 4.2.3. Ils dépendent des caractéristiques microscopiques du domaine et nécessitent de résoudre les problèmes de fermeture sur des cellules unitaires représentatives du milieu (Quintard 1996a). La géométrie de la cellule unitaire utilisée peut en principe être aussi complexe que nécessaire afin de représenter le plus parfaitement possible le système réel et de prendre en compte la complexité du champ de vitesse. Les résultats présentés par la suite dans le chapitre 6, montrent cependant que le comportement qualitatif du modèle, ne dépend pas de manière significative du choix de la cellule unitaire. En raison du manque d'informations disponibles sur le milieu poreux utilisé dans nos expériences, une représentation simplifiée de la structure du milieu poreux a été adoptée. Pour le système eau-sel qui nous intéresse plus particulièrement, les grains de NaCl ayant une forme de plaquette, la géométrie de la cellule périodique bidimensionnelle, donnée Fig. 5-7, est de forme rectangulaire. La variation des coefficients de transfert et de dispersion est calculée pour différentes porosités et en fonction du nombre de Péclet de cellule défini par

$$Pe_{cell} = \frac{|\mathbf{V}_\beta| l_\beta}{\varepsilon_\beta D} \quad (5.43)$$

où  $l_\beta$  est la longueur de la cellule unitaire représentée Fig. 5-7.

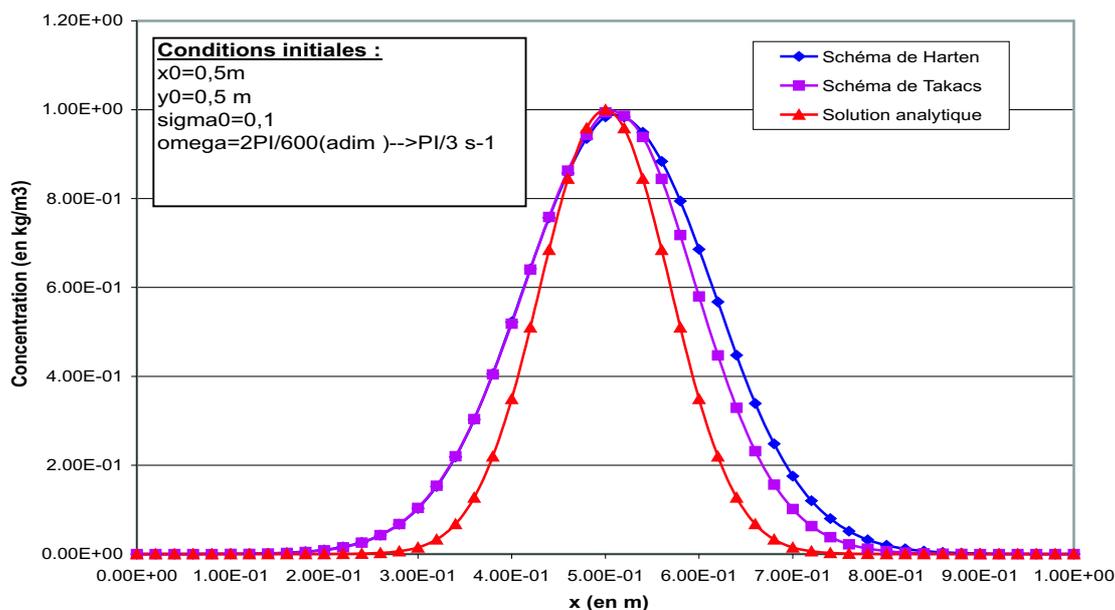
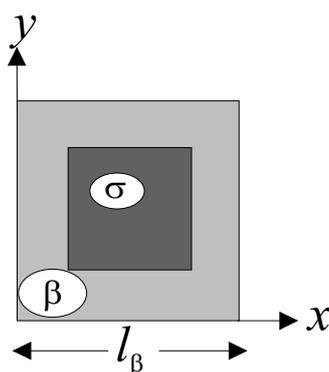
FIG. 5-6 – Profil de concentration gaussienne en  $y_0$ 

FIG. 5-7 – Cellule unitaire pour le calcul des propriétés effectives

En outre, la géométrie de la cellule est telle que l'on peut s'attendre à une dépendance du résultat vis à vis de l'inclinaison du vecteur vitesse. Nous calculons donc un coefficient macroscopique moyen correspondant à une vitesse quelconque d'injection en effectuant une moyenne géométrique entre les valeurs obtenues pour les deux inclinaisons extrêmes ( $0^\circ$  et  $45^\circ$ ).

Nous pouvons ainsi déterminer les coefficients macroscopiques à utiliser en chaque maille du domaine. Si nous posons comme hypothèse que le processus de dissolution à l'échelle du pore peut être assimilé à une dissolution uniforme, il est possible de remplacer la dépendance historique des paramètres effectifs par ces corrélations fonctions de la vitesse et de la porosité. Les méthodes numériques employées pour la résolution de ces problèmes de fermeture sont décrites dans la littérature (Quintard & Whitaker 1994a, Quintard 1996a).

### 5.3.1 Coefficient de transfert de masse

Le coefficient  $\alpha$  représente le flux d'échange massique entre la phase solide et la phase fluide. On observe sur les Figs. 5-8 et 5-9 un régime diffusif suivi d'un régime dispersif, plus prononcé lorsque la porosité est importante. De même, pour un Péclet donné, le coefficient de transfert diminue lorsque la porosité augmente ce qui est logique puisque la surface d'échange diminue. Cette dernière propriété va jouer un rôle au niveau de la cinétique de dissolution puisque elle va avoir tendance à contrebalancer la formation de canaux principaux d'écoulement et favoriser la formation de ramifications. En effet, quand un volume poreux commence à se dissoudre, une plus grande quantité d'acide va pénétrer à l'intérieur (donc accroissement de la dissolution) mais le coefficient de transfert va diminuer (ralentissement de la dissolution). L'inclinaison du vecteur vitesse, par contre, joue un rôle négligeable, particulièrement à faible porosité.

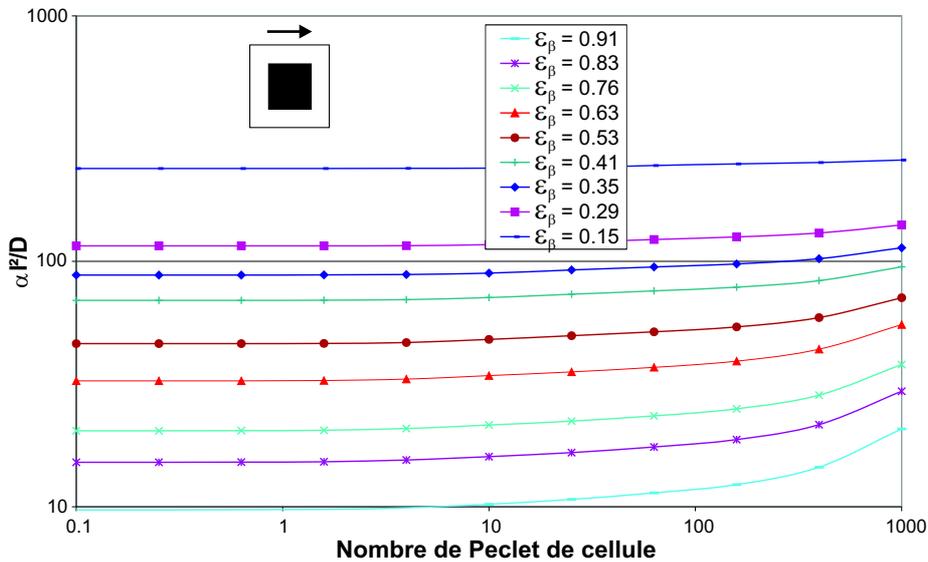


FIG. 5-8 – Variation du coefficient de transfert de masse  $\alpha$  en fonction du nombre de Péclet et pour différentes porosités (injection à  $0^\circ$ )

A partir du coefficient de transfert moyen calculé à partir des deux inclinaisons, une interpolation est réalisée sur les courbes obtenues de manière à exprimer  $\alpha$  sous la forme  $\alpha = A + B \cdot Pe^n$ . On obtient ainsi les coefficients d'interpolation (tableau A.1, *Annexe A*) qui sont introduits dans le code.

Le coefficient de transfert de masse joue un rôle majeur dans l'étude quantitative de la formation des wormholes, et cette analyse est supportée par les précédents travaux reportés dans la littérature. La difficulté est que le calcul de ce coefficient est très sensible aux hypothèses retenues (périodicité, forme rectangulaire, milieu 2D) pour la géométrie du milieu de référence, comme on peut le voir Fig. 5-10. Le lecteur pourra se reporter à Ahmadi et al. (2001) pour une discussion plus complète sur l'influence du choix de la cellule unitaire sur le calcul des coefficients effectifs. Pour surmonter ce problème, nous calons les corrélations obtenues aux données expérimentales (voir chapitre 6).

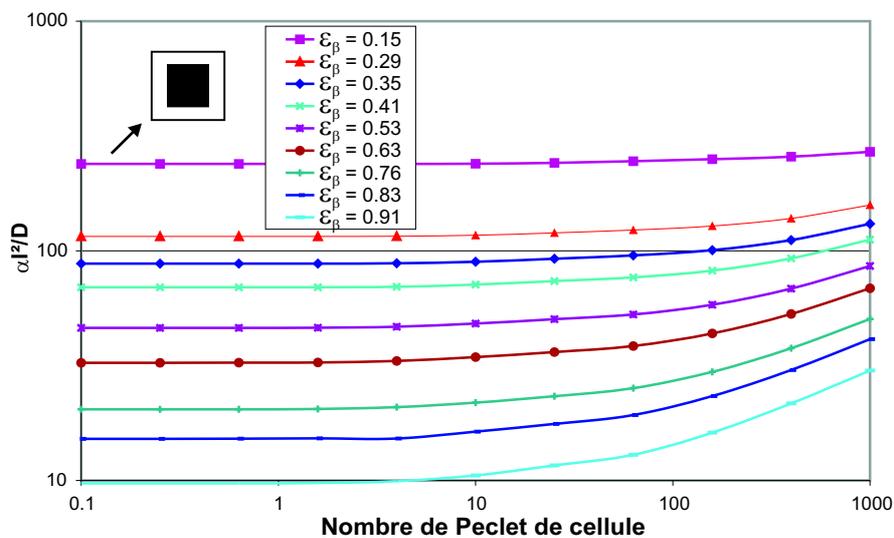


FIG. 5-9 – Variation du coefficient de transfert de masse  $\alpha$  en fonction du nombre de Péclet et pour différentes porosités (injection à  $45^\circ$ )

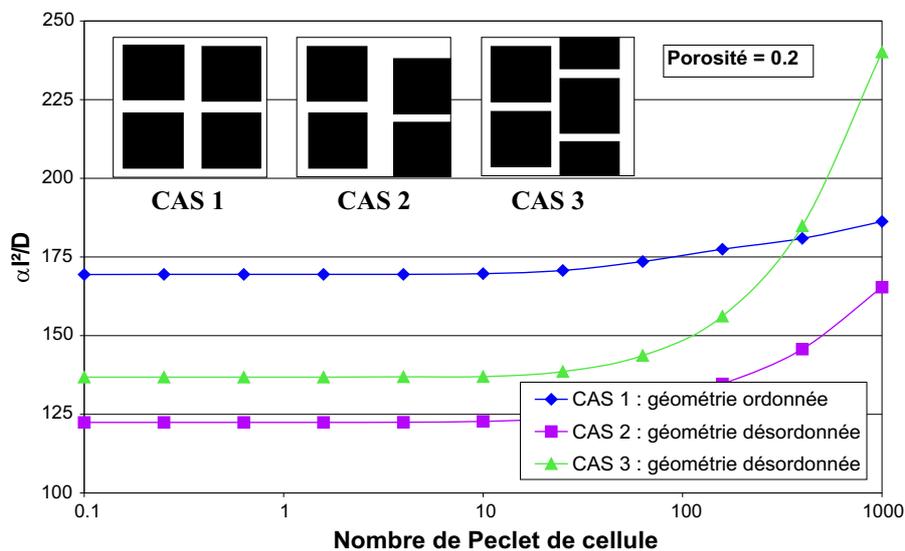


FIG. 5-10 – Comparaison de la valeur du coefficient de transfert,  $\alpha$ , pour différentes géométries

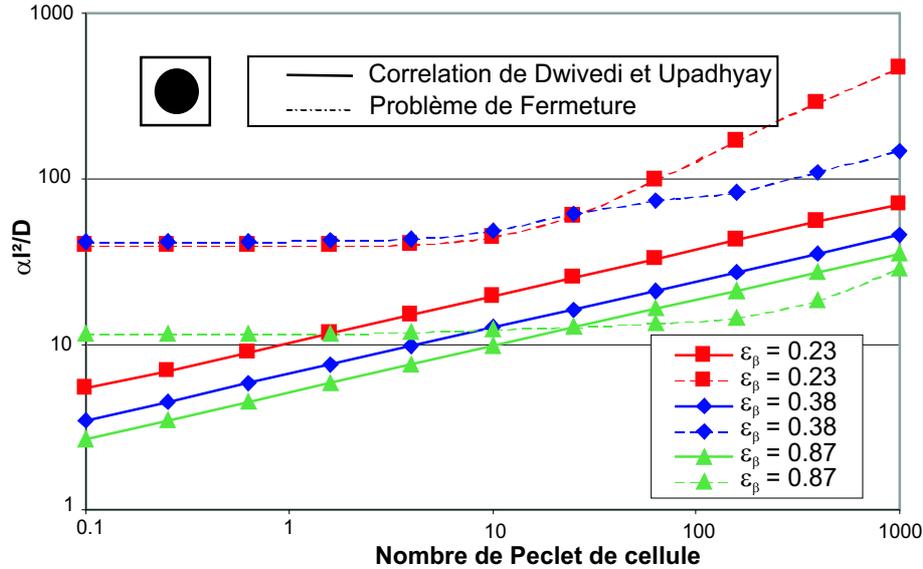


FIG. 5-11 – Comparaison des valeurs du coefficient de transfert obtenu par la solution du problème de fermeture et la corrélation de Dwivedi and Upadhyay (1977)

De nombreuses valeurs du coefficient de transfert de masse reportées dans la littérature ont été déterminés expérimentalement soit dans des réacteurs à écoulement annulaires (Mumallah 1991, Mumallah 1997, Mumallah 1998) ou pour des disques tournants (Lund et al. 1975, Gdanský & Van Domelen 1999). Compte tenu cependant de la difficulté à mesurer expérimentalement  $\alpha$ , les corrélations utilisées sont principalement limitées aux lits de billes tassées (Thoenes & Kramers 1958, Colquhoun-Lee & Stepanek 1974, Dwivedi & Upadhyay 1977). Le lecteur pourra trouver dans Fogler (1999) une présentation assez exhaustive des corrélations développées dans la littérature. En général, elles sont exprimées en fonction du nombre de Sherwood  $Sh$ , du nombre de Schmidt  $Sc$ , du nombre de Reynolds  $Re$  voire du facteur de Colburn  $J_D$  dont les expressions sont données ci-dessous :

$$Sh = \frac{\alpha d_p^2}{D} \quad Re = \frac{V_0 \rho_\sigma d_p}{\mu} \quad Sc = \frac{\mu}{\rho_\sigma D} \quad J_D = \frac{Sh}{Sc^{1/3} Re} \quad (5.44)$$

où  $V_0$  représente la vitesse de filtration du fluide et  $d_p$  le diamètre des particules. A titre de comparaison, la Fig. 5-11 illustre les écarts existant entre la solution du problème de fermeture pour un milieu périodique 2D de billes et la corrélation de Dwivedi & Upadhyay (1977) donnée ci-dessous

$$\epsilon_\beta J_D = \frac{0.765}{Re^{0.82}} + \frac{0.365}{Re^{0.386}} \quad \text{pour } Re > 0.01 \quad (5.45)$$

Deux commentaires doivent être apportés sur cette relation, caractéristique des corrélations utilisées en génie chimique : d'une part, l'absence de régime diffusif à faible nombre de Péclet (pas de valeur minimale pour le coefficient de transfert), et, d'autre part, l'utilisation de ces corrélations pour des trop faibles valeurs du nombre de Reynolds. Pour des Reynolds inférieurs à 1, en effet, c'est la solution des équations de Stokes qui caractérise le champ de vitesse, le

nombre de Reynolds n'est plus décorrélié du nombre de Schmidt et c'est le nombre de Péclet qui devrait être utilisé dans ces conditions pour caractériser l'écoulement. Néanmoins, comme la valeur du coefficient  $\alpha$  dépend fortement de la géométrie du domaine, il est difficile d'extrapoler à partir de ces travaux, une valeur effective pour la dissolution d'un milieu poreux réel.

Dans le travail de Fredd & Fogler (1998*b*), le coefficient de transfert de masse a été obtenu à partir de la solution analytique de l'équation de convection-diffusion en régime laminaire dans un tube capillaire comme développé par Levich (1962) :

$$K_{mt} = 1.86D^{2/3} \left( \frac{u_w}{d_w L_w} \right)^{1/3} \quad (5.46)$$

où  $K_{mt}$  est le coefficient de transfert de masse de Levich,  $d_w$  et  $L_w$  sont respectivement le diamètre et la longueur du tube capillaire, et  $u_w$  est la vitesse intersticielle dans le tube. Cette corrélation a l'avantage d'être dépendante du coefficient de diffusion et de la vitesse. Cependant, il est important de rappeler qu'elle est obtenue en négligeant le terme de dérivée seconde de la concentration selon la direction axiale, ce qui implique que la partie diffusive n'est pas prise en compte dans l'expression du coefficient de transfert de masse. En conséquence, cette relation reste valable pour des nombres de Péclet suffisamment grands et son utilisation en régime conique ou le nombre de Peclet est relativement faible peut entraîner une sous-estimation des effets diffusifs. En outre, une confusion est faite ici entre les différentes échelles, de par l'utilisation des caractéristiques du wormhole au lieu des propriétés à l'échelle du pore pour définir le coefficient de transfert de masse. Dans l'expression de l'Eq. (5.46),  $K_{mt}$  est un coefficient de transfert de masse à l'échelle de la carotte et non un coefficient de transfert de masse à l'échelle de Darcy. Dans l'approche à l'échelle de Darcy, de tels processus de non équilibre sont modélisés directement par l'interaction entre les différents mécanismes de convection et de diffusion.

### 5.3.2 Tenseur de dispersion

Le tenseur de dispersion  $\mathbf{D}_\beta^*$  représente l'ensemble des phénomènes mécaniques, chimiques, à la fois diffusifs et dispersifs qui opèrent à l'échelle inférieure. Ce coefficient inclut ainsi la diffusion moléculaire, liée à l'agitation moléculaire, et la dispersion hydrodynamique, phénomène de mélange lié à l'hétérogénéité des vitesses microscopiques. Pour représenter physiquement la dispersion à l'échelle de Darcy, la formulation de Bear (1961) a été adoptée

$$D_{ij}^* = \left( \alpha_T |\mathbf{V}_\beta| + D^{eff} \right) \delta_{ij} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_i V_j}{|\mathbf{V}_\beta|} \quad (5.47)$$

où  $D_{ij}^*$  est un coefficient du tenseur de dispersion  $\mathbf{D}_\beta^*$  et  $V_i$  est une des composantes du vecteur vitesse  $\mathbf{V}_\beta$ . On sait expérimentalement et théoriquement que cette dépendance n'est qu'une approximation, d'autant plus valable que le milieu est très désordonné. Dans cette définition, la dispersion locale  $\mathbf{D}_\beta^*$  dépend de la vitesse locale  $\mathbf{V}_\beta$  par l'intermédiaire de deux dispersivités  $\alpha_L$  et  $\alpha_T$ , et du coefficient de diffusion effective  $D^{eff}$ . Ce coefficient représente le phénomène de diffusion moléculaire isotrope et prend en compte la tortuosité du milieu à l'échelle du pore.

On pourrait aisément prendre en compte des mécanismes de diffusion anisotropes.

Cette formulation conduit à un tenseur de dispersion complet. Pour déterminer les dispersivités et pouvoir ainsi accéder au tenseur de dispersion, nous calculerons donc les coefficients diagonaux  $D_{xx}$  et  $D_{yy}$  par l'intermédiaire des problèmes de fermeture. En effet, si l'on prend  $|\mathbf{V}_\beta| = V_x$ , on peut exprimer le coefficient de dispersion adimensionnel sous la forme :

$$\frac{D_{xx}^*}{D} = \varepsilon_\beta + \frac{\alpha_L}{l_\beta} Pe_{cell} \quad (5.48)$$

$$\frac{D_{yy}^*}{D} = \varepsilon_\beta + \frac{\alpha_T}{l_\beta} Pe_{cell} \quad (5.49)$$

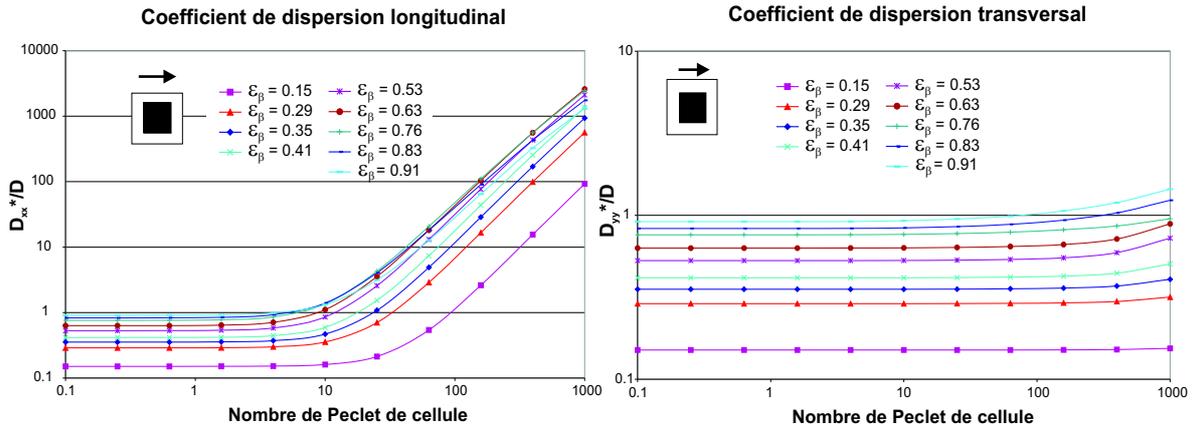


FIG. 5-12 – Variation des coefficient de dispersion en fonction du nombre de Péclet et pour différentes porosités (injection à  $0^\circ$ )

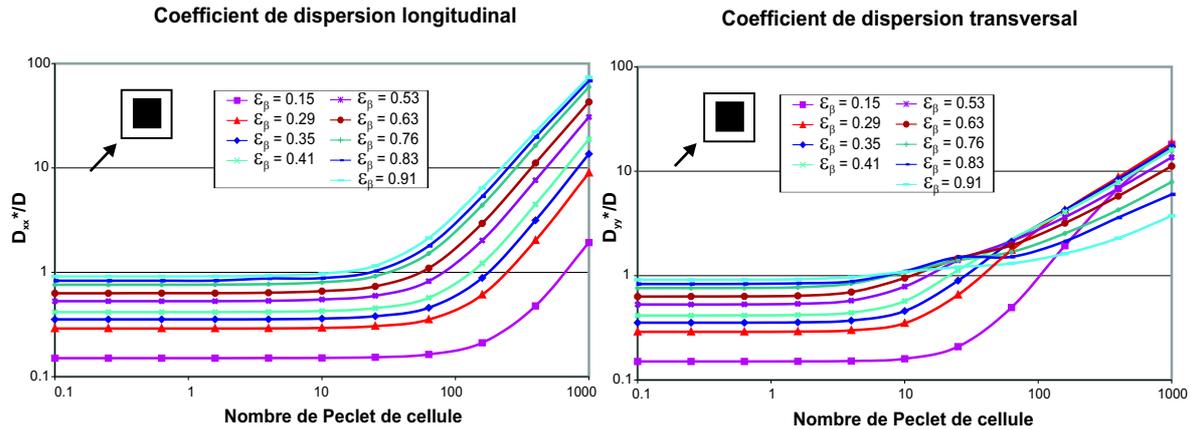


FIG. 5-13 – Variation des coefficient de dispersion en fonction du nombre de Péclet et pour différentes porosités (injection à  $45^\circ$ )

Compte tenu de la géométrie de la cellule, on calcule, comme pour le coefficient de transfert, un coefficient de dispersion moyen en effectuant une moyenne entre les deux positions extrêmes

de la cellule microscopique (orientation à  $0^\circ$  et  $45^\circ$ ). On observe Figs. 5-12 et 5-13 un régime diffusif, suivi d'un régime dispersif, plus prononcé pour le coefficient de dispersion longitudinal. Le coefficient transversal est en outre strictement inférieur au coefficient longitudinal, à partir d'une certaine vitesse. Il est intéressant de vérifier que la résolution du problème de fermeture tend bien pour de faibles valeurs de Péclet vers  $\varepsilon D$  qui est la solution attendue pour ce type de milieu en dispersion active, c'est-à-dire en dispersion avec transfert de masse (en dispersion passive par contre, on obtiendrait  $\varepsilon D/2$ ). Si l'influence de la direction de l'écoulement était négligeable sur le coefficient de transfert, on observe ici d'importantes variations. Les coefficients transversaux et longitudinaux deviennent du même ordre de grandeur pour une injection à  $45^\circ$  et le coefficient transversal qui était auparavant quasi constant montre avec cette orientation un point d'inflexion très net lorsque le Peclet augmente.

Une fois les coefficients de dispersion moyennés, les courbes sont interpolées et les dispersivités adimensionnelles exprimées sous la forme  $\frac{\alpha}{l} = a \cdot Pe^b$  dont les données sont rassemblées en *Annexe A*.

## 5.4 Formation des instabilités

Dans un milieu poreux réel, des hétérogénéités apparaissent à toutes les échelles. Même si un milieu est dit homogène *pour une échelle d'observation donnée*, des hétérogénéités existent aux échelles inférieures. Les hétérogénéités à l'échelle microscopique sont ainsi à l'origine du développement des wormholes et du faciès de dissolution observé. Un milieu poreux totalement homogène à toutes les échelles (sans perturbation), conduirait en effet à un front de dissolution parfaitement plat, pour le problème aux limites étudié, quelle que soit la vitesse d'injection. Les perturbations microscopiques sont lissées par la description macroscopique dans le modèle à l'échelle de Darcy. Afin d'obtenir le développement d'instabilités, il est donc nécessaire d'introduire des perturbations numériques dans le système. Plusieurs choix sont possibles : (i) perturbation du champ de concentration initial, (ii) condition aux limites perturbées, (iii) caractéristiques du milieu poreux perturbées. Nous avons opté pour la troisième possibilité en superposant au champ de perméabilité homogène un "*bruit blanc*" aléatoire suivant une loi de distribution uniforme de longueur de corrélation nulle. A titre d'exemple, un champ de perméabilité perturbé est représenté Fig. 5-14.

Les petites fluctuations,  $\varepsilon$ , ajoutées ici au champ de perméabilité, peuvent être perçues comme une conséquence des hétérogénéités à l'échelle du pore. L'influence de la perturbation initiale sur la dynamique de dissolution et le faciès obtenu a été testée en faisant varier l'amplitude du "*bruit blanc*" :

- Pour des perturbations de faible amplitude (10% de la perméabilité moyenne), un *très faible impact sur le développement du wormhole a été observé*. C'est l'ordre de grandeur des perturbations utilisées dans toutes nos études *quantitatives* : étude du débit optimum, prédiction du débit pour comparaison avec les résultats expérimentaux ... On perd en revanche des informations sur le faciès du wormhole avec peu de ramifications latérales, la forme du wormhole obtenue étant plus schématique.

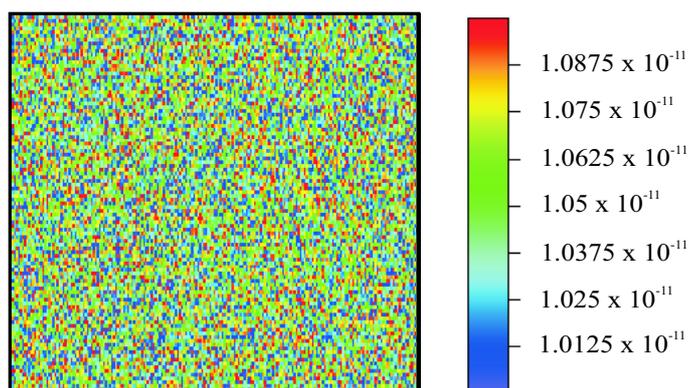


FIG. 5-14 – Exemple de champ de perméabilité perturbé au temps initial

- Pour des perturbations plus importantes en revanche (variation de perméabilité d'un facteur 5 au sein du domaine), si l'influence sur le développement du wormhole n'est plus négligeable d'un point de vue quantitatif, on conserve malgré tout les mêmes tendances et les mêmes effets. On obtient des figures de dissolution beaucoup plus détaillées, la structure du champ de perméabilité favorisant le développement de ramifications. Ce type de perturbation a été utilisé *uniquement* au niveau de la présentation des figures de dissolution.

# Chapitre 6

## Résultats et discussion

Un grand nombre de simulations a été réalisé, en faisant varier les différents paramètres d'injection : débit, concentration, longueur du domaine, ... Elles sont présentées ci-dessous.

### 6.1 Simulations 1D : propagation du front de dissolution

Dans un premier temps, nous allons étudier les solutions 1D de la propagation d'un front de dissolution (Knabner et al. 1995, Van Duijn et al. 1998). L'intérêt d'une telle approche est, d'une part, de pouvoir déterminer simplement une solution analytique afin de vérifier la validité du modèle, et, d'autre part, de pouvoir réaliser ultérieurement une étude de stabilité.

Nous distinguerons les deux cas limites de propagation selon que l'on se place ou non dans des conditions d'équilibre massique local. Le coefficient de transfert sera conservé constant de manière à faciliter la détermination des solutions analytiques.

#### 6.1.1 Equilibre local (front de dissolution compact)

Injection à Vitesse Constante	
201 noeuds	$D = 2.10^{-9} m^2.s^{-1}$
$C_0 = 150 kg.m^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} Pa.s$
$\varepsilon_\beta = 0.2$	$\beta = 1.62$
$\rho_\sigma = 2160 kg.m^{-3}$	$\alpha = 10 s^{-1}$
$K = 10^{-11} \pm \varepsilon m^2$	$V_0 = 4.10^{-4} m.s^{-1}$

TAB. 6.1 – Données numériques

La propagation du front de dissolution ( $\varepsilon_\beta = 1$ ) au cours du temps, représentée Fig. 6-1 est obtenue pour les conditions d'injection rassemblées dans le tableau 6.1 pour un domaine de 25 cm. On peut observer sur la Fig. 6-2 qui représente le champ de porosité à un instant donné, un front de dissolution raide caractéristique des conditions d'équilibre local. Il est possible dans ces conditions de déterminer la perméabilité effective  $K^*$  du milieu en fonction de la position du front, c'est-à-dire de la fraction fluide  $\phi_\omega$ . Nous pouvons alors écrire la relation  $K^* - \phi_\omega$ ,

pour  $0 \leq \phi_\omega \leq 1$ , sous la forme :

$$K^* = \frac{K K_{fluid}}{(1 - \phi_\omega) K_{fluid} + \phi_\omega K} \quad (6.1)$$

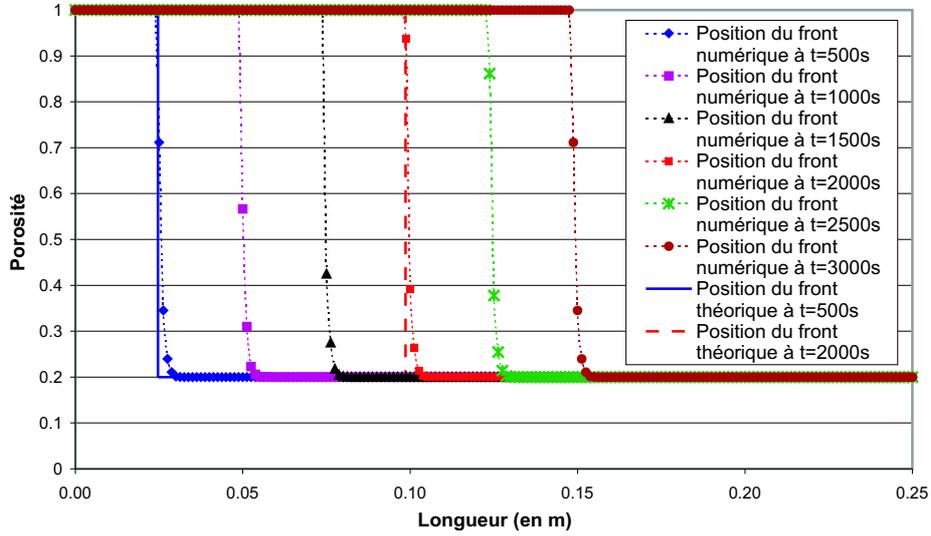


FIG. 6-1 – Propagation du front de dissolution numérique et théorique au cours du temps



FIG. 6-2 – Champ de porosité à  $t = 3500$  s

Si l'on néglige le terme diffusif dans l'équation de transport, on peut facilement déterminer l'expression de la vitesse de propagation du front  $\mathbf{V}_f$ . Soit le système d'équations d'advection-réaction mise sous forme conservative :

$$\frac{\partial (\varepsilon_\beta C_{A\beta})}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}) = -\alpha C_{A\beta} \quad (6.2)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = \frac{\beta \alpha C_{A\beta}}{\rho_\sigma} \quad (6.3)$$

d'où :

$$\frac{\partial (\varepsilon_\beta C_{A\beta})}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}) + \frac{\rho_\sigma}{\beta} \frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = 0 \quad (6.4)$$

Appliquons maintenant la théorie des distributions à cette équation en considérant la condition de saut à l'interface fluide-poreux  $A_{\omega\eta}$ . La formulation faible nous donne selon la direction

de l'écoulement (avec  $\varphi$  une fonction indéfiniment dérivable à support borné) :

$$\int_V \frac{\partial(\varepsilon_\beta C_{A\beta})}{\partial t} \varphi dV + \int_V \nabla \cdot (\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}) \varphi dV + \int_V \frac{\rho_\sigma}{\beta} \frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} \varphi dV = 0 \quad (6.5)$$

$$\begin{aligned} & - \int_V (\varepsilon_\beta C_{A\beta}) \frac{\partial \varphi}{\partial t} dV - \int_{A_{\varpi\eta}} \mathbf{V}_f [\varepsilon_\beta C_{A\beta}]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} \varphi dA - \int_V (\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}) \frac{\partial \varphi}{\partial x} dV \\ & + \int_{A_{\varpi\eta}} [\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} \varphi dA - \int_V \frac{\rho_\sigma \varepsilon_\beta}{\beta} \frac{\partial \varphi}{\partial t} dV - \int_{A_{\varpi\eta}} \frac{\rho_\sigma}{\beta} \mathbf{V}_f [\varepsilon_\beta]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} \varphi dA = 0 \end{aligned} \quad (6.6)$$

On en déduit :

$$\left( -\mathbf{V}_f [\varepsilon_\beta C_{A\beta}]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} - \frac{\rho_\sigma}{\beta} \mathbf{V}_f [\varepsilon_\beta]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} + [\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta}, \varphi \right) = 0 \quad (6.7)$$

$$-\mathbf{V}_f [\varepsilon_\beta C_{A\beta}]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} - \frac{\rho_\sigma}{\beta} \mathbf{V}_f [\varepsilon_\beta]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} + [\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}]_\omega^\eta \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} = 0 \quad (6.8)$$

Si l'on se place maintenant en équilibre local, c'est-à-dire avec  $C_{A\beta} = 0$  pour le milieu poreux  $\eta$ , on obtient pour finir :

$$-V_f (-C_0) - \frac{\rho_\sigma}{\beta} V_f (\varepsilon_\beta - 1) + (-V_0 C_0) = 0 \quad (6.9)$$

Soit

$$V_f = \frac{V_0 C_0}{\frac{\rho_\sigma \varepsilon_\beta}{\beta} + C_0} \quad (6.10)$$

où  $V_0$  et  $C_0$  sont respectivement la vitesse et la concentration d'injection.

Nous allons pouvoir tester à partir de la solution analytique la validité de nos schémas numériques. Bien que le schéma appliqué à l'équation de transport soit conservatif, il a été démontré en effet que l'introduction d'un terme source dans l'équation, dans notre cas la cinétique de transfert de masse, peut conduire, en accentuant la diffusion numérique, à des erreurs drastiques au niveau de la vitesse du front (Burton 1993, Hubbard & Garcia-Navarro 2000). Dans le cas d'écoulements multiphasiques multicomposants, par exemple, Tardy & Quintard (1999) ont montré que l'erreur était maximale dans des conditions d'équilibre local et qu'elle était fonction du pas de temps, de la taille du maillage et de la concentration injectée. Pour résoudre ce problème, ils ont proposé d'introduire une nouvelle équation basée sur la dérivation d'une loi de conservation pour la saturation.

Dans le cas qui nous occupe, on obtient pour la solution théorique  $V_f^{théo} = 4.93 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ , résultat très proche de celui obtenu numériquement ( $V_f^{num} = 5 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ ), comme on peut le voir Fig. 6-1. L'influence de la concentration d'acide injectée, de la taille du maillage ou du choix du pas de temps ont été testés et *n'ont pas présenté d'influence significative* sur le calcul de la position du front. En revanche, bien que l'on se place dans des conditions d'équilibre local, ce qui implique que la valeur choisie pour  $\alpha$  ne joue théoriquement plus de rôle au-delà de ce

seuil, un fort accroissement du coefficient de transfert induit des erreurs de diffusion numérique au niveau de la propagation du front comme on peut le voir Fig. 6-3. Il est donc primordial de veiller à ne pas utiliser de valeurs de  $\alpha$  artificiellement trop fortes pour modéliser les conditions d'équilibre local.

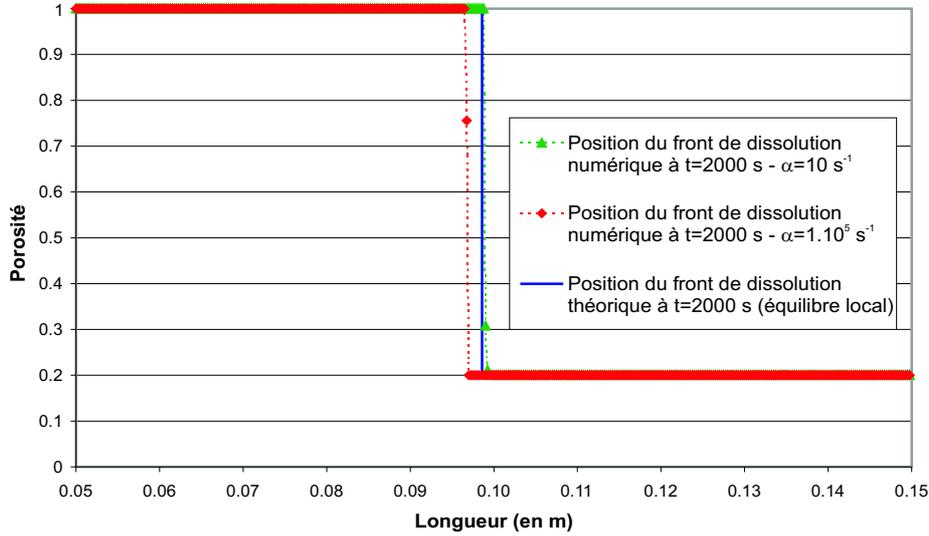


FIG. 6-3 – Influence de la valeur du coefficient de transfert sur la propagation du front de dissolution en condition d'équilibre local

### 6.1.2 Non-équilibre local (front de dissolution uniforme)

Injection à Vitesse Constante	
51 noeuds	$D = 2.10^{-9} m^2.s^{-1}$
$C_0 = 150 kg.m^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} Pa.s$
$\varepsilon_\beta = 0.2$	$\beta = 1.62$
$\rho_\sigma = 2160 kg.m^{-3}$	$\alpha = 1 \cdot 10^{-2} s^{-1}$
$K = 10^{-11} \pm \varepsilon m^2$	$V_0 = 4.10^{-4} m.s^{-1}$

TAB. 6.2 – Données numériques

On se place maintenant dans des conditions de non-équilibre local, données tableau 6.2. Le front de dissolution, représenté Fig. 6-4, est à présent très étalé et on observe un gradient de porosité réparti sur le domaine. Il semble difficile pour ce régime de relier directement la perméabilité effective  $K^*$  à la porosité moyenne du domaine  $\varepsilon_\beta^*$ .

Il est par contre possible de développer une solution analytique pour le transport du front de dissolution. Si l'on reprend les équations de transport-réaction, on peut effectuer le changement de variable suivant :

$$t' = (t - t_0) \quad ; \quad x' = x - V_f (t - t_0) \quad (6.11)$$

où  $t_0$  représente le temps caractéristique de mise en place du front de dissolution, lié aux conditions de non-équilibre local. Il correspond au temps nécessaire pour que la face d'entrée


 FIG. 6-4 – Champ de porosité à  $t = 2400$  s

du milieu poreux soit complètement dissoute, soit :

$$t_0 = \frac{\rho_\sigma (1 - \varepsilon_\beta^{initial})}{\beta \alpha C_0} \quad (6.12)$$

On obtient ainsi :

$$\varepsilon_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t'} + (V_\beta - \varepsilon_\beta V_f) \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial x'} = -\alpha C_{A\beta} \quad (6.13)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t'} - V_f \frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial x'} = \frac{\beta \alpha C_{A\beta}}{\rho_\sigma} \quad (6.14)$$

dans lesquelles nous pouvons négliger le terme  $\varepsilon_\beta V_f$  devant la vitesse d'écoulement  $V_\beta$  tandis que les termes instationnaires sont nuls (on se déplace avec le front de propagation).

De ce fait, les champs stationnaires de concentration et de porosité sont reliés par l'équation suivante

$$V_\beta \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial x'} = \frac{\rho_\sigma}{\beta} V_f \frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial x'} \quad (6.15)$$

c'est-à-dire, en introduisant l'Eq. (6.10),

$$\frac{\partial C_{A\beta}}{\partial x'} = \frac{C_0}{\varepsilon_\sigma + \frac{\beta}{\rho_\sigma} C_0} \frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial x'} \quad (6.16)$$

tandis que l'Eq. (6.13) nous permet d'obtenir l'expression du champ de concentration dans le domaine pour  $x' > 0$

$$C_{A\beta}(x') = C_0 \exp\left(-\frac{\alpha x'}{V_\beta}\right) \quad \text{pour } x' > 0 \quad (6.17)$$

Cette dernière relation, couplée avec l'Eq. (6.16), nous donne pour finir l'expression du champ de porosité

$$\varepsilon_\beta(x') = \left(\varepsilon_\sigma + \frac{\beta}{\rho_\sigma} C_0\right) \exp\left(-\frac{\alpha x'}{V_\beta}\right) + \varepsilon_\beta^{initial} \quad \text{pour } x' > 0 \quad (6.18)$$

La solution des champs de concentration et de porosité donnée par les Eqs. (6.17) et (6.18) n'est valable que pour  $x' > 0$ , c'est-à-dire au sein du milieu poreux, car sinon  $\alpha$  vaut 0 et les

Eqs. (6.13) et (6.14) dégènèrent vers le système suivant :

$$(V_\beta - \varepsilon_\beta V_f) \frac{\partial C_{A\beta}}{\partial x'} = 0 \quad (6.19)$$

$$V_f \frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial x'} = 0 \quad (6.20)$$

On obtient alors :

$$C_{A\beta}(x') = C_0 \quad \text{pour } x' \leq 0 \quad (6.21)$$

$$\varepsilon_\beta(x') = 1 \quad \text{pour } x' \leq 0 \quad (6.22)$$

Dans le cas général, où  $\alpha$  est une expression complexe dépendant de la porosité et du Peclet, il est difficile d'obtenir une solution simple. Ici, en revanche, l'hypothèse d'un coefficient de transfert constant permet d'obtenir la solution des champ de concentration et de porosité sur tout le domaine et de vérifier nos résultats numériques. La comparaison des solutions numériques et analytiques est représentée Figs. 6-5 et 6-6. On constate un très bon accord entre les résultats.

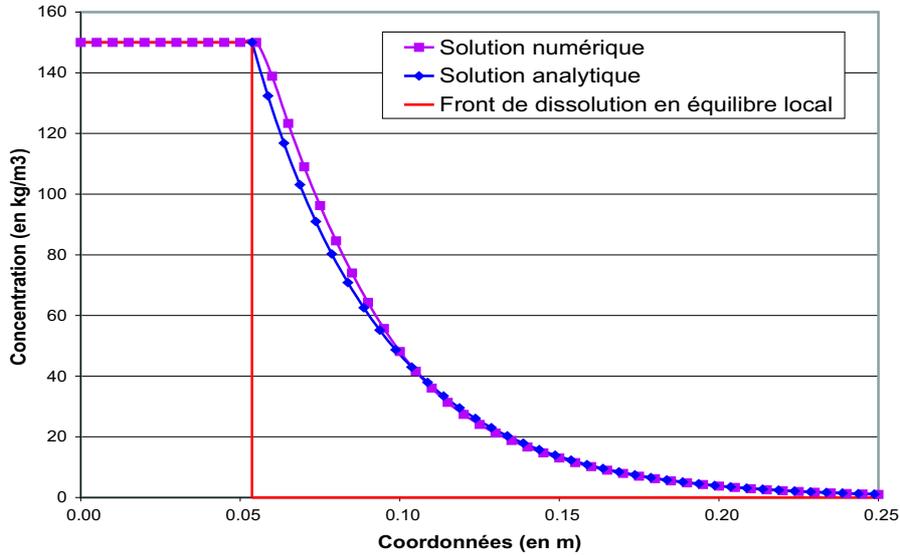


FIG. 6-5 – Comparaison des solutions numérique et analytique du champ de concentration à  $t = 1800s$

Cette étude pourra servir de base ultérieurement pour une étude de stabilité de la propagation du front. Différents travaux ont déjà été menés dans ce sens. Sherwood (1987), par exemple, a étudié l'impact des nombres adimensionnels  $Da$  et  $N_{ac}$  sur la propagation du front dans un plan mais en équilibre local uniquement. Il a montré que les perturbations de longueur d'onde  $\varpi$  croissent proportionnellement en  $\log(1 + \varpi)$ , par comparaison au problème de Saffman-Taylor (Saffman & Taylor 1958), qui concerne la stabilité d'une interface entre deux fluides visqueux, où la croissance est proportionnelle à  $\varpi$ . L'intérêt majeur du travail de Sherwood est d'avoir montré que toutes les longueurs d'onde plus petites ou équivalentes à la largeur de la zone de réaction conduisent au développement de wormholes, même si les plus petites longueurs

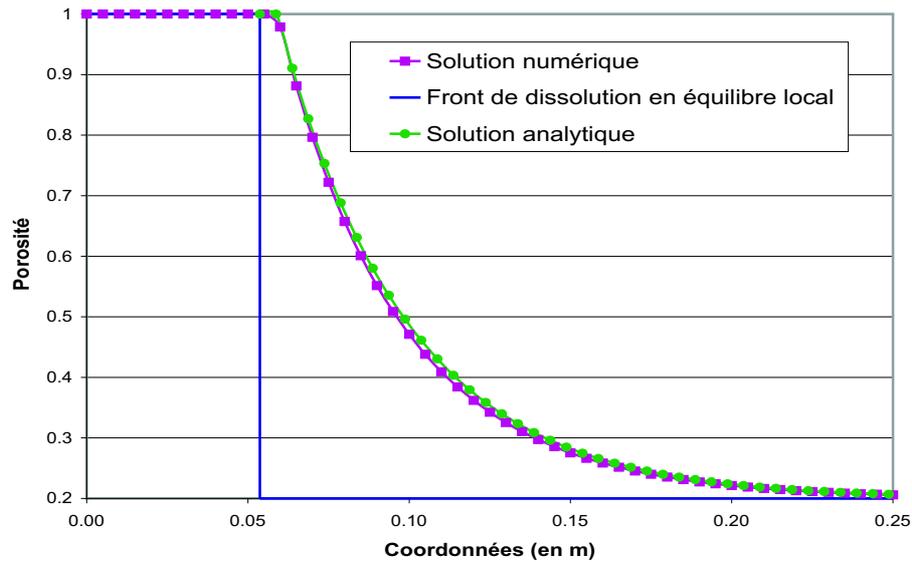


FIG. 6-6 – Comparaison des solutions numérique et analytique du champ de porosité à  $t = 1800s$

d'onde (de l'ordre de la taille du pore) croissent plus rapidement. Cette instabilité est donc généralement associée avec les réactions rapides qui apparaissent dans les carbonates.

## 6.2 Simulations 2D

### 6.2.1 Régimes de dissolution

Notre premier objectif a été de vérifier la capacité du modèle à reproduire les régimes de dissolution observés expérimentalement. Le système bi-dimensionnel étudié est représenté Fig. 6-7 et les données numériques sont rassemblées dans le tableau 6.3. Les coefficients de transfert de masse et de dispersion ont été conservés constants afin de s'affranchir des variations du Damköhler et du Péclet au cours des simulations. Notre modèle numérique fonctionne aussi bien avec un  $\alpha$  non-constant, et de telles relations seront utilisées par la suite dans ce chapitre. Néanmoins, conserver  $\alpha$  constant fournit une bonne illustration des capacités du modèle à l'échelle de Darcy, en terme d'instabilité de dissolution et ouvre un large champ de perspectives pour des études ultérieures.

La Fig. 6-8 présente les différentes figures de dissolution obtenues numériquement pour différentes vitesses d'injection tandis que les champs de concentration associés sont représentés Fig. 6-9. Les faciès de dissolution obtenus sont remarquablement similaires aux figures de dissolution expérimentales présentées Fig. 3-3. Ils sont utilisés pour clarifier les mécanismes de dissolution. Il est intéressant de constater, par exemple, que les deux cas limites de dissolution (régimes (a) et (e)) se ramènent aux deux cas 1D discutés précédemment. Les champs de concentration confirment d'autre part le caractère d'équilibre local des régimes (a) à (c) tandis que les régimes (d) et (e) correspondent à des conditions de non-équilibre local. Ils peuvent être comparés aux profils de concentration obtenus en digitations visqueuses par Jahoda & Hornof

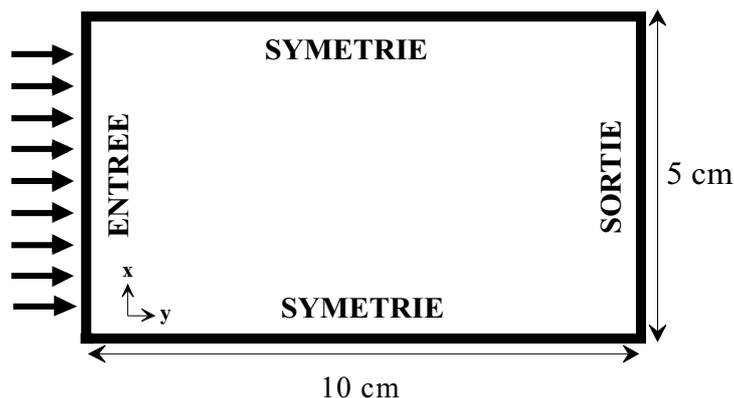


FIG. 6-7 – Représentation du domaine d'étude

(2000) lors d'interaction huile-solution alcaline.

Injection à Pression Constante	
201x101 noeuds	$D = 1.10^{-9} m^2.s^{-1}$
$C_0 = 150 kg.m^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} Pa.s$
$\varepsilon_\beta = 0.38$	$\beta = 1.37$
$\rho_\sigma = 2700 kg.m^{-3}$	$\alpha = 10 s^{-1}$
$K = 10^{-11} \pm \varepsilon m^2$	

TAB. 6.3 – Données numériques

La Fig. 6-10 montre l'évolution du champ de porosité au cours de la dissolution en régime de wormholing et met en lumière le phénomène de concurrence entre les wormholes conduisant à l'apparition d'un ou plusieurs wormholes dominants. Cette concurrence est encore plus nette sur la Fig. 6-11. La superposition des profils de concentration et de porosité permet de distinguer aisément les wormholes "morts" (concentration d'acide nulle dans le canal d'écoulement) des wormholes dominants.

A ce stade, nous pouvons affirmer que le modèle de Darcy-Brinkman proposé dans ce travail a toutes les caractéristiques requises pour représenter le comportement physique complexe observé. Il est vérifié que toutes les figures de dissolution peuvent être décrites en utilisant un coefficient de transfert de masse et pour une description de l'écoulement qui vérifie les équations de Stokes et de Darcy. Nous avons en effet observé que l'écoulement de Stokes est prépondérant dans la zone du wormhole tandis que la loi de Darcy domine dans le milieu poreux environnant. Le modèle de Darcy-Brinkman est donc bien adapté à la description des pertes de fluide à travers le wormhole. En ce qui concerne les effets de transfert de masse, les conditions d'équilibre et de non-équilibre local sont vues comme étant le résultat de l'interaction de l'écoulement du fluide et du coefficient de transfert de masse.

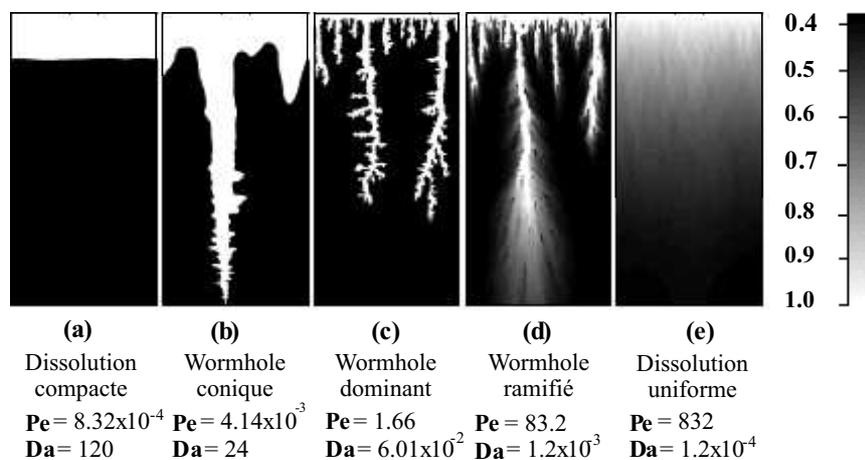


FIG. 6-8 – Champs de porosité représentatifs de la structure de dissolution obtenue numériquement

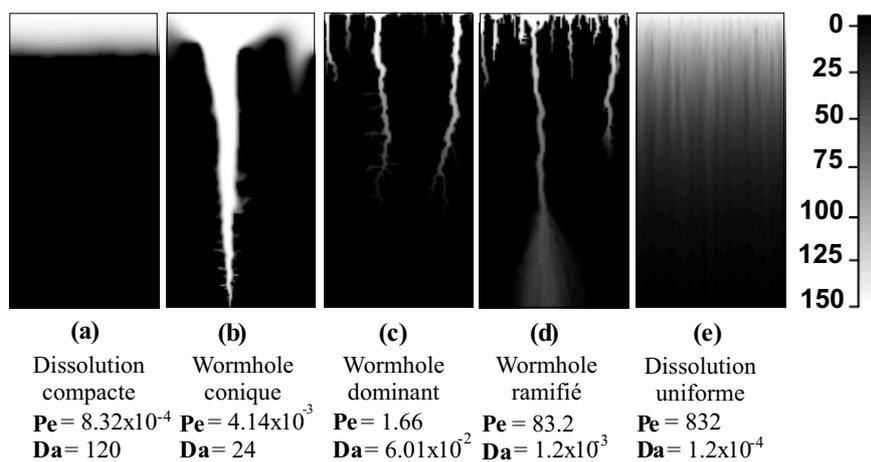


FIG. 6-9 – Champs de concentration représentatifs de la structure de dissolution obtenue numériquement

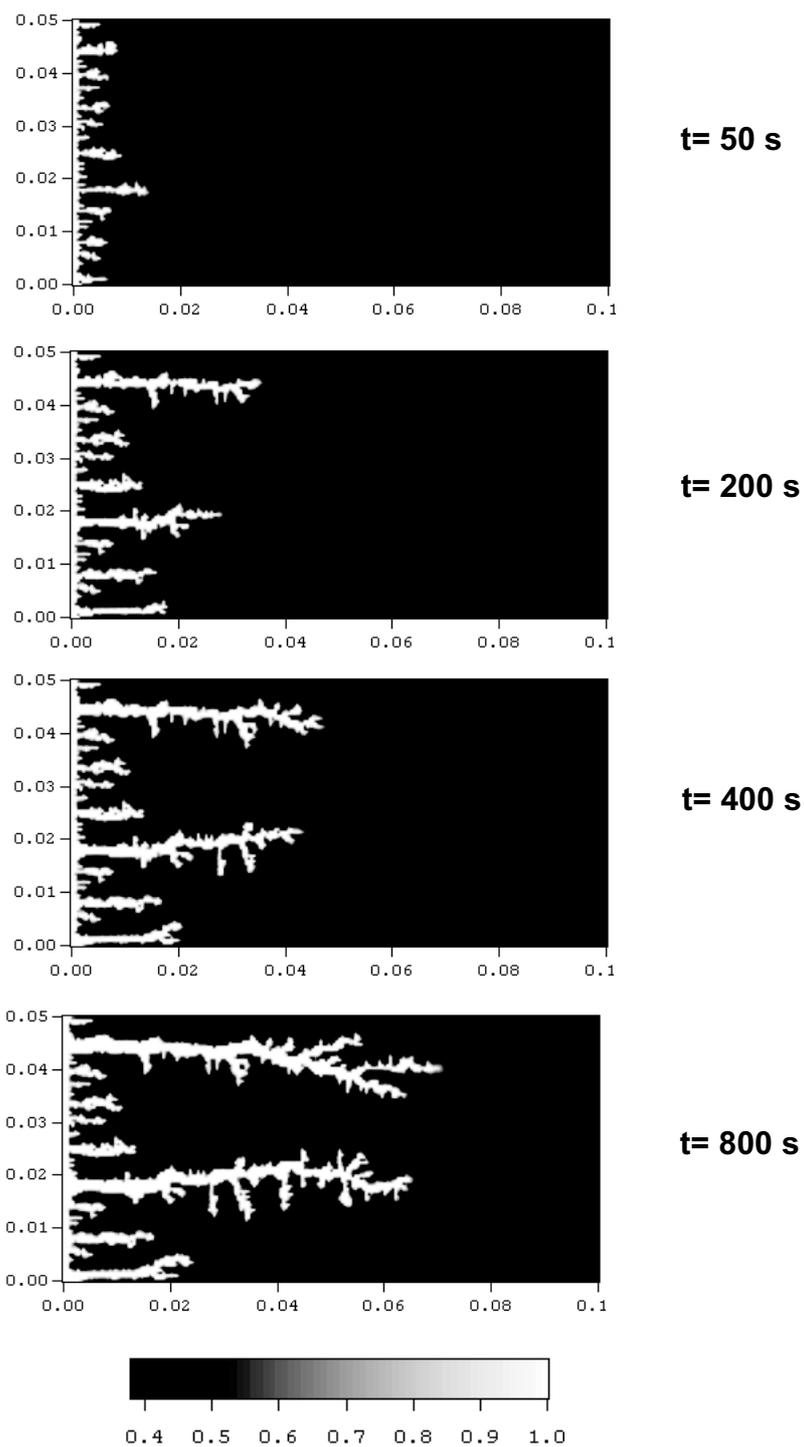


FIG. 6-10 – Champs de porosité représentatifs de l'historique de dissolution en régime de wormholing

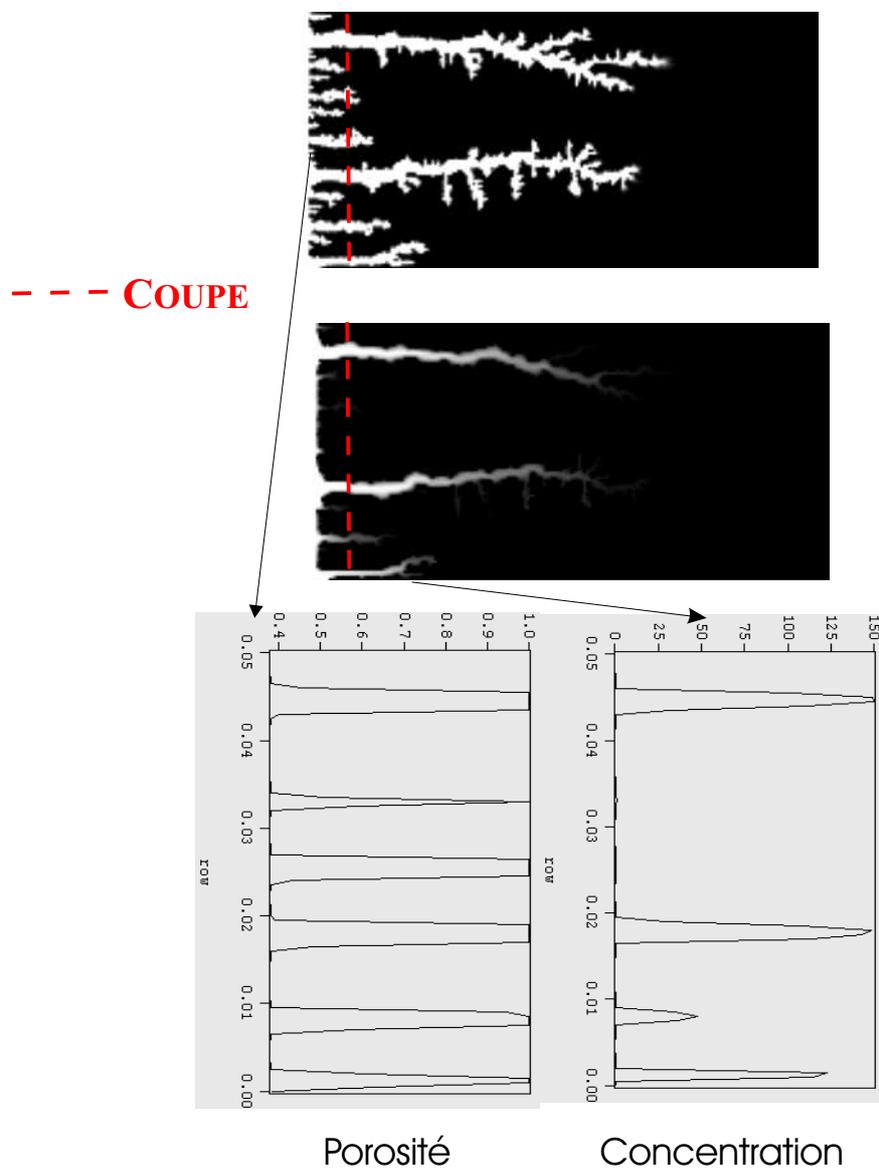


FIG. 6-11 – Profils de coupe des champs de porosité et de concentration

### 6.2.2 Diagrammes de comportement

Il nous est maintenant possible, à partir des conditions initiales de chacune des simulations, de classifier les figures de dissolution en fonction des nombres adimensionnels caractéristiques et de les représenter dans des diagrammes de comportement (Figs. 6-12 et 6-13). Les diagrammes ont été tracés à partir des simulations obtenues en prenant  $\alpha$  et  $D$  constants et différents à chaque réalisation. Cette approche nous offre une perspective générale intéressante sur la théorie des instabilités, et nous utiliserons cela en son temps. Bien évidemment, il peut être délicat en pratique de conserver tous les paramètres indépendants les uns des autres et cela sera le cas quand nous utiliserons les relations non-linéaires pour  $\alpha$  et  $\mathbf{D}_\beta^*$ , comme présenté dans le § 5.3.

Les frontières, séparant les différents régimes, sont estimées à partir d'une observation *qualitative* des figures de dissolution et une certaine imprécision est associée à la position exacte de ces lignes de transition. En outre, nous avons conservé constants le nombre  $N_{ac}$ , le nombre de Darcy  $N_D$ , ainsi que le rapport de forme  $F$  du domaine, entre les différentes simulations. Il faut souligner que la modification de ces valeurs conduirait à un déplacement des lignes de transition, comme il sera montré par la suite dans le § 6.2.4. Même si le choix de la corrélation contrôlant  $\alpha$  aura une influence sur la position des limites, nous pensons que l'utilisation d'une valeur constante pour le coefficient de transfert de masse donne une idée assez précise des transitions entre les régimes.

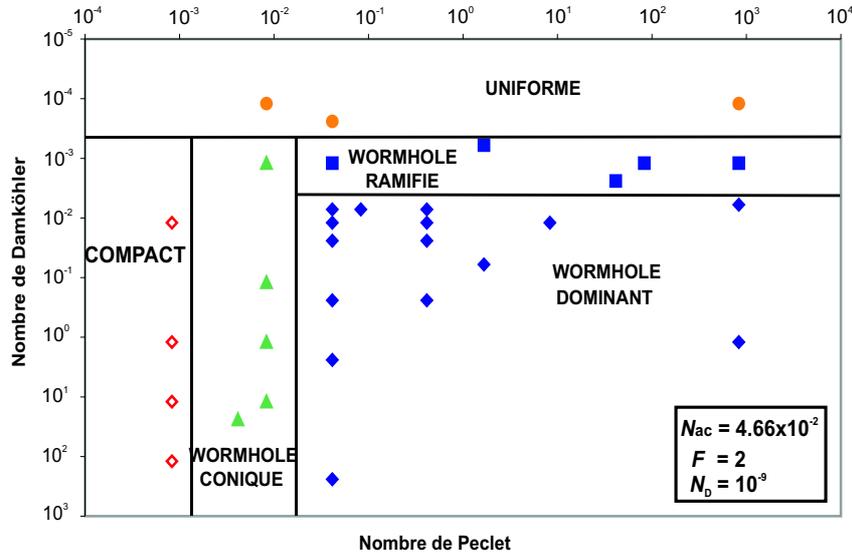


FIG. 6-12 – Diagramme de comportement  $Pe - Da$

Le diagramme  $Pe - Da$  (Fig. 6-12) nous montre que la transition entre les régimes compact, conique et wormholing ne dépend pas de la valeur du nombre de Damköhler. Elle est seulement déterminée par la valeur du nombre de Péclet. Diminuer le nombre de Damköhler conduira par contre à une augmentation des effets de non-équilibre local et, par conséquent, à un passage vers le régime de dissolution uniforme. Ceci est aussi mis en évidence sur le diagramme  $Pe - Ki$ , Fig.

6-13, qui souligne le fait qu'il est possible de passer directement du régime compact à uniforme (sans passer par les régimes de wormholes) en augmentant seulement la vitesse d'injection.

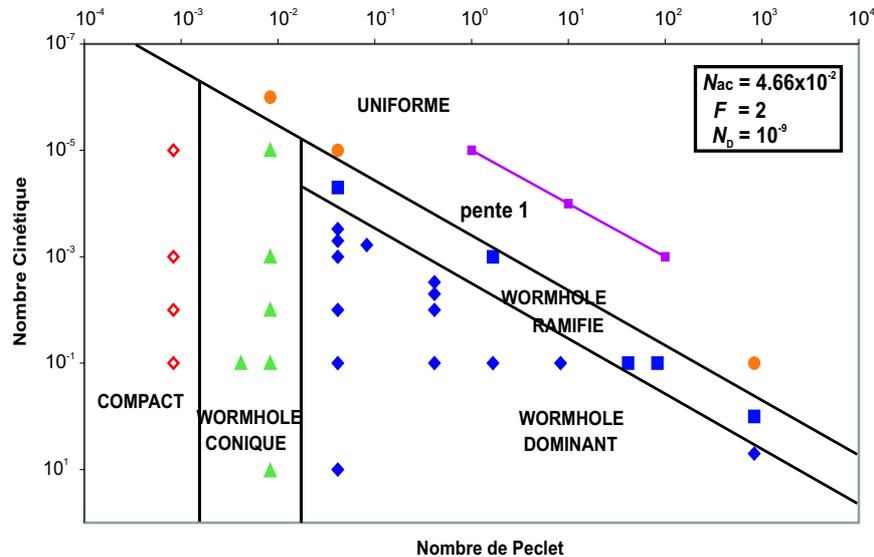


FIG. 6-13 – Diagramme de comportement  $Pe - Ki$

Le diagramme  $Pe-Da$  (Fig. 6-12) nous apporte d'autres informations sur la formation du wormhole : les instabilités, c'est-à-dire les wormholes, se développent à partir d'une valeur seuil des nombres de Péclet et de Damköhler. En effet, pour  $Pe \leq 2.10^{-3}$ , le mécanisme de diffusion prédomine et les figures de dissolution sont situées dans le régime compact ou uniforme. De la même manière, si  $Da \leq 8.10^{-4}$ , le front de dissolution est complètement étalé sur toute la longueur de l'échantillon, les instabilités sont amorties et on retrouve un régime de dissolution uniforme.

Un diagramme des régimes similaire, en  $Pe-Ki$ , avait été précédemment proposé par Daccord, Lietard & Lenormand (1993), Fig. 6-14, pour la géométrie simplifiée d'un tube capillaire. Ils considèrent un capillaire de rayon  $R$ , dans un minéral soluble, dans lequel un fluide réactif de concentration  $C$  est injecté à un débit constant,  $q$ . Les nombres adimensionnels sont exprimés sous la forme

$$Pe_{Daccord} = \frac{q}{\pi R D} \quad (6.23)$$

et

$$Ki_{Daccord} = \frac{k_r C}{a D} \quad (6.24)$$

où  $k_r$  représente la constante du taux de réaction et  $a$  l'aire molaire spécifique du minéral constituant le capillaire.

La comparaison de la Fig. 6-14 et de notre Fig. 6-13 présente de nombreuses similitudes. Les mêmes pentes entre les régimes compact/wormhole conique - wormhole dominant et compact/wormhole conique - wormhole ramifié/uniforme sont obtenues. La différence de pente pour la frontière séparant wormhole ramifié/régime uniforme et wormhole dominant (pente 1/3 au

lieu d'une pente de 1 dans cette thèse) peut s'expliquer par le fait que Daccord, Lietard & Lenormand (1993) ne fait pas de distinction entre le régime uniforme et le régime ramifié.

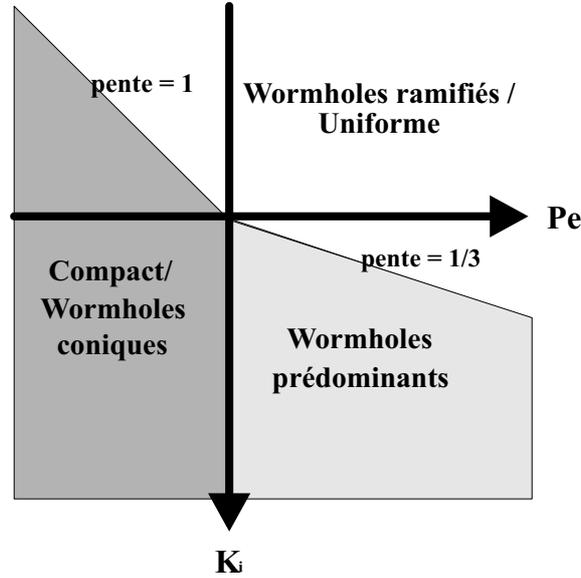


FIG. 6-14 – Diagramme de comportement d'après Daccord et al. (1993)

### 6.2.3 Débit optimum d'injection et nombre de Damköhler optimum

Injection à Débit Constant	
201 x 101 noeuds	$C_0 = 545 \text{ kg.m}^{-3}$
$\rho_\sigma = 2160 \text{ kg.m}^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
$\varepsilon_\beta = 0.2$	$\beta = 1.62$
$D_\beta = 2.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$	$K = 1.5 \cdot 10^{-11} \pm \varepsilon \text{ m}^2$

TAB. 6.4 – Données numériques

Différentes simulations de dissolution ont été réalisées en faisant varier le débit d'injection pour étudier les vitesses de propagation des wormholes. Dans ces simulations, le coefficient de transfert de masse (de même que le tenseur de dispersion) tient compte de la porosité et de la vitesse locale, comme il est décrit dans le § 4.2.3. Le coefficient de transfert s'écrit ainsi sous la forme

$$\alpha = A\alpha_o(Pe_{cell}, \varepsilon_\beta) \quad (6.25)$$

où  $\alpha_o$  est donné par la solution du problème de fermeture, Eq. (4.47) (voir Figs. 5-8 et 5-9 ainsi que le tableau A.1, *Annexe A*). Le coefficient  $A$ , introduit arbitrairement, correspond à un facteur de forme et prend en compte l'influence de la géométrie à l'échelle du pore. Nous allons ainsi pouvoir tester l'impact du coefficient  $\alpha$  sur le temps de percée et le débit optimum d'injection. Les valeurs de  $A$  utilisées pour les simulations sont 0.1, 0.2 et 0.5. Les autres données numériques sont rassemblées dans le tableau 6.4. Les dimensions du domaine sont de 25 cm

de long et de 5cm de large. Il reste à préciser un dernier critère qui va jouer un rôle dans l'estimation numérique de la longueur du wormhole : la valeur seuil de porosité correspondant à l'extrémité du canal fluide. Arbitrairement, nous avons pris comme valeur seuil de porosité 0.75 mais un choix différent modifierait légèrement la valeur prédite de volume de pore pour percer. Le temps de percée augmenterait ainsi d'environ 5% si nous avons choisi 1 comme valeur seuil de porosité (voir Fig. 6-15 sur l'impact de ce critère).

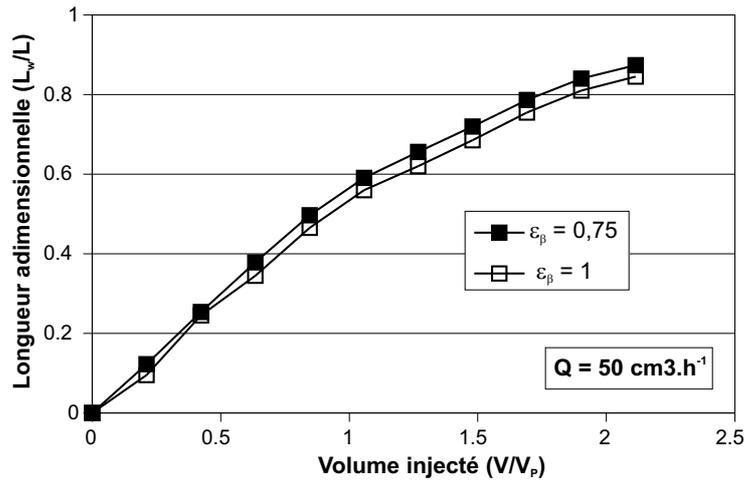


FIG. 6-15 – Impact du critère du seuil de porosité sur la propagation du wormhole

Les résultats obtenus sont représentés Figs. 6-16, 6-17 et 6-18. Ils indiquent une croissance des wormholes qualitativement comparable aux résultats expérimentaux et ont permis de vérifier l'existence d'un débit optimum d'injection. Les débits optimaux d'injection prédits sont 10, 20 et  $50 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  pour des valeurs de  $A$  respectives de 0.1, 0.2 et 0.5. Le débit optimum d'injection augmente linéairement avec  $\alpha$ . Comme attendu, le coefficient de transfert de masse est le paramètre clé du modèle et une légère variation dans l'estimation de  $\alpha$  entraînerait une variation de même importance dans la prédiction du débit optimum d'injection. Une grande attention doit donc être accordée à la détermination de ce coefficient. Compte tenu de la difficulté à l'estimer expérimentalement ou numériquement (résolution des problèmes de fermeture sur des cellules unitaires non représentatives du milieu réel), sa valeur sera extrapolée en ajustant le facteur de forme  $A$  qui servira de paramètre de calage pour notre modèle comme nous le verrons par la suite.

Les résultats présentés Fig. 6-19 soulignent l'impact non négligeable de la valeur de  $\alpha$  sur la propagation du wormhole pour des débits supérieurs ou inférieurs à l'optimum. Pour des débits inférieurs à l'optimum, le volume de pore injecté augmente avec la valeur du coefficient de transfert de masse. A contrario, pour des débits supérieurs à l'optimum, le volume de pore injecté varie de manière inverse au coefficient  $\alpha$ . Ce résultat peut s'expliquer physiquement si

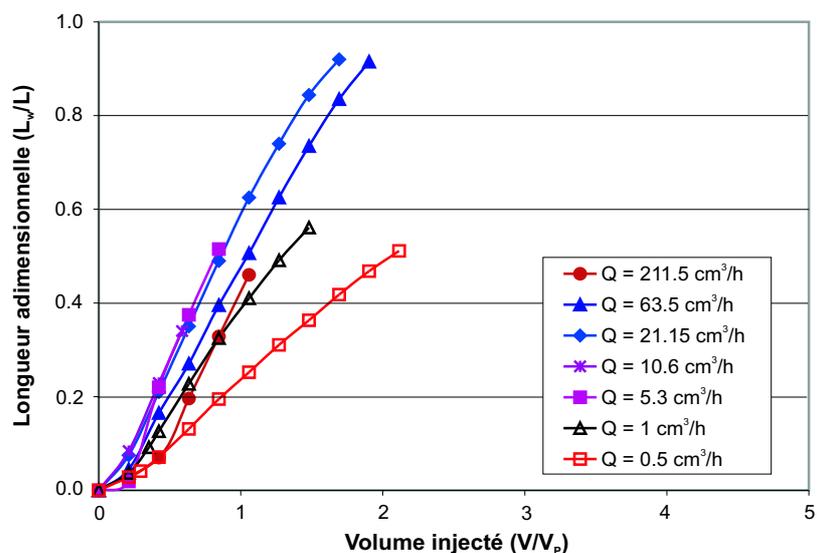


FIG. 6-16 – Evolution de la longueur adimensionnelle du wormhole en fonction du volume de pore injecté. Mise en évidence du débit optimum d'injection pour  $C_{acid} = 545 \text{ g.l}^{-1}$  -  $A = 0.1$

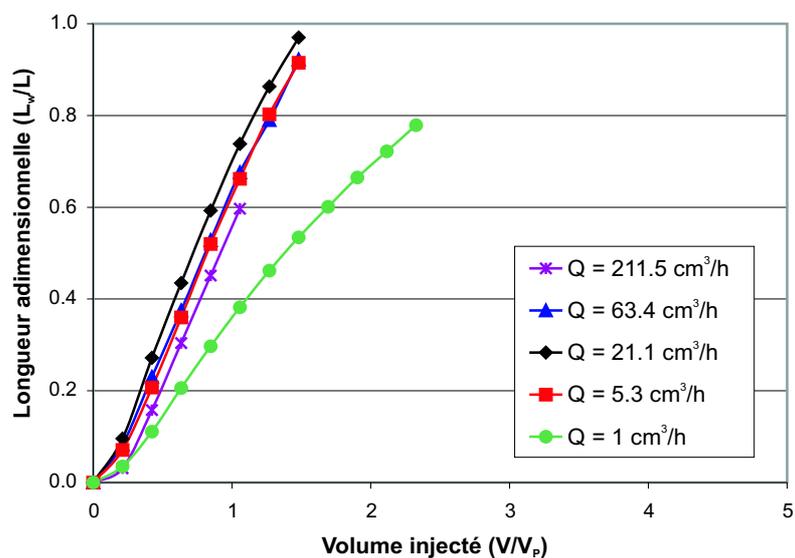


FIG. 6-17 – Evolution de la longueur adimensionnelle du wormhole en fonction du volume de pore injecté. Mise en évidence du débit optimum d'injection pour  $C_{acid} = 545 \text{ g.l}^{-1}$  -  $A = 0.2$

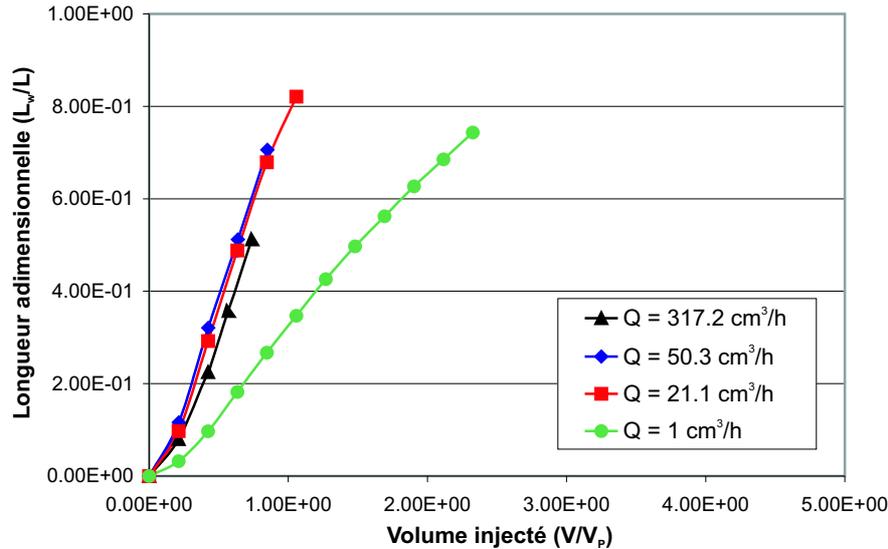


FIG. 6-18 – Evolution de la longueur adimensionnelle du wormhole en fonction du volume de pore injecté. Mise en évidence du débit optimum d'injection pour  $C_{acid} = 545 \text{ g.l}^{-1}$  -  $A = 0.5$

l'on considère les mécanismes de dissolution. L'accroissement du coefficient de transfert pour les forts débits entraîne une augmentation du Damköhler et donc une diminution du caractère de non-équilibre local de dissolution ce qui favorise la propagation des canaux de dissolution tandis que pour des vitesses d'injection plus faibles, l'érosion du milieu poreux aux parois est plus importante, ce qui ralentit la propagation du wormhole.

#### Nombre de Damköhler optimum

Les résultats des simulations numériques réalisées précédemment pour différentes valeurs du facteur de forme sont reportés dans un digramme  $Pe-Da$  (Fig. 6-20). On observe que les différents débits optimums peuvent être reliés à une valeur *constante* du nombre de Damköhler, appelée  $Da_{opt}$ , et ceci est en accord avec des travaux précédents (Fredd & Fogler 1998b). Ce nombre de Damköhler optimum est localisé près de la zone de transition entre les régimes de *wormhole dominant* et *wormholes ramifiés*, idée aussi suggérée par Wang et al. (1993). Une fois encore, il faut se souvenir que tous ces résultats sont obtenus pour un milieu donné et une concentration d'acide fixée, comme exprimé à travers le  $N_{ac}$ , le  $N_D$  et le rapport de forme  $F$ . Fredd & Fogler (1998b) obtiennent un  $Da_{Fredd-opt}$  qui est égal à 0.29, quel que soit le système, avec une définition du nombre de Damköhler comprenant de manière implicite la longueur caractéristique du domaine. Ils ont cependant déterminé la valeur optimum de leur nombre de Damköhler à partir d'expériences réalisées uniquement pour une même valeur du  $N_{ac}$  et pour une même longueur d'échantillon (concernant l'influence du nombre de pouvoir acide, ils concluent qu'ils ne modifient que légèrement la valeur de 0.29 obtenue pour leur  $Da_{Fredd-opt}$ ). Fredd & Fogler (1998b) utilisent la définition suivante pour l'estimation de leur nombre adimensionnel

$$Da_{Fredd} = \frac{4L_w k_{tot}}{d_w u_w} \quad (6.26)$$

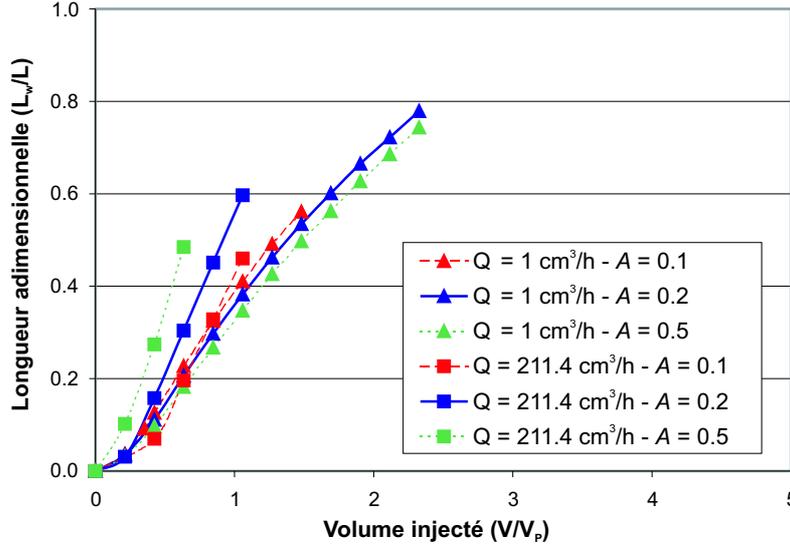


FIG. 6-19 – Evolution de la longueur adimensionnelle du wormhole en fonction du volume de pore injecté. Influence du coefficient de transfert  $\alpha$  sur la propagation du wormhole

où  $u_w$  est la vitesse interstitielle dans le wormhole,  $d_w$  et  $L_w$  sont respectivement le diamètre et la longueur du wormhole (leur évaluation est basée sur les dimensions finales du wormhole), et  $k_{tot}$  est la constante de taux de dissolution ( $k_{tot} = K_{mt}$  pour une réaction limitée par le transfert de masse). Avec le formalisme utilisé dans ce travail,  $K_{mt}$  correspond à  $\alpha l$ ,  $l$  étant une longueur caractéristique microscopique. Dans le cas d'une réaction limitée par le transfert de masse, compte tenu de l'expression de Levich, Eq. (5.46), utilisée pour le coefficient de transfert de masse, le nombre de Damköhler de Fredd et Fogler prend la forme suivante :

$$Da_{Fredd} = 6.33 \left( \frac{L_w D}{q_w} \right)^{2/3} \quad (6.27)$$

où  $q_w$  est le débit dans le wormhole. D'après cette définition, on peut remarquer que le débit optimum devrait augmenter de manière linéaire par rapport à la longueur de l'échantillon ce qui est en contradiction avec d'autres résultats expérimentaux (Bazin 2000).

En prenant nos données numériques et  $\sqrt{K}$  pour la longueur microscopique caractéristique  $l$ , nous pouvons estimer la valeur du nombre de Damköhler optimum que nous avons obtenue selon la définition de Fredd et Fogler

$$0.28 \leq Da_{Fredd-opt} = \frac{4L_w \alpha \sqrt{K}}{d_w u_w} \leq 0.35 \quad (6.28)$$

Les deux valeurs du nombre de Damköhler concordent de manière apparemment excellente mais ceci doit être relativisé par le choix arbitraire de la longueur caractéristique. Si nous avons pris par exemple  $l_\beta$  (la longueur de la cellule unitaire sur la Fig. 5-7) comme longueur

caractéristique à l'échelle du pore, nous obtiendrions

$$Da_{opt} = \frac{4L_w \alpha l_\beta}{d_w u_w} \approx 14.8 \quad (6.29)$$

Le choix de  $\sqrt{K}$  comme longueur caractéristique semble néanmoins le plus adapté dans le contexte du modèle de Fredd et Fogler. Leur estimation du coefficient de transfert de masse est basé sur un modèle de tube et nous avons déjà discuté les limitations de la solution de Levich, en particulier pour des nombres de Péclet faibles. Si nous laissons ces questions en suspens et appliquons cette corrélation aux conditions de nos expériences numériques (dans le cas  $A = 0.5$ , par exemple), nous obtenons

$$K_{mt} = 1.86 D^{2/3} \left( \frac{u_w}{d_w L_w} \right)^{1/3} = 8.06 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1} \quad (6.30)$$

comme valeur pour le coefficient de transfert de masse de Levich  $K_{mt}$ . Ceci peut être comparé à l'expression de notre propre coefficient de transfert, c'est-à-dire,

$$\alpha \sqrt{K} = 6.32 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1} \quad (6.31)$$

Les deux valeurs sont très proches.

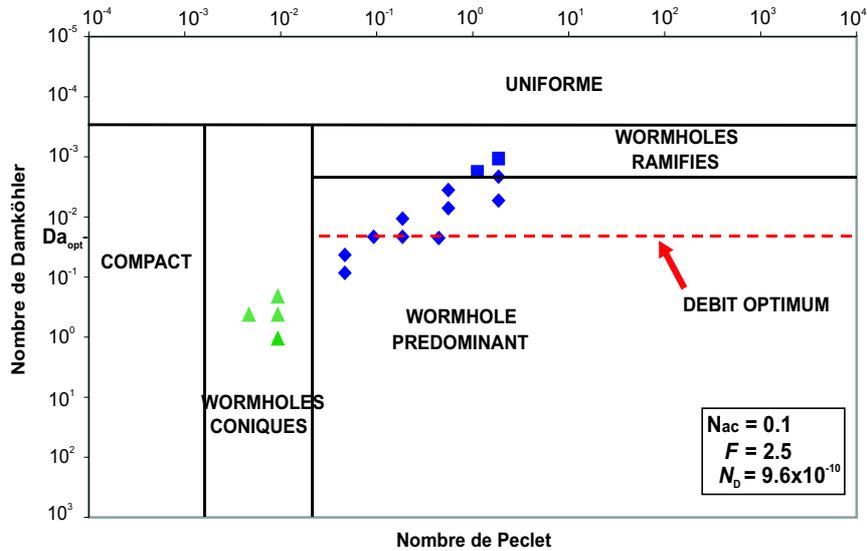


FIG. 6-20 – Relation entre le nombre de Damköhler et le débit optimum d'injection. Mise en évidence dans un diagramme  $Pe - Da$

Parmi les diverses conséquences de ces résultats, il est intéressant de remarquer que la variation du coefficient de diffusion acide dans la phase fluide ne modifie pas directement la valeur du débit optimum. En effet, le nombre de Damköhler dépend seulement de la vitesse d'injection et du coefficient de transfert de masse et les effets de la diffusion sont incorporés dans ce dernier coefficient. Cependant, l'injection d'acide faible ou de microémulsion (Hoefner

et al. 1987, Bazin & Abdulahad 1999, Conway et al. 1999, Lynn & Nasr-El-Din 2001), qui ont des coefficients de diffusion de deux ordres de grandeur plus faibles que ceux des solutions d'HCl, se révèlent être des procédés d'acidification efficaces avec des conditions optimales obtenues pour des vitesses d'injection plus faibles. Ce constat peut s'expliquer par la relation entre le coefficient de transfert de masse,  $\alpha$ , et  $D$  (voir § 5.3.1). Comme  $\alpha$  diminue quand  $D$  diminue, les roches stimulées par des acides faibles présentent des dissolutions plus uniformes qu'avec l'acide chlorhydrique pour un débit donné. En conséquence, le nombre de Damköhler optimum est atteint pour des débits plus faibles. Ceci est cohérent avec le fait, qu'à débit constant, diminuer la valeur du Damköhler conduit à des faciès de dissolution plus proches du régime de *wormholes ramifiés*. Le même argument peut être utilisé pour expliquer les effets de variation de température. Quand la température augmente, le coefficient de diffusion augmente, et, par conséquent, le débit optimum aussi, tandis que les figures de dissolution tendent vers le régime de *wormhole conique*. Les résultats expérimentaux (Wang et al. 1993, Bazin et al. 1997) sont en accord avec ces constatations.

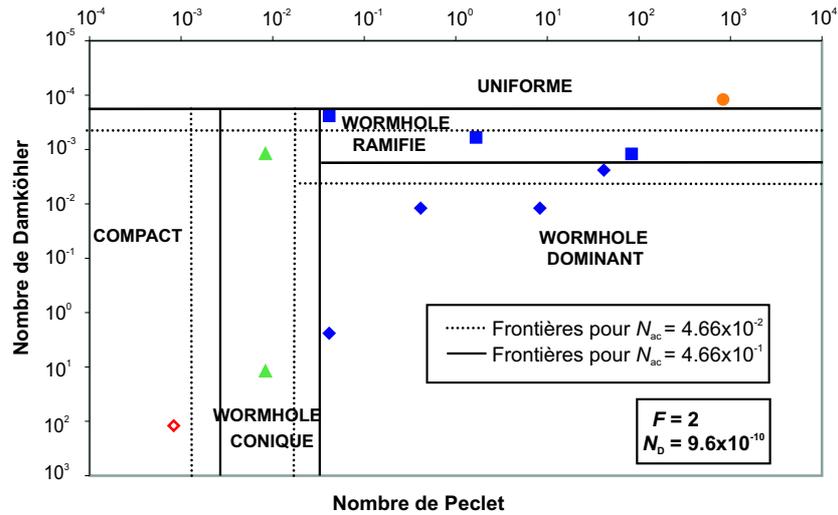
#### 6.2.4 Etude adimensionnelle

Nous allons maintenant nous intéresser à l'influence des différents nombres adimensionnels caractéristiques sur la figure de dissolution observée et la propagation des wormholes. On va ainsi pouvoir faire varier indépendamment les différents paramètres opératoires et juger de leur impact : influence de la concentration et du type d'acide via le nombre de pouvoir acide, influence de la longueur via le rapport de forme  $F$  et influence de la perméabilité via le nombre de Darcy.

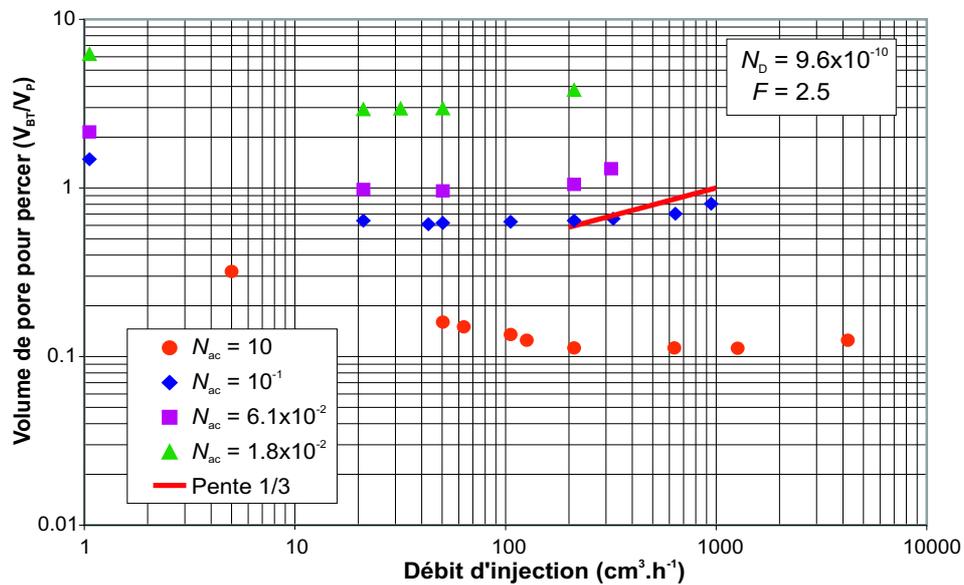
##### Influence du nombre de pouvoir acide $N_{ac}$

L'influence du  $N_{ac}$  sur le régime de dissolution est illustrée par le diagramme  $Pe - Da$ , Fig. 6-21. Il faut rappeler en effet que les diagrammes de comportement présentés précédemment, Figs. 6-12 et 6-13, n'avaient pas un caractère universel et avaient été obtenus pour un  $N_{ac}$  (ainsi que pour un rapport de forme  $F$  et un nombre de Darcy) fixé. Des simulations ont été réalisées à des concentrations différentes et les résultats sont reportés sur un diagramme  $Pe - Da$ , où les symboles font référence à la concentration la plus forte. On note un déplacement non négligeable des frontières qui délimitent les différents régimes. A titre d'exemple, on passe d'une figure de dissolution conique vers une structure compacte quand la concentration augmente, les autres conditions d'injection restant identiques. Les résultats observés expérimentalement corroborent cette tendance. Le débit optimum d'injection étant lié au type de régime de dissolution observé, on peut d'autre part s'attendre à un accroissement du débit optimum quand la concentration du fluide injecté augmente.

Cette hypothèse est confirmée par la Fig. 6-22 où sont résumées les simulations réalisées pour différentes valeurs du  $N_{ac}$ , en terme de volume de pore pour percer et de débit d'injection. A l'exception de la concentration, les conditions opératoires restantes sont identiques à celles du tableau 6.4, avec  $A = 0.5$  (notons qu'il n'y a a priori aucune raison de modifier la valeur de

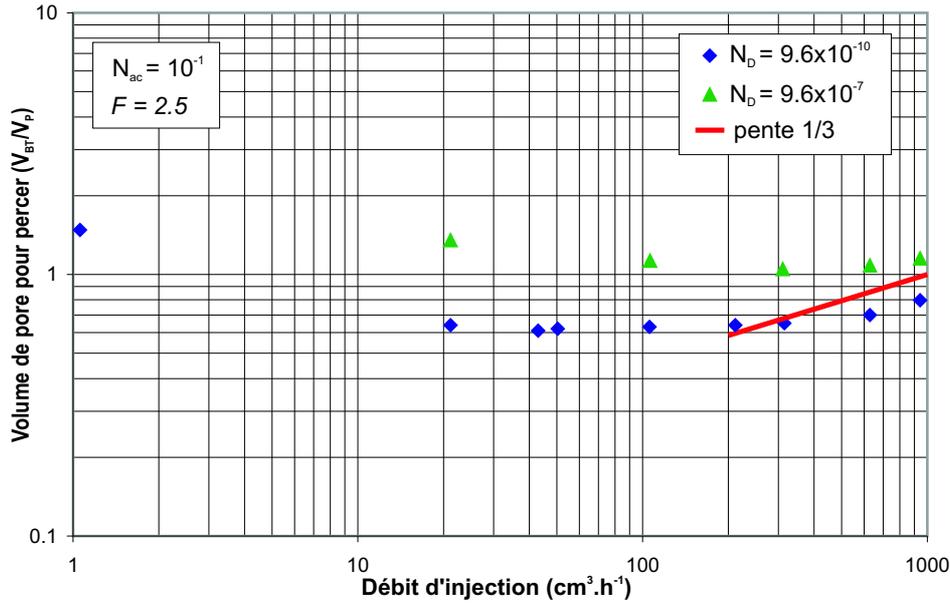
FIG. 6-21 – Influence du  $N_{ac}$  sur les régimes de dissolution

$\alpha$  quand la concentration varie puisque  $\alpha$  est un paramètre qui dépend seulement de la porosité et de la vitesse locale). On peut noter, tout d'abord, une diminution du volume de pore pour percer lorsque le  $N_{ac}$  augmente, ce qui est en accord avec la littérature. De même, on observe bien une augmentation du débit optimum liée à l'augmentation du nombre de pouvoir acide. Ce déplacement n'est toutefois significatif que pour de fortes variations du  $N_{ac}$ .

FIG. 6-22 – Volume de pore pour percer en fonction du débit d'injection - Influence du  $N_{ac}$ 

### Influence du nombre de Darcy $N_D$

L'influence du nombre de Darcy sur la propagation du wormhole est démontrée par la Fig. 6-23 où est représenté le volume de pore pour percer en fonction du débit d'injection pour


 FIG. 6-23 – Influence du  $N_D$  sur le débit optimum d'injection

deux valeurs différentes de  $N_D$ . Les résultats rassemblés ici ont été obtenus en conservant les conditions opératoires du tableau 6.4 (à l'exception de la perméabilité), avec  $A = 0.5$  pour deux milieux de perméabilité différente : le milieu de référence ( $K = 1.5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ) et un milieu fortement perméable ( $K = 1.5 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$ ). Là encore, les résultats vont dans le sens des observations expérimentales. Le débit optimum augmente lorsque le nombre de Darcy augmente (c'est-à-dire lorsque la perméabilité augmente, pour une longueur du domaine fixée) et on constate parallèlement un déplacement des frontières des régimes de dissolution, similaire à celui observé sur la Fig. 6-21. On observe aussi un volume de pore pour percer qui diminue avec  $N_D$ .

### Influence du rapport de forme $F$

Pour finir, l'influence du rapport de forme  $F$  sur la propagation du wormhole a été analysée. Les quelques études expérimentales consacrées à ce problème (Buijse 1997, Bazin & Abdulahad 1999) ont observé, lorsque la longueur diminue, une diminution du débit optimum ainsi qu'une décroissance du  $V_{BT}$  pour les débits inférieurs à l'optimum. L'influence de ce paramètre sur la courbe  $V_{BT}$ -débit est illustrée par la Fig. 6-24.

Ce mécanisme peut s'expliquer physiquement. Considérons la Fig. 6-25 où un wormhole de diamètre  $d_w$  et de longueur  $L_w$ , soumis à un écoulement selon  $x$ , se propage au sein du milieu poreux. L'évolution de la géométrie de ce wormhole est soumise à deux forces contradictoires : les effets diffusifs qui tendent à éroder les parois du canal et le flux convectif qui contrôle son allongement. Plaçons nous dans un régime d'écoulement correspondant au régime de wormholing. Au départ, les effets convectifs prédominent, le temps caractéristique de ce processus  $t_{conv} = L_w/V_\beta$  étant largement inférieur au temps caractéristique de diffusion  $t_{diff} = d_w^2/D$ .

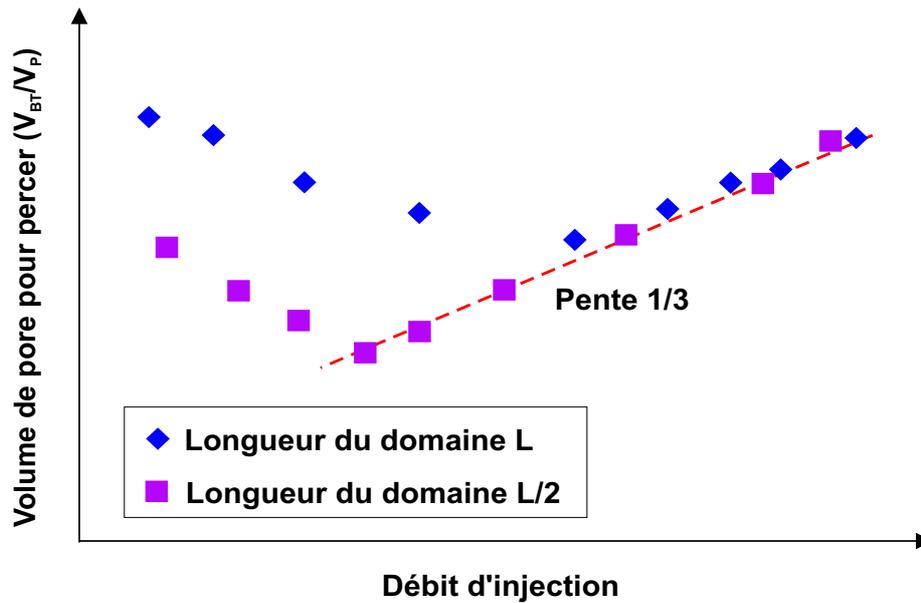


FIG. 6-24 – Influence de la longueur du domaine sur le volume de pore injecté pour percer d'après *Bazin (1999)*

Injection à Débit Constant	
401 x 51 noeuds	$C_0 = 545 \text{ kg.m}^{-3}$
$\rho_\sigma = 2160 \text{ kg.m}^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
$\varepsilon_\beta = 0.2$	$\beta = 1.62$
$D_\beta = 2.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$	$K = 1.5 \cdot 10^{-11} \pm \varepsilon \text{ m}^2$

TAB. 6.5 – Données numériques

Néanmoins, si le milieu considéré est suffisamment long, la longueur  $d_w$  devient strictement inférieure à  $L_w$  et les effets diffusifs prennent alors le pas sur la convection. Le wormhole, érodé à la base, ralentit sa progression : on est passé en régime conique.

Nous allons essayer de vérifier ici les effets de ce mécanisme sur notre modèle. Dans ce but, une simulation sur un domaine suffisamment long pour visualiser ces effets (50 cm de long sur 2.5 cm de large) a été réalisée pour un débit  $Q = 10 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$  (légèrement inférieur au débit optimum observé pour  $L = 25 \text{ cm}$ ). Les données numériques sont rassemblées dans le tableau 6.5. La comparaison des champs de porosité à différents temps, représentée Fig. 6-26, met clairement en évidence l'accroissement des effets diffusifs par rapport au flux convectif axial. On observe ainsi à travers ces figures le passage d'un régime wormholing à un régime conique. L'examen de la vitesse de propagation du wormhole dans le milieu poreux, Fig. 6-27, confirme ces observations avec le passage d'une vitesse de propagation constante (régime wormholing) à un régime où la propagation est ralentie (régime conique).

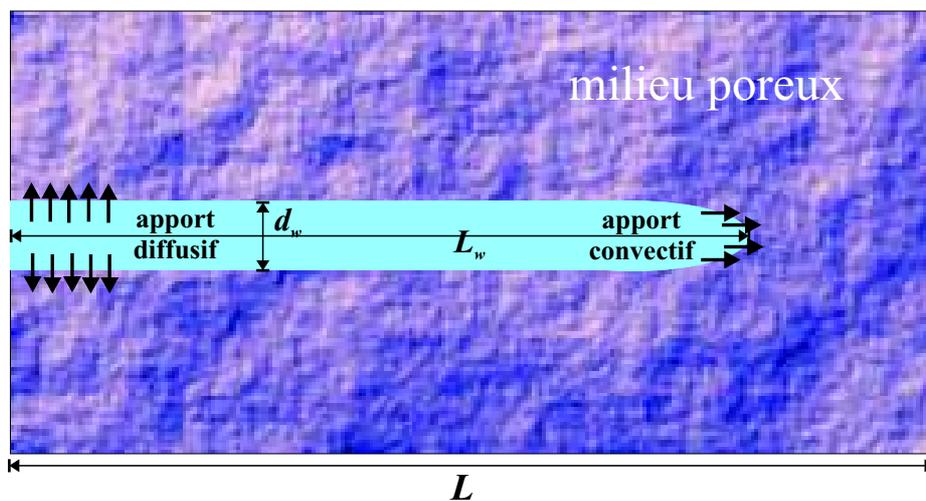


FIG. 6-25 – Représentation schématique de l'influence des apports diffusif et convectif sur la propagation du wormhole

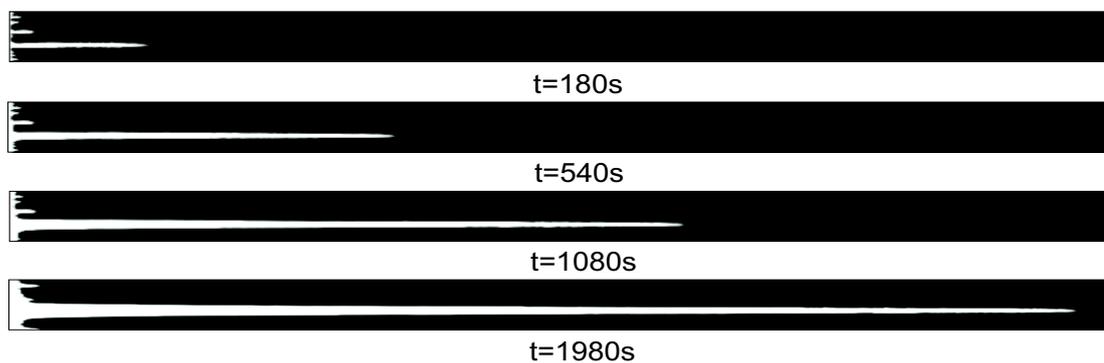


FIG. 6-26 – Evolution de la figure de dissolution au cours du temps

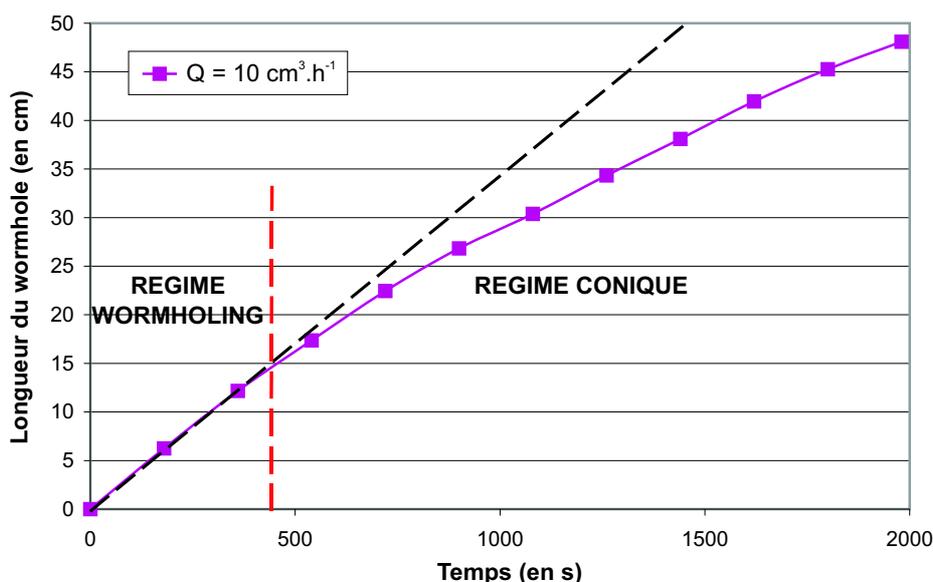


FIG. 6-27 – Evolution de la longueur du wormhole au cours du temps mettant en évidence un ralentissement de sa propagation

### 6.2.5 Aspect prédictif du modèle : comparaison avec les résultats expérimentaux et influence du choix des corrélations

Il nous reste maintenant à étudier la capacité de notre modèle à l'échelle de Darcy à reproduire correctement les données expérimentales, et en particulier, à prédire le volume de pore pour percer, c'est-à-dire la cinétique de dissolution. Deux paramètres vont avoir une forte influence sur le temps de percée : (1) la corrélation utilisée pour le coefficient  $\alpha$  et (2) la relation de perméabilité-porosité (Civan 2001). Ainsi, la calibration du modèle se réduit à ajuster ces deux paramètres aux données expérimentales. Bien que le problème de fermeture caractérisant le coefficient de transfert de masse puisse être résolu pour n'importe quelle structure à l'échelle du pore, la cellule unitaire utilisée ici est une représentation simplifiée du milieu réel : cellule bidimensionnelle, conditions aux limites de périodicité, géométrie rectangulaire. D'autre part, il a été démontré qu'une imprécision dans l'estimation du coefficient de transfert de masse conduit à une inexactitude similaire au niveau de la prédiction du débit optimum. Une illustration de l'influence de la géométrie de la cellule sur la valeur de  $\alpha$  a été donnée par la Fig. 5-10.

Une solution possible serait l'utilisation d'un couplage total entre le modèle à l'échelle de Darcy et les problèmes de fermeture à l'échelle du pore, comme décrit dans Quintard & Whitaker (1999). Cependant, une description détaillée de la structure à l'échelle microscopique serait nécessaire. Un tel travail pour le sel était au-delà de l'objectif de cette thèse. En absence de simulation à l'échelle du pore sur des cellules unitaires plus représentatives du milieu réel (calcul tridimensionnel, pas de condition limite périodique, changement de géométrie), et étant donné le manque d'information détaillée sur la géométrie à l'échelle du pore pour notre système poreux, la calibration du modèle est réalisée à travers le choix du facteur de forme  $A$ . Une seule série de simulation est nécessaire pour ajuster le paramètre  $\alpha$ . Une fois le coefficient  $\alpha$

déterminé, il est en principe possible de prédire le débit optimum d'injection et le régime de dissolution du système considéré pour différentes conditions d'injection : variation du débit, de la concentration d'acide injecté ou de la longueur du domaine. Nous avons montré cependant dans le développement théorique qu'il n'y a a priori pas de valeur intrinsèque pour  $\alpha$  à cause des effets historiques, et cette remarque est aussi vraie pour les autres propriétés effectives. Il est d'autre part attendu que la corrélation employée pour le coefficient de transfert de masse puisse requérir des ajustements pour des conditions expérimentales loin du domaine de validité des paramètres étudiés. Nous n'avons pas encore une analyse globale de ce problème pour notre dispositif expérimental, cependant, des éléments de cette discussion sont présentés ci-dessous.

<b>Injection à Débit Constant</b>	
201 x 101 noeuds	$C_0 = 210 \text{ kg.m}^{-3}$
$\rho_\sigma = 2160 \text{ kg.m}^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
$\varepsilon_\beta = 0.36$	$\beta = 1$
$D_\beta = 2.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$	$K = 1.5 \cdot 10^{-11} \pm \varepsilon \text{ m}^2$

TAB. 6.6 – Données numériques

L'impact du choix de la corrélation de perméabilité-porosité sur le temps de percée a été testé pour deux corrélations différentes. Les simulations numériques ont été réalisées soit en utilisant la relation de Kozeny-Carman introduite précédemment, soit à l'aide d'une corrélation obtenue à partir des méthodes de prise de moyenne volumique basée sur les travaux de Whitaker (1986). La cellule unitaire utilisée pour résoudre le problème de fermeture associé au calcul de la perméabilité est la même que celle utilisée dans la détermination du coefficient de transfert de masse ou du tenseur de dispersion. La comparaison entre ces deux corrélations est représentée Fig. 6-29. La valeur de perméabilité  $K_f$  pour la région fluide, c'est-à-dire la perméabilité correspondant à une porosité proche de 1, n'a pas été considérée comme infinie dans l'équation de Darcy-Brinkman mais a été calculée en moyennant le profil d'écoulement dans la cellule Hele-Shaw dans la direction perpendiculaire aux plaques. En effet, la cellule Hele-Shaw n'est pas un milieu bidimensionnel proprement dit. Comme nous pouvons le voir Fig. 6-28, le profil d'écoulement vue depuis le dessus ne correspond pas à un écoulement de Poiseuille dans la zone fluide. Classiquement, la perméabilité effective équivalente pour un écoulement entre deux plaques de largeur infinie (hypothèse admissible ici compte tenu du rapport de la largeur sur la hauteur) dépend de l'épaisseur  $b$  de la cellule (ici  $b = 1 \text{ mm}$ ), c'est-à-dire

$$K_f = \frac{b^2}{12} = 8.33 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \quad (6.32)$$

Les données numériques utilisées pour les simulations sont rassemblées dans le Tableau 6.6. Le domaine mesure 25 cm de long sur 5 cm de large, soit les dimensions de la cellule Hele-Shaw utilisée pour nos expériences. La concentration d'acide injecté,  $C_0$ , correspond à une concentration de sel de  $150 \text{ kg.m}^{-3}$ .

Une première série de simulations a été réalisée afin de calibrer le coefficient de transfert de masse par rapport au *débit optimum d'injection*. Le facteur de forme  $A$  a été fixé à 1.1 pour

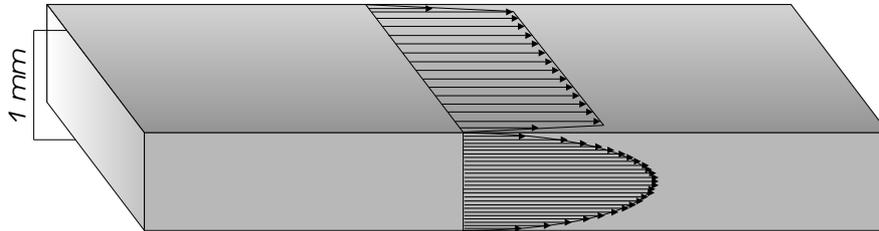


FIG. 6-28 – Profil de l'écoulement dans la cellule Hele-Shaw

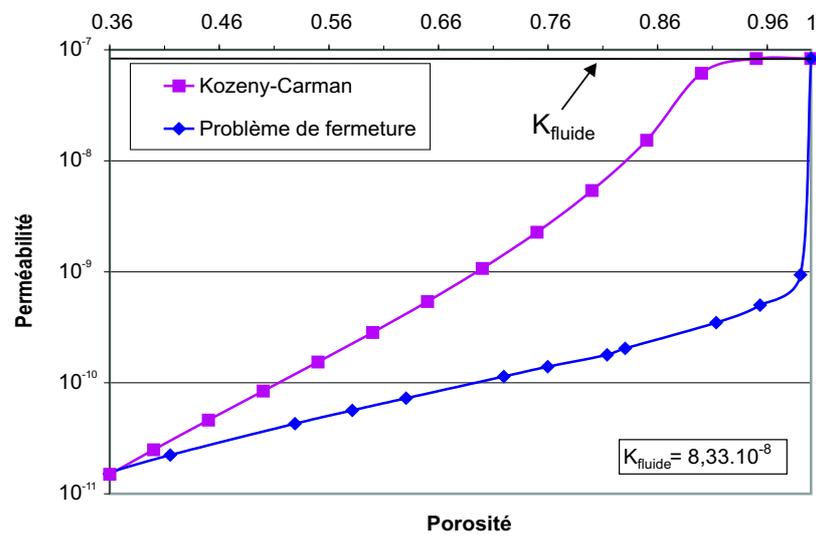


FIG. 6-29 – Comparaison des corrélations de perméabilité–porosité

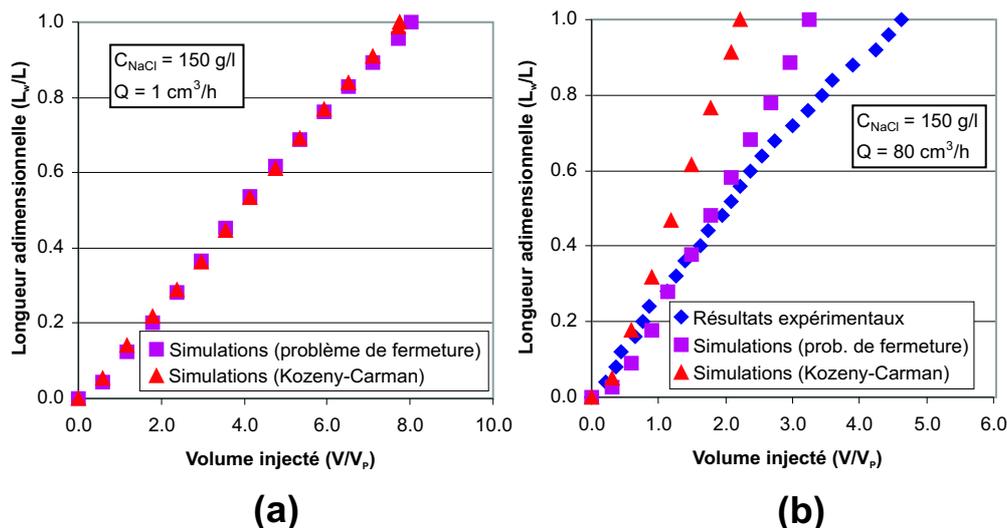


FIG. 6-30 – Influence de la relation de perméabilité-porosité sur le volume de pore pour percer en condition d'équilibre local (a) et de non-équilibre local (b)

la relation de Kozeny-Carman et à 3 pour la seconde corrélation. L'impact de la corrélation  $K - \varepsilon_\beta$  sur les simulations numériques est représenté Fig. 6-30 en terme d'extension des figures de dissolution comparé au volume de pore pour deux débits d'injection. Le premier correspond à une dissolution en équilibre local ( $Q = 1 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ , régime conique), l'autre à une dissolution en non-équilibre local ( $Q = 80 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ , débit optimum). Comme prévu, la corrélation  $K - \varepsilon_\beta$  joue un rôle mineur dans des conditions de dissolution en équilibre local où un front raide délimite les zones fluide et poreuse (pas de zone de transition pour la porosité ou la perméabilité).

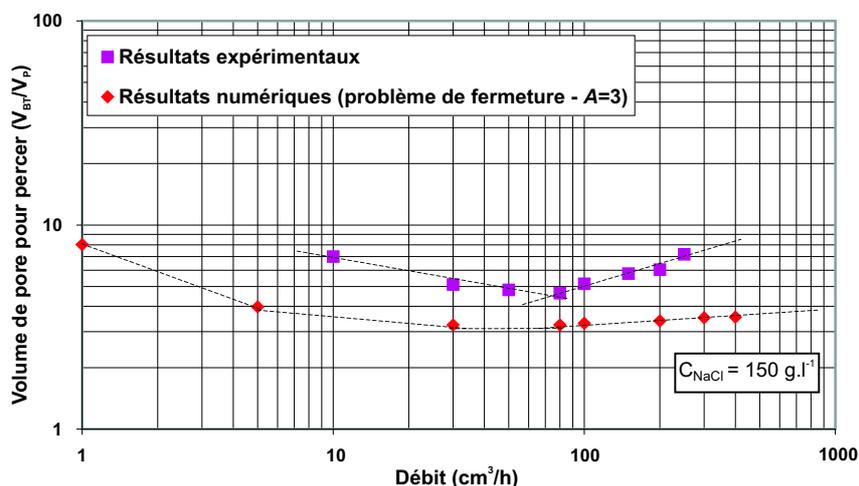


FIG. 6-31 – Volume de pore pour percer en fonction du débit d'injection pour une concentration de NaCl de  $150 \text{ g.l}^{-1}$  (résultats expérimentaux et numériques)

A l'opposé, il y a une grande sensibilité du modèle dans les conditions de non-équilibre local et une calibration précise est ici nécessaire.

Une série de simulations numériques a été réalisée avec  $K$  estimé à partir du problème de fermeture et  $A = 3$ . La comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques en terme de volume de pore pour percer et du débit d'injection est présentée Fig. 6-31. Compte tenu des hypothèses adoptées au niveau de la géométrie microscopique du milieu, les résultats sont satisfaisants avec une précision pour le temps de percée d'environ 50% dans la région proche du débit optimum. Un gain en précision nécessiterait une meilleure caractérisation de la structure à l'échelle du pore, qui sort du cadre de ce travail.

### 6.2.6 Application à des milieux 2D hétérogènes

Nous avons exploré dans les paragraphes précédents les capacités de notre modèle à simuler la dissolution en milieu homogène. Dans cette partie, l'application du modèle à des milieux hétérogènes est envisagée. Nous restreindrons ici notre étude à deux cas tests : un milieu série pour lequel l'injection est réalisée perpendiculairement aux strates et un milieu parallèle pour lequel l'injection est réalisée parallèlement aux strates.

Injection à Débit Constant	
201 x 101 noeuds	$C_0 = 150 \text{ kg.m}^{-3}$
$\rho_\sigma = 2700 \text{ kg.m}^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
$\varepsilon_\beta = 0.38$	$\beta = 1.37$
$D_\beta = 1.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$	$\alpha = 10 \text{ s}^{-1}$

TAB. 6.7 – Données numériques

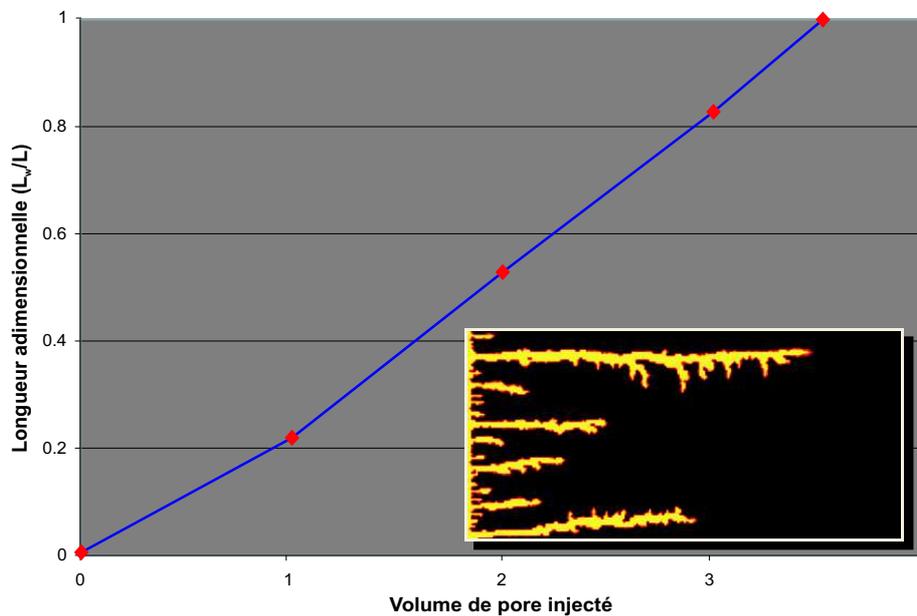


FIG. 6-32 – Variation de la longueur du wormhole en fonction du volume de pore injecté et faciès de dissolution observé pour la dissolution du milieu homogène  $K_1$

Nous considérons tout d'abord deux milieux homogènes de perméabilité  $K_1 = 10^{-11} \text{ m}^2$  et

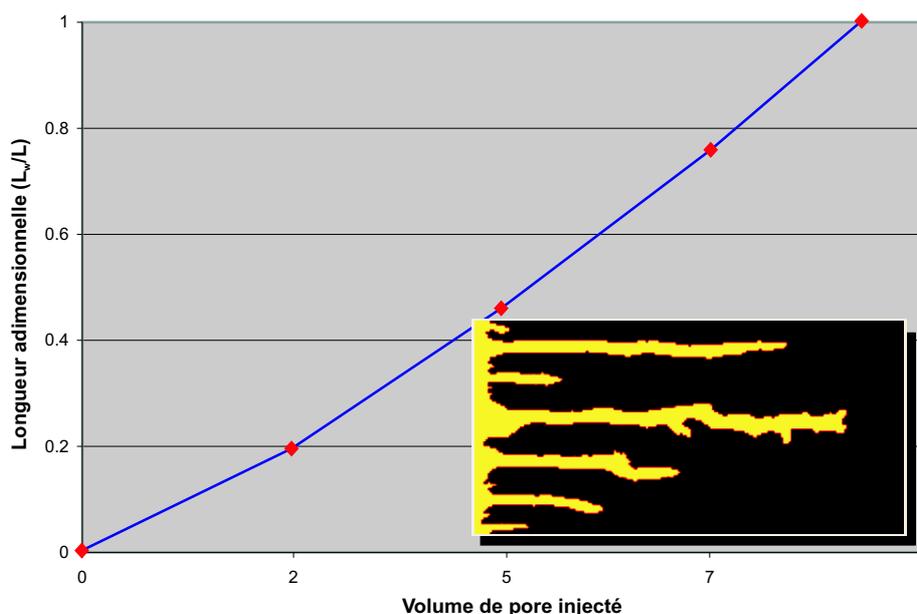


FIG. 6-33 – Variation de la longueur du wormhole en fonction du volume de pore injecté et faciès de dissolution observé pour la dissolution du milieu homogène  $K_2$

$K_2 = 10^{-9} \text{ m}^2$  dans lequel on injecte une solution acide de concentration  $C_0 = 150 \text{ kg.m}^{-3}$  à un débit constant  $Q = 272 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$ . A l'exception de la perméabilité, toutes les autres données numériques sont identiques pour les deux simulations et rassemblées dans le tableau 6.7. L'évolution de la longueur du wormhole en fonction du volume de pore injecté pour chacune des simulations ainsi que les figures de dissolution associées sont rassemblées Figs. 6-32 et 6-33. On obtient ainsi pour le milieu  $K_2$  un volume de pore pour percer supérieur à celui observé pour le milieu  $K_1$ . Ce résultat est logique puisque le nombre de Darcy augmente (voir § 6.2.4). Ces simulations serviront d'outil de référence dans l'analyse du comportement des wormholes en milieu hétérogène.

### milieu série

Le domaine considéré est représenté Fig. 6-34. Une simulation est réalisée dans des conditions similaires à celles du tableau 6.7 avec le même débit d'entrée et les résultats sont représentés Fig. 6-35. La figure de dissolution obtenue est particulièrement intéressante : on observe une succession de régimes de dissolution de type wormholing et conique en fonction de la strate traversée. Ce mode de propagation est lié à la répartition du champ de pression, illustrée Fig. 6-36. En effet, comme les wormholes se propagent selon la direction de moindre résistance, lorsque le wormhole dominant pénètre dans la strate de perméabilité  $K_2$ , il va avoir tendance à se propager latéralement plutôt que de se diriger vers la strate  $K_1$  où la perméabilité est plus faible. Dès que le wormhole finit par pénétrer dans  $K_1$ , par contre, le champ de pression se relaxe aussitôt et on retrouve un régime de wormholing.

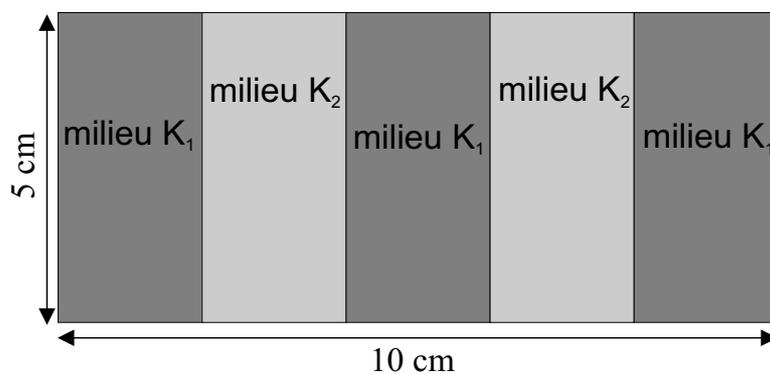


FIG. 6-34 – Représentation du domaine dans le cas de milieux hétérogènes associés en série

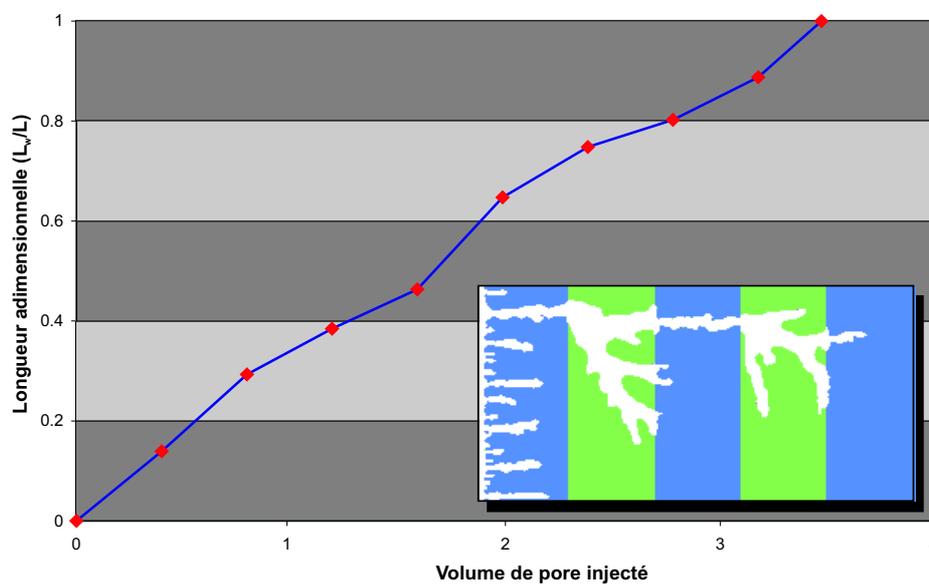


FIG. 6-35 – Variation de la longueur du wormhole en fonction du volume de pore injecté et faciès de dissolution observé pour la dissolution du milieu en série

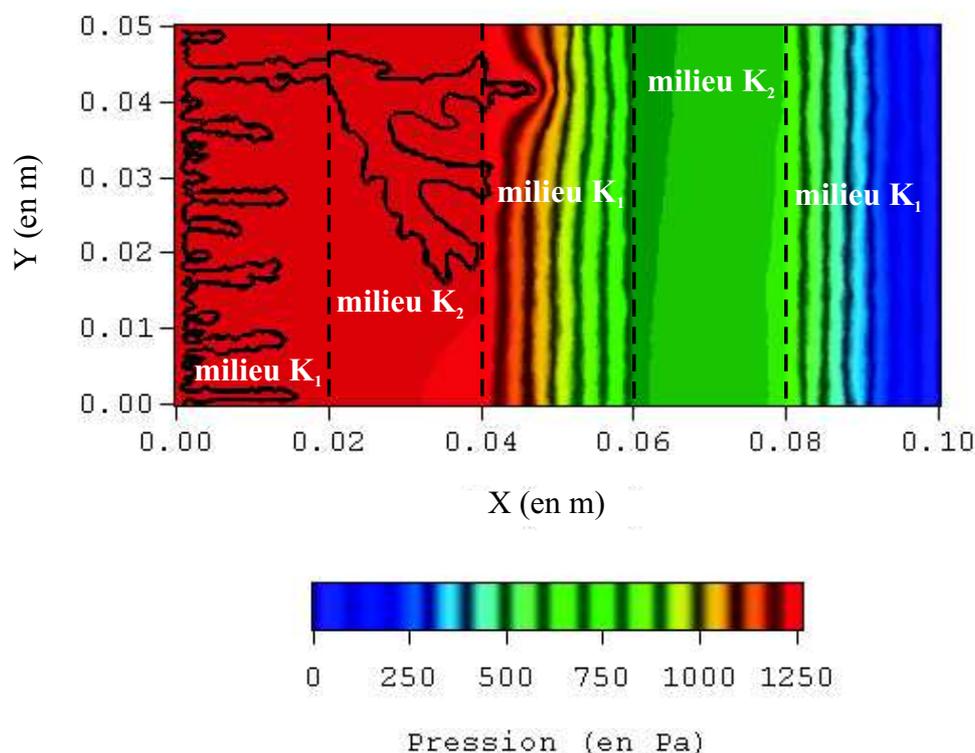


FIG. 6-36 – Superposition du faciès de dissolution et du champ de pression à  $t = 100$  s

L'évolution du volume de pore injecté met en lumière les mécanismes de propagation avec une succession de différentes vitesses de propagation. On retrouve au final, cependant, un volume de pore pour percer très proche de celui obtenu dans le cas homogène pour le milieu  $K_1$  de plus faible perméabilité. Ce résultat nécessite toutefois d'être vérifié pour d'autres débits d'injection et en faisant varier le nombre et l'épaisseur des strates.

### milieu parallèle

Le domaine considéré ici est représenté Fig. 6-37 et les conditions d'injection sont celles du tableau 6.7 avec toujours un débit de  $272 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . La figure de dissolution obtenue et l'évolution du volume de pore injecté sont représentées Fig. 6-38. On constate comme on pouvait s'y attendre que la totalité de la solution acide se propage dans le milieu de plus forte perméabilité. On obtient une vitesse de propagation constante avec un volume de pore pour percer correspondant à la moitié du volume injecté pour le milieu  $K_2$  dans le cas homogène. Ce résultat est tout à fait logique, compte tenu du fait que la surface d'entrée est deux fois plus petite.

Ces deux exemples d'application donnent une idée de l'étendue des possibilités du modèle mais ne répondent pas, loin de là, à toutes les questions soulevées par le problème de dissolution en milieu hétérogène : Quel est le débit optimum d'injection, par exemple, pour un milieu série ? Peut-on dissoudre sur toute la largeur de l'échantillon, si l'on injecte à des débits suffisamment

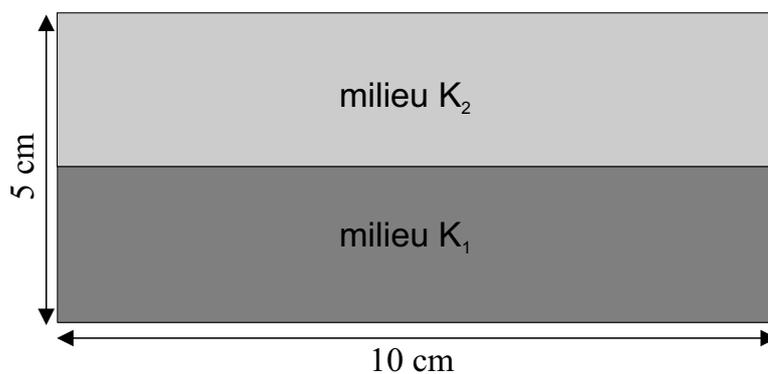


FIG. 6-37 – Représentation du domaine dans le cas de milieux hétérogènes associés en parallèle

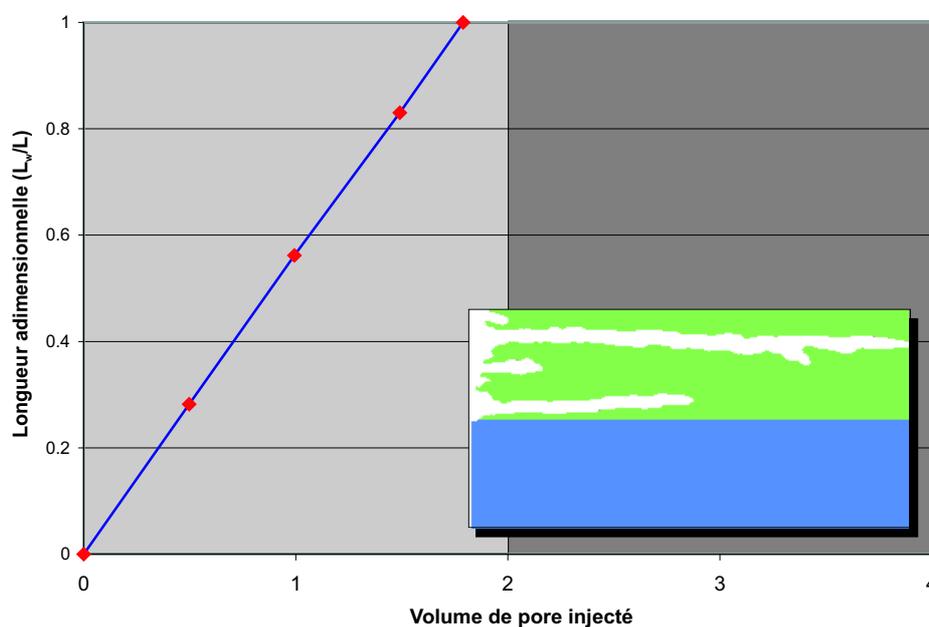


FIG. 6-38 – Variation de la longueur du wormhole en fonction du volume de pore injecté et faciès de dissolution observé pour la dissolution du milieu en parallèle

faibles, dans le cas d'un milieu parallèle ? Toutes ces questions, pour l'instant sans réponse, nécessiteraient des études plus approfondies mais qui sont au-delà de l'objectif de ce travail. Ces deux exemples montrent néanmoins que ce modèle est capable d'y apporter des solutions.

### 6.3 Extension du modèle en 3D : exemples de simulations

Un dernier point reste à aborder ici. Bien que nous ayons présenté notre modèle de transport-réaction à l'échelle de Darcy comme un modèle 3D, toutes les simulations ont été réalisées jusqu'à présent en deux dimensions pour des raisons de temps de calcul. Si, sur les problèmes de digitations capillaires, on peut citer quelques exemples de modèle 3D (Le Bray 1997, Le Bray & Prat 1999), à notre connaissance, aucun modèle n'est capable à l'heure actuelle de capturer véritablement le phénomène de wormholing en trois dimensions. La seule tentative effectuée dans ce sens par Fredd & Fogler (1998b) à l'aide du modèle réseau PRN, est fortement limitée par la taille maximale envisageable du domaine d'étude ( $0.1 \text{ cm}$  sur  $0.003 \text{ cm}^2$ ). L'outil numérique présenté ici représente donc une avancée majeure dans la modélisation des mécanismes de propagation des wormholes.

Injection à Débit Constant	
$K = 1.5 \cdot 10^{-11} \pm \varepsilon \text{ m}^2$	$C_0 = 150 \text{ kg.m}^{-3}$
$\rho_\sigma = 2700 \text{ kg.m}^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
$\varepsilon_\beta = 0.38$	$\beta = 1.37$
$D_\beta = 1.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$	$\alpha = 10 \text{ s}^{-1}$

TAB. 6.8 – Données numériques

Les simulations en 3D ont été réalisées pour un domaine de  $10 \times 2.5 \times 2.5 \text{ cm}$  et un maillage de  $101 \times 26 \times 26$  noeuds. Les conditions opératoires sont rassemblées dans le tableau 6.8. Le calcul du coefficient de transfert  $\alpha$  et du tenseur de dispersion  $\mathbf{D}_\beta^*$  sur des cellules unitaires 3D n'ayant pas été effectué, les coefficients effectifs ont été conservés constants au cours des simulations. Pour conserver des temps de calcul acceptables (de l'ordre de la semaine sur une station ALPHA), le modèle Darcy-Darcy a été préféré au modèle Darcy-Brinkman. La perméabilité effective du milieu fluide a été déterminée à partir du diamètre moyen  $d$  du wormhole ( $K_{fluide} = d^2/32$ ). Celui-ci a été estimé autour de l'ordre de  $1 \text{ mm}$ . Si cette hypothèse va jouer un rôle certain sur la vitesse prédite de propagation du front de dissolution, elle n'a en revanche qu'une influence négligeable sur le faciès proprement dit du wormhole. On peut voir Figs. 6-39 et 6-40 deux exemples de figures de dissolution caractéristiques obtenues respectivement en régime wormholing et conique. Les profils de coupe sont présentées Figs. 6-41 et 6-42. On retrouve ici les mêmes mécanismes que ceux observés précédemment en 2D : concurrence entre les différents wormholes aux temps courts puis extinction des wormholes non prépondérants avec percée du wormhole dominant en régime wormholing. De la même manière, on observe en régime conique, un wormhole unique de forme conique qui se propage au sein du milieu poreux.

Il faut bien comprendre évidemment, que ces images n'ont pour but que de démontrer la validité de notre modèle en 3D et de donner un aperçu des figures de dissolution qui peuvent être

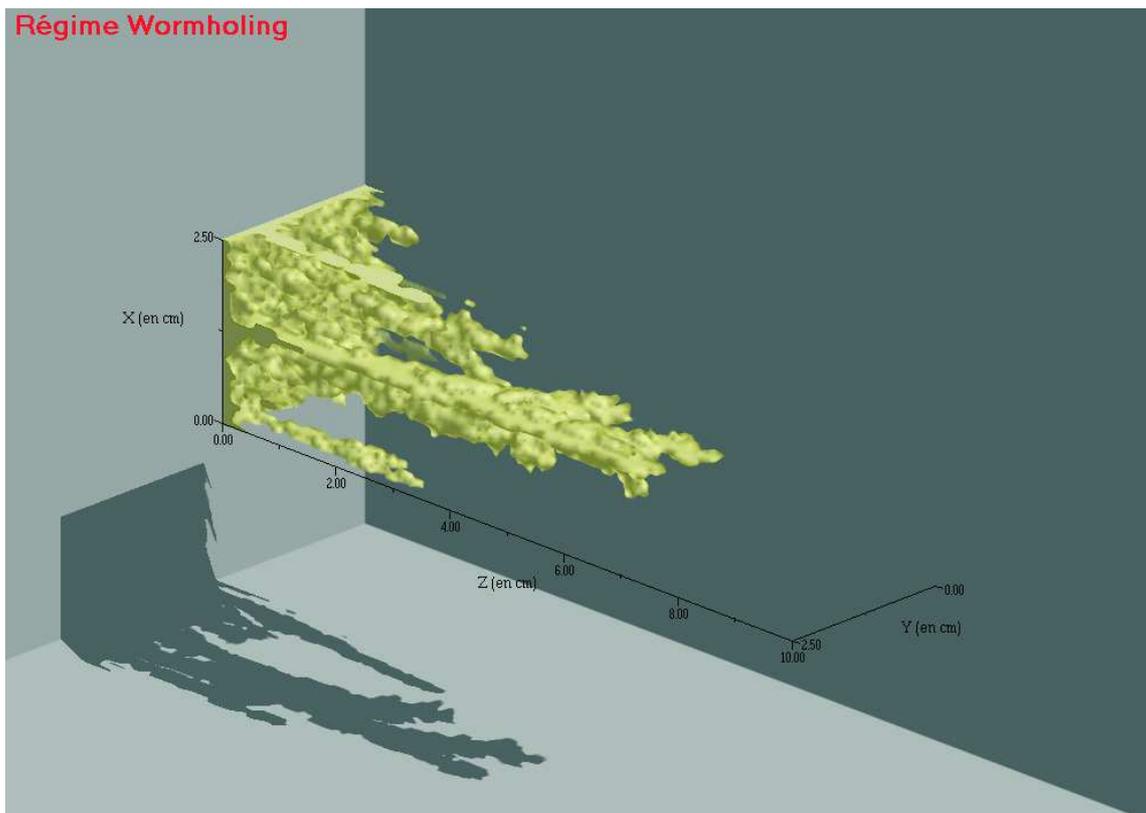


FIG. 6-39 – Représentation 3D d'un wormhole en *régime wormholing*

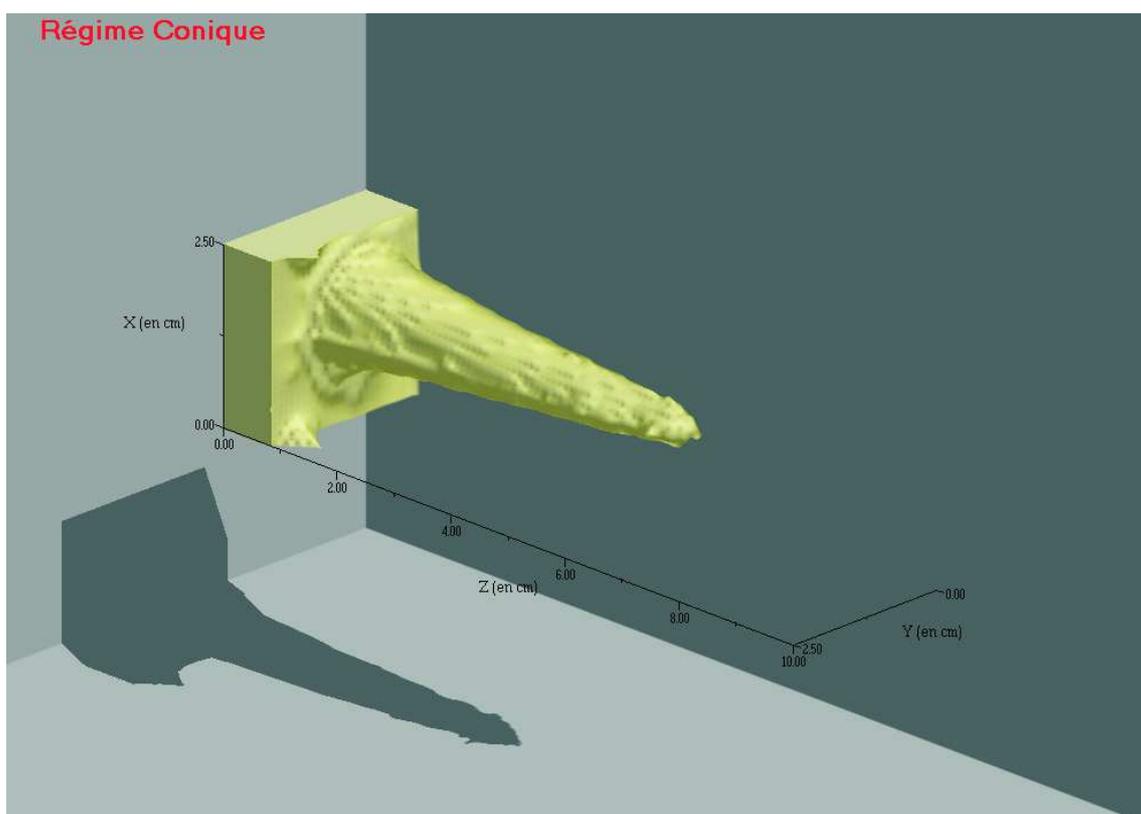


FIG. 6-40 – Représentation 3D d'un wormhole en *régime conique*

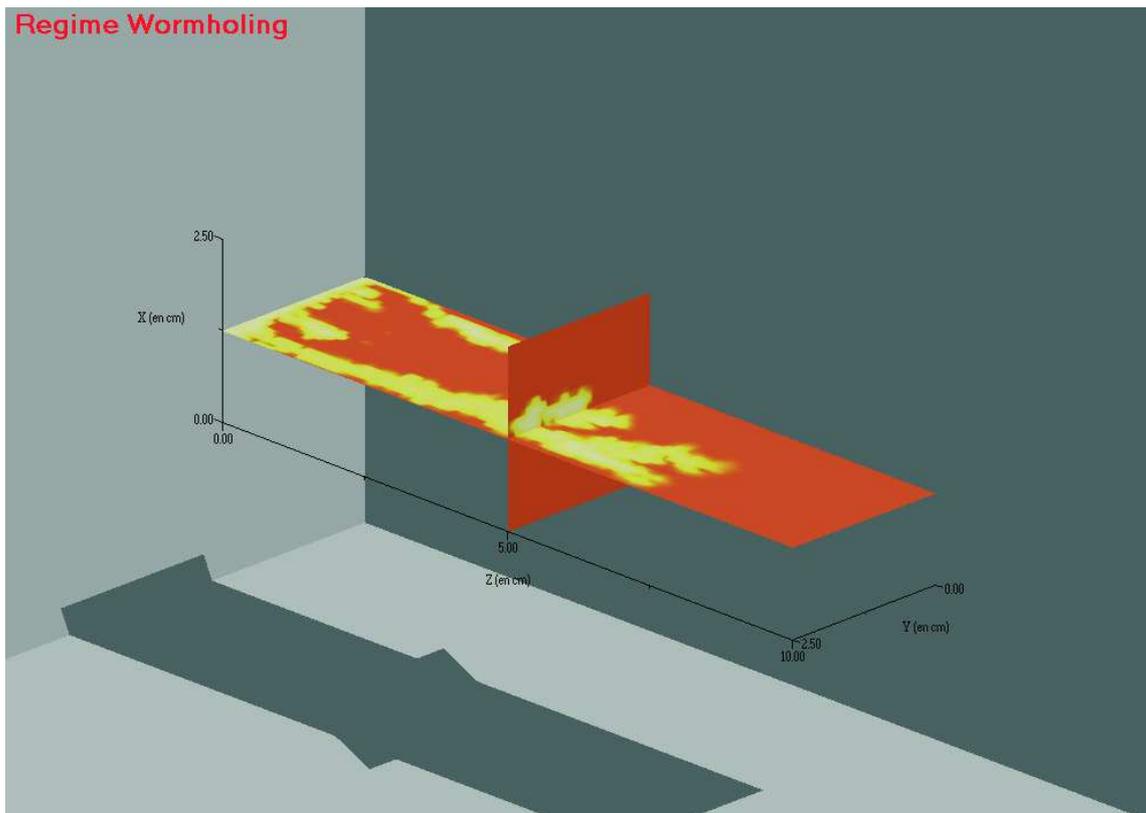


FIG. 6-41 – Profil de coupe d'un wormhole 3D en *régime wormholing*

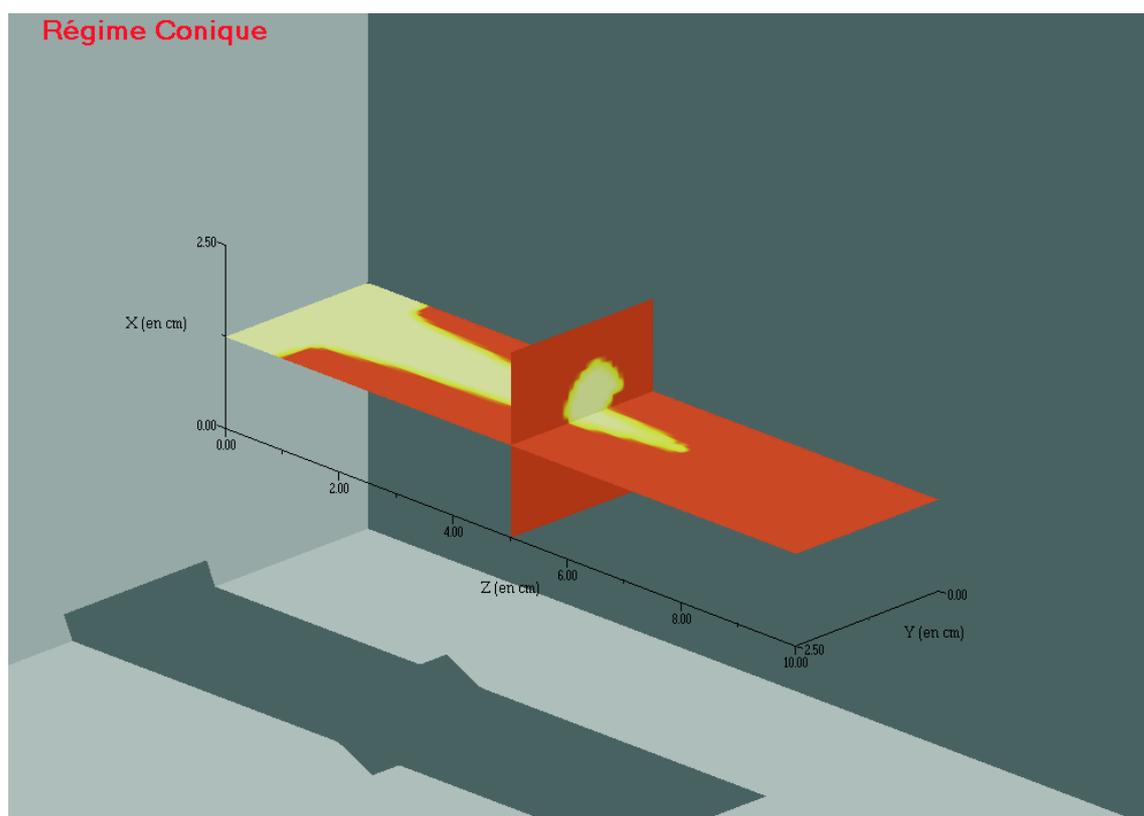


FIG. 6-42 – Profil de coupe d'un wormhole 3D en *régime conique*

obtenues. Nous n'envisageons pas de donner ici une étude de l'impact du 3D sur nos résultats. Les possibilités de ce modèle ouvrent la porte néanmoins à des études plus poussées.

## 6.4 Conclusions

Un modèle tri-dimensionnel de transport–réaction couplé à l'échelle de Darcy a été présenté dans cette première partie. Comparativement aux modèles de dissolution précédents, son originalité réside dans le fait qu'il est basé sur l'association d'un modèle de Darcy-Brinkman avec un modèle de non-équilibre local pour la partie dissolution. Des méthodes numériques spécifiques ont été développées pour résoudre le système couplé d'équations. Le modèle à l'échelle de Darcy et les propriétés effectives associées sont reliées aux propriétés à l'échelle du pore. Les comportements historiques sont simplifiés au profit de cellules unitaires représentatives de la géométrie et d'une évolution uniforme de la structure des pores au cours de la dissolution.

Différentes simulations numériques ont été réalisées. Elles mettent en évidence les capacités de ce modèle à reproduire tous les régimes de dissolution observés et reportés dans la littérature. Non seulement le modèle reproduit les différents régimes de dissolution, mais il est utilisé aussi pour donner une interprétation physique de mécanismes de dissolution. Il peut être employé pour proposer des diagrammes quantitatifs décrivant les transitions entre ces différents régimes. En outre, des caractéristiques importantes telles que le débit optimum d'injection sont vérifiées, pourvu que les propriétés physiques à l'échelle locale soient correctement déterminées.

De nouvelles expériences ont été réalisées sur le système eau-sel. Elles présentent les mêmes figures de dissolution que celles précédemment publiées pour les systèmes acide-calcaire. Si l'on se place dans une analyse quantitative, il apparaît que le paramètre le plus sensible dans le modèle est le coefficient de transfert de masse,  $\alpha$ , tandis que le nombre de Damköhler joue un rôle clé comme paramètre de contrôle pour la propagation du wormhole. La relation de perméabilité–porosité est aussi très importante, spécialement dans les régimes de non-équilibre local.

La relation entre le coefficient de transfert de masse et le nombre de Damköhler nous a permis de définir un nombre de Damköhler optimum, noté  $Da_{opt}$ . Sur la base d'une comparaison entre les simulations numériques et les données expérimentales, nous avons pu caler le coefficient  $\alpha$  le plus représentatif, pour le système considéré.

Notre modèle à l'échelle de Darcy fournit un outil très intéressant pour la compréhension de la physique sous-jacente, et la prédiction quantitative de la propagation du wormhole. Il peut être utilisé pour étudier l'effet de nombreux paramètres externes, tels que la variation de température ou de la concentration, ou des modifications du processus d'acidification, comme l'utilisation d'acide en émulsion qui entraîne des effets diffusifs plus faibles. Les possibilités du modèle en milieu hétérogène ont aussi été explorées.

Les résultats ne peuvent néanmoins être directement extrapolés pour optimiser les méthodes de stimulation à l'échelle du réservoir. Ceci nécessite un deuxième changement d'échelle et c'est l'objectif de la deuxième partie.



## Deuxième partie

# Modélisation de la dissolution à l'échelle de la section



# Chapitre 7

## Etude bibliographique

### 7.1 Introduction

Si le développement de modèles à l'échelle de Darcy (nous prenons ici l'échelle de Darcy dans son sens large, englobant tous les modèles développés dans le but d'une validation en laboratoire) présente un grand intérêt d'un point de vue théorique pour la compréhension des mécanismes physiques mis en jeu, ils ne peuvent être d'aucune utilité pour l'optimisation des méthodes de stimulation à l'échelle du réservoir. L'extrapolation directe de leurs résultats à l'échelle du champ pétrolier n'est pas possible pour deux raisons, comme l'ont montré plusieurs études (Bazin et al. 1995, Buijse 1997) :

- Dans les études à l'échelle du laboratoire, on peut considérer que le débit pénétrant dans le wormhole se conserve sur toute la longueur du canal, les pertes de fluide aux parois étant négligeables. A l'échelle du réservoir, par contre, la nécessité de travailler dans un milieu semi-infini avec une injection radiale autour d'un point par exemple, rend cette hypothèse caduque.
- De même, la compétition entre les wormholes n'est généralement pas significative dans les modèles en laboratoire, le débit injecté en entrée correspondant au débit pénétrant dans le wormhole. Ce n'est plus le cas à l'échelle du réservoir où la prédiction de la densité de wormholes et de leur taille respective est capitale.

Enfin, on sait également, qu'à ces grandes échelles, le jeu des hétérogénéités du milieu rend les choses très complexes, et complique toute extrapolation.

On peut distinguer dans la littérature deux approches permettant de caler les modèles de propagation de wormhole à l'échelle du réservoir :

- La première méthode utilisée par Daccord, Lenormand & Lietard (1993) ou Huang et al. (1997) consiste à caler le débit d'injection à partir du rapport de surface afin de maintenir la même vitesse d'injection dans la matrice. Cette approche implique cependant que la densité de wormhole se conserve quel que soit l'échelle considérée. Cette hypothèse a des conséquences assez fortes sur la prise en compte des effets de compétition entre les wormholes et a tendance à surestimer le nombre de wormhole se formant par unité de surface. Le calcul des pertes de fluide aux parois est toutefois modifié pour tenir compte

du passage d'une géométrie linéaire à radiale.

- La deuxième approche, utilisée par Huang et al. (1999) et Fredd (2000) consiste à caler le débit d'injection à partir du nombre de wormholes, c'est-à-dire en maintenant les mêmes taux de transport et de réaction pour chacun d'eux. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle nécessite un modèle prédictif de densité de wormholes. Plusieurs études ont tenté de répondre en parallèle à cette question. Huang et al. (1999) a utilisé un modèle de tube capillaire pour calculer les perturbations du champ de pression autour du wormhole et déterminer la valeur minimale des perturbations de pressions nécessaires pour voir apparaître un nouveau wormhole. Gdanski (1999) a basé son modèle de densité de wormhole sur des hypothèses de symétrie et des considérations géométriques. Fredd (2000) a utilisé dans son modèle les observations fournies par Hoefner & Fogler (1988) et Buijse (1997) reliant le nombre de wormholes formés au rapport de l'aire d'entrée sur la longueur recherchée de pénétration. Il faut toutefois indiquer que cette estimation est basée uniquement sur des simulations numériques (modèle réseau ou modèle de tube capillaire) et est adaptée par Fredd (2000) à toutes les structures de dissolution, bien qu'elle ne concerne que le régime de wormholing.

Ces différents modèles servent généralement à quantifier ce que l'on appelle en génie pétrolier le *skin effect* (Frick et al. 1994), que l'on traduit dans un modèle de réservoir par un facteur modifiant l'expression du transfert puits/réservoir, de façon à prendre en compte les conditions réelles au voisinage du puits. Ces conditions restent toutefois confinées à des cas simplifiés (milieu homogène, puits verticaux). Le lecteur peut se référer à Fredd & Miller (2000) pour une comparaison des modèles cités plus haut.

La discussion développée ci-dessus souligne les difficultés d'adapter les modèles de dissolution existants à l'échelle du réservoir et les problèmes inhérents à chacune des deux méthodes. Les méthodes de changement d'échelle peuvent apporter des solutions à ces problèmes, puisqu'elles vont permettre de décrire de manière globale la physique à grande échelle. Le passage à l'échelle du réservoir n'est cependant pas direct.

## 7.2 Intérêt d'une modélisation à l'échelle intermédiaire

Avant de pouvoir envisager la modélisation à l'échelle du réservoir, et compte tenu des outils à notre disposition, il est nécessaire d'étudier un changement d'échelle intermédiaire correspondant à l'échelle de la section. Ce changement d'échelle est représenté Fig. 7-1. Cette approche rentre dans la catégorie des modèles moyennés, qui, à notre connaissance, n'ont encore jamais été appliqués au problème de wormholing. Ce type de modèle est par contre fréquemment utilisé pour modéliser les digitations visqueuses (Koval 1963, Todd & Longstaff 1972, Vossoughi et al. 1984, Odeh & Cohen 1989, Zhang & Smith 2001). Des concentrations moyennes de solvant sont définies dans les zones de digitations visqueuses et le processus est paramétré par un modèle d'écoulement fractionnaire qui fait apparaître une équation de transport hyperbolique (voir une comparaison de ces différents modèles dans Sorbie et al. 1995). Dans le cas qui nous occupe, le problème est toutefois un peu plus complexe car l'acide peut être présent dans les deux régions,

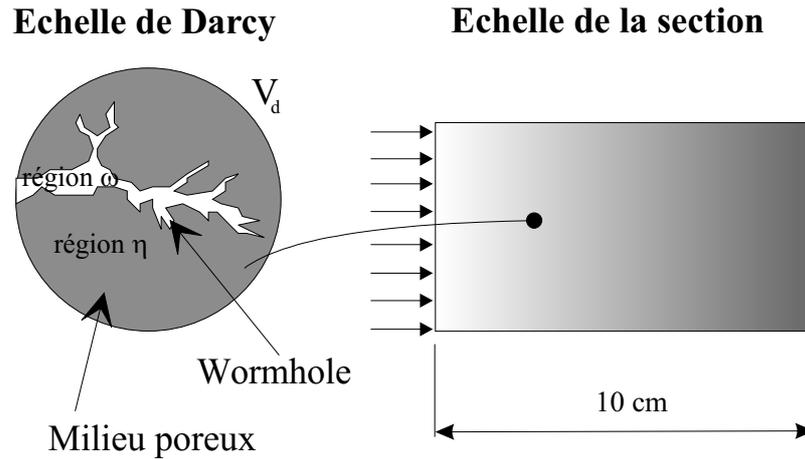


FIG. 7-1 – Représentation du deuxième changement d'échelle

c'est-à-dire aussi bien dans le wormhole que dans le milieu poreux (du moins dans les conditions de non-équilibre local). Sur la base de ces réflexions, deux approches différentes développées en s'appuyant sur des méthodes de prise de moyenne à grande échelle, ont été testées pour simuler le phénomène :

- Si l'on se place dans les *conditions d'équilibre local à l'échelle de Darcy* qui simplifient fortement le problème, un modèle à double milieux a pu être développé. On peut ainsi traiter la région wormhole séparément de la région poreuse. De manière générale, cette méthode s'apparente aux modèles *mobile-immobile* (Zhang & Smith 2001, pour les problèmes de digitation visqueuse par exemple) ou *mobile-mobile* (voir les travaux sur les écoulements miscibles dans des milieux à double porosité de Dykhuizen 1990) rencontrés dans la littérature. Le milieu le plus perméable, où les mécanismes d'advection et de dispersion prédominent, est dit *mobile* tandis que le milieu plus faiblement perméable, où la diffusion est prépondérante, est considéré *immobile*. Des généralisations de ces modèles ont par la suite été proposées pour les systèmes *mobile-mobile*, c'est-à-dire les systèmes pour lesquels l'advection doit être prise en compte dans la région la moins perméable.
- Dans les *conditions de non-équilibre local à l'échelle de Darcy*, par contre, les équations sont infiniment plus difficiles à homogénéiser et dépassent à notre avis les possibilités théoriques des méthodes de prise de moyenne à l'heure actuelle. Un modèle à simple milieu, qui incorpore à la fois les wormholes et la matrice poreuse, a toutefois pu être développé pour ce qui concerne du moins la forme générale des équations macroscopiques. Il est important de préciser ici que *ce modèle ne nécessite pas l'hypothèse que l'équilibre local à l'échelle de la section soit vérifié*, mais entre dans la catégorie des *modèles à une équation à non-équilibre local* sur la base des travaux de Moyne et al. (1999), Cherblanc (1999) et Quintard et al. (2001). Une discussion plus poussée sur les particularités de ce modèle à "une équation" et les différences avec un modèle classique à équilibre local sera menée dans le § 8.2.2.

L'application de ce modèle à l'échelle du réservoir reste à définir et fera l'objet d'études ultérieures. On peut envisager, par exemple, à l'aide d'une telle représentation de pouvoir caractériser les corrélations reliant l'injection d'acide à l'évolution de la perméabilité effective, corrélations qui pourront être utilisées par la suite dans des modèles de réservoir (sous condition vraisemblablement d'un raffinement du maillage autour du puits).

La description des équations macroscopiques qui décrivent le problème à l'échelle de la section et la validation de ces modèles à partir des simulations de référence réalisées à l'échelle de Darcy sont données dans le chapitre qui suit.

## Chapitre 8

# Présentation du modèle

### 8.1 Equation Macroscopique de l'écoulement

L'équation d'écoulement à l'échelle de la section proposée ici reprend les idées développées par Quintard (1996*b*) et Lasseux et al. (2000). En se basant sur les notations présentées dans Quintard & Whitaker (1998), nous définissons les quantités moyennées à l'échelle de la section, associées avec le volume de prise de moyenne à l'échelle de la section  $V_t$ , (Fig. 7-1), de la manière suivante

$$\mathbf{V}_\beta^* = \{\mathbf{V}_\beta\} = \frac{1}{V_t} \int_{V_t} \mathbf{V}_\beta dV \quad (8.1)$$

$$P_\beta^* = \{P_\beta\} = \frac{1}{V_t} \int_{V_t} P_\beta dV \quad (8.2)$$

Avec cette définition, la prise de moyenne de l'Eq. (4.23) conduit immédiatement à

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_\beta^* = 0 \quad (8.3)$$

Afin d'appliquer la technique de prise de moyenne à l'équation de Darcy-Brinkman, Eq. (4.16), nous introduisons tout d'abord la déviation spatiale associée à la grandeur locale  $P_\beta$  à l'aide de la décomposition de Gray (Gray 1975)

$$P_\beta = P_\beta^* + \tilde{P}_\beta \quad (8.4)$$

En utilisant cette décomposition dans l'Eq. (4.16), nous obtenons

$$\frac{\mu}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{V}_\beta - \nabla \tilde{P}_\beta - (\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g}) + \mu \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{V}_\beta = 0 \quad (8.5)$$

L'idée sous-jacente ici est que, les équations étant linéaires, nous pouvons obtenir une relation linéaire entre la vitesse et le gradient de la moyenne de pression sur une cellule unitaire périodique représentative de la structure du milieu. Dans ce but, nous exprimons les grandeurs

moyennes et de déviation spatiale à partir des variables de fermeture  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{b}$  sous la forme

$$\mathbf{V}_\beta = -\frac{1}{\mu} \mathbf{B} \cdot (\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g}) \quad (8.6)$$

$$\tilde{P}_\beta = \mathbf{b} \cdot (\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g}) \quad (8.7)$$

En introduisant ces relations dans les Eqs. (4.23) et (8.5), nous obtenons le problème de fermeture suivant, exhibant ainsi des relations explicites entre la structure locale et les équations à l'échelle considérée.

### Problème I

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (8.8a)$$

$$-\nabla \mathbf{b} - \mathbf{I} + \frac{1}{\varepsilon_\beta} \Delta \mathbf{B} - \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (8.8b)$$

$$\text{C.L. de périodicité?} \quad (8.8c)$$

$$\frac{1}{V_t} \int_{V_t} \mathbf{b} \, dV = 0 \quad (8.8d)$$

Il est évident qu'il est difficile de définir ici une cellule unitaire représentative de la géométrie du milieu à l'échelle locale, de même qu'imposer des conditions aux limites, Eq. (8.8c), associées au problème de fermeture (des conditions limites de périodicité, comme pour le problème de fermeture à l'échelle du pore, sont inapplicables). Il paraît de même délicat d'introduire l'évolution de la cellule unitaire au cours du temps et l'influence de l'historique de dissolution sur les grandeurs effectives. Nous avons contourné ce problème à l'échelle microscopique en considérant que la dissolution se développait de manière uniforme au cours du temps mais le mode de propagation des wormholes rend l'hypothèse caduque à cette échelle. Ces difficultés apparaîtront à chacun des problèmes de fermeture associées à l'échelle de la section et nous laisserons pour l'instant ce point en suspens.

Nous allons maintenant appliquer l'opérateur de prise de moyenne à l'Eq. (8.6) pour obtenir la relation régissant l'écoulement à l'échelle de la section

$$\begin{aligned} \mathbf{V}_\beta^* &= \frac{1}{V_t} \int_{V_t} \mathbf{V}_\beta \, dV \\ &= -\frac{1}{\mu} \mathbf{K}^* \cdot (\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g}) \end{aligned} \quad (8.9)$$

où le tenseur de perméabilité effective est donné par

$$\mathbf{K}^* = \frac{1}{V_t} \int_{V_t} \mathbf{B} \, dV \quad (8.10)$$

Ce développement suggère que l'équation régissant l'écoulement à l'échelle de la section a la forme d'une équation de Darcy, la perméabilité effective étant déterminée par le **problème I**. Il doit être souligné que l'hypothèse sous jacente dans ce développement est que l'évolution

temporelle de la région dissoute est suffisamment lente pour que le champ de pression se relaxe immédiatement. Cependant, le tenseur de perméabilité,  $\mathbf{K}^*$ , devient dépendant du temps. Comme dans le modèle à l'échelle de Darcy, les paramètres effectifs dépendent à priori de l'historique de dissolution. Est-il possible de remplacer cette influence de l'historique de dissolution par une relation directe avec un paramètre à l'échelle de la section semblable à la porosité à l'échelle locale ? Cette question primordiale sera discutée dans le § 8.3 sur la base des expériences numériques.

## 8.2 Equation macroscopique de transport-réaction

En ce qui concerne la modélisation du transport et de la dissolution à l'échelle de la section, il n'est pas évident d'appliquer une méthode de changement d'échelle qui conduise à des équations macroscopiques représentatives dans toutes les conditions opératoires. En effet, la valeur du coefficient de transfert de masse peut fortement modifier le mode de transport acide et le faciès de dissolution correspondant à l'échelle de Darcy. En se basant sur la discussion développée précédemment sur les modèles simple ou double-milieu (à une et deux équations)<sup>1</sup>, nous allons nous efforcer de présenter les approches possibles pour décrire la physique de dissolution selon que l'on se place ou non dans des conditions d'équilibre local.

### 8.2.1 Dissolution en équilibre local ( $Da$ grand) : modèle double-milieu (à deux équations)

Bien que les équations à l'échelle locale aient été écrites dans l'hypothèse d'un *non-équilibre de masse local*, si le flux d'échange interfacial est très grand par rapport au flux convectif (régimes de dissolution (a), (b) et (c) sur la Fig. 6-8), le modèle tend alors vers le cas limite d'équilibre local. Pour être plus précis, si  $\alpha \rightarrow \infty$ , nous pouvons simplifier le problème à l'échelle de Darcy de la manière suivante

$$\frac{\partial C_{A\beta}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}_\beta C_{A\beta}) = \nabla \cdot (D \nabla C_{A\beta}) \quad \text{dans } V_\varpi \quad (8.11)$$

$$\frac{\partial \rho_\beta}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\beta \mathbf{V}_\beta) = 0 \quad \text{dans } V_\varpi \quad (8.12)$$

$$C_{A\beta} = 0 \quad \text{dans } V_\eta \quad (8.13)$$

$$\frac{\partial \rho_\eta}{\partial t} = 0 \quad \text{dans } V_\eta \quad (8.14)$$

C.L.1 :

$$C_{A\beta} = 0 \quad \text{sur } A_{\varpi\eta} \quad (8.15)$$

<sup>1</sup>Ici on emploiera le vocabulaire simple/double-milieu, très usité en génie pétrolier, en rappelant aussi une dénomination classique pour les systèmes hors équilibre local : une équation ou deux équations.

C.L.2 :

$$\begin{aligned}
 -\rho_\eta \mathbf{w} \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} &= C_{\sigma\beta} (\mathbf{V}_{\sigma\beta} - \mathbf{w}) \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta} \text{ sur } A_{\varpi\eta} \\
 &= -\beta^* C_{A\beta} (\mathbf{V}_{A\beta} - \mathbf{w}) \cdot \mathbf{n}_{\varpi\eta}
 \end{aligned} \tag{8.16}$$

où  $\rho_\eta$  représente la masse volumique du milieu poreux, soit  $\varepsilon_\sigma \rho_\sigma$ , et  $\beta^*$  le coefficient stoechiométrique de dissolution du milieu poreux, soit  $\varepsilon_\sigma \beta$ . Ce modèle est strictement similaire au problème à l'échelle du pore, Eq. (4.5) à (4.8), qui a conduit aux Eqs. (4.29) et (4.34) et au modèle de non équilibre de masse. Dans ce cas particulier, et en suivant le même raisonnement utilisé pour obtenir les équations à l'échelle de Darcy, il est possible de développer un modèle à deux milieux qui décrit la physique du processus en tenant compte des mécanismes propres à chaque région.

Nous définissons ainsi à cette échelle pour la grandeur macroscopique à l'échelle de Darcy  $\langle \Psi \rangle$ , une moyenne régionale associée à la région  $\varpi$ ,

$$\{\langle \Psi \rangle\}_\varpi = \frac{1}{V_t} \int_{V_\varpi} \langle \Psi \rangle dV \tag{8.17}$$

ainsi qu'une moyenne régionale intrinsèque

$$\{\langle \Psi \rangle\}_\varpi^\varpi = \frac{1}{V_\varpi} \int_{V_\varpi} \langle \Psi \rangle dV \tag{8.18}$$

Et les deux moyennes sont reliées par la relation suivante

$$\{\langle \Psi \rangle\}_\varpi = \phi_\varpi \{\langle \Psi \rangle\}_\varpi^\varpi \tag{8.19}$$

où  $\phi_\varpi = V_\varpi/V_t$  représente la fraction de la région  $\varpi$ . On retrouve bien entendu les mêmes définitions pour les moyennes régionales associées à la région  $\eta$ . Compte tenu des conditions d'application, le volume de prise de moyenne de ce modèle à 2 équations est toujours homogène (pas de variation de porosité ou de perméabilité dans le milieu poreux puisque l'on se place en équilibre local).

En suivant le développement présenté au § 4.2.2 et sur la base des mêmes hypothèses de quasi-stationnarité, une bonne approximation du problème conduit au système suivant à l'échelle de la section

$$\phi_\varpi \frac{\partial C_{A\varpi}^*}{\partial t} + \mathbf{V}_\varpi^* \cdot \nabla C_{A\varpi}^* = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\varpi^{**} \cdot \nabla C_{A\varpi}^*) - \alpha^* C_{A\varpi}^* \tag{8.20}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \phi_\varpi}{\partial t} &= \frac{\beta^*}{\rho_\eta} \alpha^* C_{A\varpi}^* \\
 &= \frac{\beta}{\rho_\sigma} \alpha^* C_{A\varpi}^*
 \end{aligned} \tag{8.21}$$

qui correspond à la forme des équations précédemment obtenues à l'échelle de Darcy. Les quan-

tités moyennées à l'échelle de la section, la concentration moyenne intrinsèque d'acide  $C_{A\varpi}^*$  et la vitesse de filtration  $\mathbf{V}_\varpi^*$ , sont définies comme suit

$$C_{A\varpi}^* = \{C_{A\beta}\}_\varpi = \frac{1}{V_\varpi} \int_{V_\varpi} C_{A\beta} dV \quad (8.22)$$

$$\mathbf{V}_\varpi^* = \{\mathbf{V}_\beta\}_\varpi = \frac{1}{V_t} \int_{V_\varpi} \mathbf{V}_\beta dV \quad (8.23)$$

Il est à noter que la vitesse de filtration  $\mathbf{V}_\beta^*$  présentée dans le paragraphe précédent et les vitesses régionales de filtration associées aux régions  $\varpi$  et  $\eta$ , respectivement  $\mathbf{V}_\varpi^*$  et  $\mathbf{V}_\eta^*$ , sont reliées de la manière suivante

$$\mathbf{V}_\beta^* = \mathbf{V}_\varpi^* + \mathbf{V}_\eta^* \quad (8.24)$$

Il reste maintenant pour résoudre le système à l'échelle de la section à déterminer le problème de fermeture local de manière à coupler les deux échelles et pouvoir calculer les coefficients effectifs.

L'idée de base, comme à l'échelle précédente est d'utiliser la décomposition de Gray (1975) pour exprimer les grandeurs locales en fonction de leur quantité moyenne et d'une déviation spatiale, soit :

$$C_{A\beta} = C_{A\varpi}^* + \tilde{C}_{A\varpi} \quad (8.25)$$

$$\mathbf{V}_\beta = (\phi_\varpi)^{-1} \mathbf{V}_\varpi^* + \tilde{\mathbf{V}}_\varpi \quad (8.26)$$

En suivant le développement présenté dans Quintard & Whitaker (1999), il est possible d'approximer la déviation spatiale de concentration  $\tilde{C}_{A\varpi}$  comme suit

$$\tilde{C}_{A\varpi} = \mathbf{b}_\varpi \cdot \nabla C_{A\varpi}^* - s_\varpi C_{A\varpi}^* \quad (8.27)$$

où les *variables de fermeture*,  $\mathbf{b}_\varpi$  et  $s_\varpi$ , sont définies par deux *problèmes de fermeture*, comme décrit ci-dessous.

### Problème II a

$$\tilde{\mathbf{V}}_\beta + \mathbf{V}_\beta \cdot \nabla \mathbf{b}_\varpi = \nabla \cdot (D \nabla \mathbf{b}_\varpi) - (\phi_\varpi)^{-1} \mathbf{u}_\varpi \quad (8.28a)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{b}_\varpi = 0 \quad \text{sur } A_{\varpi\eta} \quad (8.28b)$$

$$\text{CL de périodicité?} \quad (8.28c)$$

$$\{\mathbf{b}_\varpi\}_\varpi = 0 \quad (8.28d)$$

où  $\mathbf{u}_\varpi$  dans l'Eq. (8.28a) est donné par :

$$\mathbf{u}_\varpi = \frac{1}{V_t} \int_{A_{\varpi\eta}} \mathbf{n}_{\varpi\eta} \cdot (D \nabla \mathbf{b}_\varpi) dA \quad (8.29)$$

**Problème II b**

$$\mathbf{V}_\beta \cdot \nabla s_\varpi = \nabla \cdot (D \nabla s_\varpi) + (\phi_\varpi)^{-1} \alpha^* \quad (8.30a)$$

$$\text{C.L.1} \quad s_\varpi = 1 \quad \text{sur } A_{\varpi\eta} \quad (8.30b)$$

$$\text{CL de périodicité?} \quad (8.30c)$$

$$\{s_\varpi\}_\varpi^\varpi = 0 \quad (8.30d)$$

où le coefficient de transfert de masse  $\alpha^*$  (8.30a) est défini par

$$\alpha^* = \frac{1}{V_t} \int_{A_{w\eta}} \mathbf{n}_{w\eta} \cdot (D \nabla s_\varpi) \, dA \quad (8.31)$$

tandis que le tenseur de dispersion à grande échelle  $\mathbf{D}_\beta^{**}$  est exprimé sous la forme

$$\mathbf{D}_\beta^{**} = D \left( \phi_\varpi \mathbf{I} + \frac{1}{V_t} \int_{A_{w\eta}} \mathbf{n}_{w\eta} \mathbf{b}_\varpi \, dA \right) - \{ \tilde{\mathbf{V}}_\beta \mathbf{b}_\varpi \} \quad (8.32)$$

Comme il est expliqué dans Quintard & Whitaker (1993b), ce résultat requiert que la vitesse de l'interface  $A_{\varpi\eta}$ , délimitant la zone fluide et la région poreuse (la région solide dans le problème initial à l'échelle du pore), soit assez faible pour que le champ de concentration se relaxe plus rapidement. D'autre part, nous sommes confrontés ici, encore une fois, au problème de la détermination des conditions aux limites aux frontières de la cellule unitaire (ainsi qu'au choix de la géométrie de la cellule proprement dit). Plutôt que résoudre numériquement ces problèmes de fermeture en utilisant des conditions aux limites non représentatives, les figures de dissolution obtenues à l'échelle de Darcy seront utilisées pour calculer les coefficients effectifs en intégrant spatialement les champs des propriétés macroscopiques. Cependant, comme pour la perméabilité, les paramètres effectifs sont dépendants de l'historique de dissolution. Est-il envisageable de remplacer cette dépendance par une relation unique avec d'autres paramètres macroscopiques? Cette question primordiale sera examinée en détail par la suite, sur la base des expériences numériques réalisées.

### 8.2.2 Dissolution en non-équilibre local ( $Da$ petit) : Modèle simple-milieu ou à une équation

Dans les conditions de non-équilibre local de dissolution à l'échelle de Darcy, la forme plus complexe des équations locales ne permet pas à l'heure actuelle d'obtenir la forme de l'équation de transport à l'échelle de la section tout en conservant le couplage des échelles par l'intermédiaire des problèmes de fermeture. Si nous appliquons en effet la méthode de prise de moyenne volumique aux équations de transport généralisées, le terme non-linéaire  $\alpha C_{A\beta}$  où les deux coefficients dépendent des coordonnées spatiales et du temps, ne permet pas de développer une équation moyennée. Il est possible néanmoins de proposer une forme générale des équations de transport-réaction macroscopique dans le cadre d'un *modèle à une équation*. Quelques précisions doivent être apportées ici sur le choix de ce modèle. Les modèles à une

équation rencontrés généralement dans la littérature (Quintard & Whitaker 1993a, Quintard & Whitaker 1995b) sont de diverses natures. Considérons ceux basés sur l'hypothèse d'*équilibre local à l'échelle de la section*, caractérisée par la relation suivante,

$$\{C_{A\beta}\}_{\varpi}^{\varpi} = \{C_{A\beta}\}_{\eta}^{\eta} = \{C_{A\beta}\} \quad (8.33)$$

Il est alors très simple, en additionnant les équations du modèle à deux équations propres à chacune des régions, de développer un *modèle à une équation à équilibre local*. Malheureusement, les conditions d'équilibre local sont difficilement envisageables à l'échelle qui nous intéresse. Que signifie en effet d'un point de vue physique *l'équilibre local à l'échelle de la section*? Si l'on a déjà des conditions d'équilibre local à l'échelle de Darcy, qui se traduit par  $\{C_{A\beta}\}_{\eta}^{\eta} = 0$  cela revient à considérer que  $\{C_{A\beta}\}_{\varpi}^{\varpi} = \{C_{A\beta}\}_{\eta}^{\eta} = 0$ , c'est-à-dire que la concentration d'acide est nulle aussi dans les wormholes. Si cette hypothèse était plausible à l'échelle inférieure compte tenu de la taille des pores, elle semble plus difficile ici à satisfaire vu la taille des wormholes et par conséquent la moindre importance des effets diffusifs. Dans des conditions de non-équilibre local à l'échelle de Darcy, par contre, *l'équilibre local à l'échelle de la section* semble paradoxalement plus facile à obtenir. Il n'est plus nécessaire en effet que la concentration d'acide soit proche de zéro dans la région wormhole. L'hypothèse d'équilibre local revient alors à considérer, semble-t-il, que la concentration varie de manière uniforme depuis la zone fluide jusqu'à la région poreuse, c'est-à-dire que l'on tend vers un régime de dissolution uniforme. Cette hypothèse nécessiterait néanmoins d'être vérifiée par des calculs à l'échelle de Darcy et resterait de toute manière cantonnée à des conditions bien particulières.

A partir de cette discussion et des réflexions qui en découlent, nous avons opté pour le développement d'un *modèle simple-milieu ou à une équation du type non-équilibre local* en se basant sur les travaux de Moyne et al. (1999), Cherblanc (1999) et Quintard et al. (2001).

Les grandeurs macroscopiques sont définies sur le volume  $V_t$ . La porosité à l'échelle de la section est donnée par

$$\varepsilon_{\beta}^* = \frac{1}{V_t} \int_{V_t} \varepsilon_{\beta} dV \quad (8.34)$$

Des précisions doivent être apportées ici sur la relation entre les coefficients  $\varepsilon_{\beta}^*$  et  $\phi_{\varpi}$ . Ce dernier paramètre joue le rôle de la porosité  $\varepsilon_{\beta}$  à l'échelle de Darcy. Si la dissolution se propage dans des conditions d'équilibre local, il y a alors une relation directe entre  $\varepsilon_{\beta}^*$  et  $\phi_{\varpi}$

$$\varepsilon_{\beta}^* = \phi_{\varpi} + (1 - \phi_{\varpi})\varepsilon_{\beta} \quad (8.35)$$

et n'importe lequel de ces deux paramètres peut être employé pour décrire le système. Une telle relation n'existe pas dans des conditions de non-équilibre local en dissolution, et, en conséquence, ces deux coefficients sont d'une certaine manière indépendants bien que reliés par l'historique de dissolution. Ce dernier point milite d'ailleurs en faveur d'une vision double-milieu.

La concentration macroscopique à cette échelle  $C_{A\beta}^*$  est obtenue à partir d'une moyenne pondérée par la porosité. Comme dans le cas des problèmes de déplacement multiphasique en milieu poreux (Quintard & Whitaker 1988, Quintard & Whitaker 1990) ou d'écoulements

miscibles en milieu hétérogène (Cherblanc 1999), la définition introduite ici permet de prendre en compte les variations de porosité au sein du V.E.R.

$$\{\varepsilon_\beta C_{A\beta}\} = \frac{1}{V_t} \int_{V_t} \varepsilon_\beta C_{A\beta} dV = \varepsilon_\beta^* C_{A\beta}^* \quad (8.36)$$

La vitesse interstitielle à l'échelle de la section,  $\mathbf{U}_\beta^*$ , est définie sur le même principe

$$\{\mathbf{V}_\beta\} = \left\{ \varepsilon_\beta \langle \mathbf{v}_\beta \rangle^\beta \right\} = \varepsilon_\beta^* \mathbf{U}_\beta^* = \mathbf{V}_\beta^* \quad (8.37)$$

tandis que les déviations spatiales associées aux variables macroscopiques présentées ci-dessus sont introduites de la manière suivante

$$C_{A\beta} = C_{A\beta}^* + \tilde{C}_{A\beta} \quad (8.38)$$

$$\varepsilon_\beta^{-1} \mathbf{V}_\beta = \mathbf{U}_\beta^* + \tilde{\mathbf{U}}_\beta \quad (8.39)$$

En considérant que le volume de référence est très petit devant la longueur caractéristique de variation de la grandeur moyenne (Quintard & Whitaker 1994b), il est possible d'extraire la grandeur macroscopique de l'opérateur de prise de moyenne ce qui donne

$$\left\{ \varepsilon_\beta \tilde{C}_{A\beta} \right\} = 0 \quad (8.40)$$

$$\left\{ \varepsilon_\beta \tilde{\mathbf{U}}_\beta \right\} = 0 \quad (8.41)$$

La méthode de prise de moyenne appliquée aux équations de transport à l'échelle locale conduit à

$$\frac{\partial (\varepsilon_\beta^* C_{A\beta}^*)}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}_\beta^* C_{A\beta}^*) + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\beta \tilde{\mathbf{U}}_\beta \tilde{C}_{A\beta})}_{\text{terme dispersif}} = \nabla \cdot \left( \underbrace{\left\{ \mathbf{D}_\beta^* \right\} \cdot \nabla C_{A\beta}^*}_{\text{terme dispersif}} + \underbrace{\left\{ \mathbf{D}_\beta^* \cdot \nabla \tilde{C}_{A\beta} \right\}}_{\text{terme dispersif}} \right) - \{\alpha C_{A\beta}\} \quad (8.42)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta^*}{\partial t} = \frac{\beta}{\rho_\eta} \{\alpha C_{A\beta}\} \quad (8.43)$$

On voit bien ici que la difficulté est soulevée par le terme  $\{\alpha C_{A\beta}\}$ . S'il est toujours possible de définir un coefficient de transfert à l'échelle de la section  $\alpha^*$  sous la forme,

$$\{\alpha C_{A\beta}\} = \alpha^* C_{A\beta}^* \quad (8.44)$$

la non-linéarité ne permet pas d'introduire une déviation spatiale associée au coefficient de transfert de manière à écrire le problème de fermeture.

Bien qu'il soit impossible de relier explicitement les deux échelles, cette étude suggère néanmoins une forme plausible des équations de transport-réaction à l'échelle de la section. Les termes faisant intervenir des déviations spatiales dans l'Eq. (8.42) peuvent être associés à des termes dispersifs et on peut envisager de définir un tenseur de dispersion à l'échelle de la

section  $\mathbf{D}_\beta^{**}$  englobant ces grandeurs. L'expression suivante des équations régissant le transport acide et la dissolution est ainsi obtenue

$$\varepsilon_\beta^* \frac{\partial C_{A\beta}^*}{\partial t} + \mathbf{V}_\beta^* \cdot \nabla C_{A\beta}^* = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\beta^{**} \cdot \nabla C_{A\beta}^*) - \alpha^* C_{A\beta}^* \quad (8.45)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta^*}{\partial t} = \frac{\beta}{\rho_\eta} \alpha^* C_{A\beta}^* \quad (8.46)$$

Comme précédemment pour le modèle à deux équations ou pour l'équation régissant l'écoulement, bien que les raisons en soient ici différentes, le calcul direct des coefficients effectifs est impossible. Il sera nécessaire d'utiliser les simulations à l'échelle de Darcy pour obtenir des indices sur leur expression et un moyen d'estimation.

A partir de cette discussion, plusieurs problèmes sont soulevés :

- La forme appropriée de l'équation de transport-réaction à l'échelle de la section est encore sujette à discussion, en particulier dans le cas d'un non-équilibre local de dissolution. Cependant, des arguments suggèrent que la forme à l'échelle de Darcy est un bon candidat pour approximer le comportement à l'échelle de la section dans l'hypothèse d'un équilibre local de dissolution.
- Les coefficients effectifs à l'échelle de la section sont difficiles à déterminer directement à partir de la résolution des problèmes de fermeture. Leur valeur est fortement influencée par la forme de la cellule unitaire, représentative de la géométrie du domaine, qui est inconnue.
- Les propriétés effectives à l'échelle de la section, si elles existent, peuvent être dépendantes de l'historique de dissolution. La possibilité d'approximer ces effets par une relation directe avec la fraction volumique du wormhole,  $\phi_\varpi$ , doit être envisagée.

### 8.3 Les coefficients effectifs : quelles corrélations ?

Dans ce paragraphe, nous allons déterminer les corrélations régissant les coefficients effectifs à partir des simulations numériques réalisées précédemment à l'échelle de Darcy. Les définitions associées avec l'introduction de ces paramètres macroscopiques sont discutées ci-dessous.

Le domaine de simulation, représenté Fig. 8-1, est divisé en sections de longueur fixée  $l_{int}$ , sur lesquels sont obtenues par intégration les variables macroscopiques de pression  $P_\beta^*$ , de concentration  $C_{A\beta}^*$ ,  $C_{A\varpi}^*$ ,  $C_{A\eta}^*$ , de vitesse  $\mathbf{V}_\beta^*$ , de porosité  $\varepsilon_\beta^*$  et de fraction fluide  $\phi_\varpi$ , à partir des définitions présentées précédemment.

En se basant sur les champs de pression, vitesse et concentration, deux paramètres supplémentaires sont calculés à l'échelle de la section. A partir des champs de pression et de vitesse, nous calculons la perte de charge sur la section de l'échantillon. A partir du champ de concentration, nous calculons le taux global de dissolution sur le volume de la section. A l'aide de ces deux paramètres, il sera possible de déterminer la perméabilité et le coefficient d'échange de masse macroscopiques si l'on considère que le modèle de dissolution discuté précédemment est une approximation valide. Il doit être précisé cependant que leur définition est valable d'une

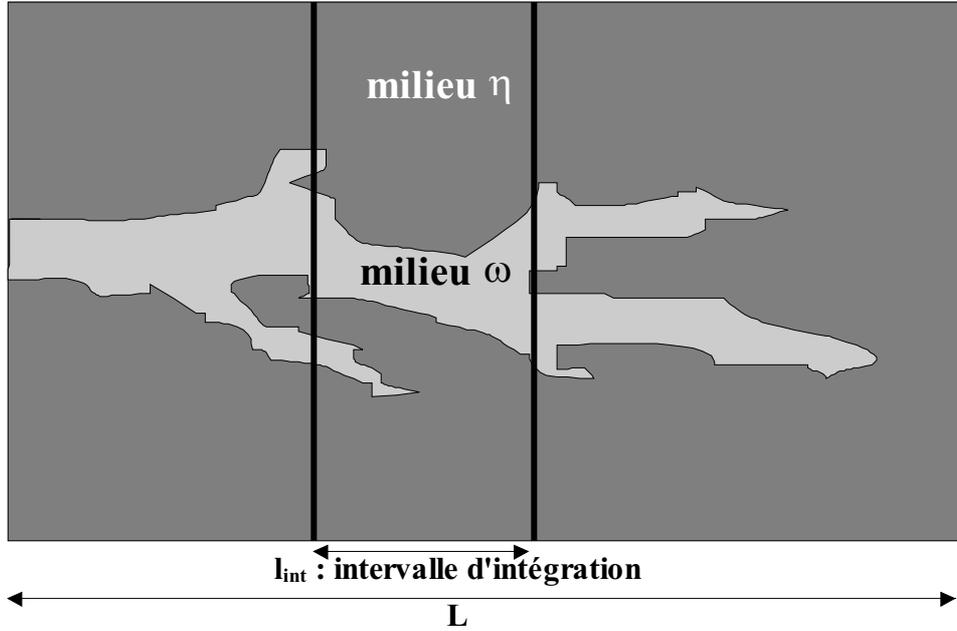


FIG. 8-1 – Approche macroscopique du problème

manière générale, et ne dépend pas d'un modèle particulier (le coefficient de transfert de masse sera calculé de la même manière pour le modèle à une équation et à deux équations).

– **Perméabilité macroscopique à l'échelle de la section :**

$$K^* = \mu \left( \frac{\partial P_\beta^*}{\partial x} \right)^{-1} (\mathbf{V}_\beta^*)_x \quad (8.47)$$

– **Coefficient de transfert macroscopique à l'échelle de la section :**

$$\alpha^* = \frac{1}{C_{A\beta}^*} \frac{1}{V_t} \int_{V_t} \alpha C_{A\beta} dA \quad (8.48)$$

Ces différents paramètres peuvent être exprimés comme une fonction du temps pour les différentes expériences numériques réalisées. Quel est l'impact ici de l'historique de dissolution, sachant qu'une relation directe entre les différentes grandeurs macroscopiques peut être dépendante du temps? Ce problème a pu être résolu à l'échelle de Darcy, où nous avons déjà déterminé les relations liant les propriétés macroscopiques, telles que la perméabilité en fonction de la porosité ou le coefficient de transfert de masse en fonction du nombre de Péclet local et de la porosité. Nous allons essayer d'appliquer la même méthode à l'échelle supérieure en se concentrant sur les relations  $\mathbf{K}^* - \phi_\omega$  et  $\alpha^* = f(Pe, \phi_\omega, \dots)$ . Il faut préciser toutefois que toutes les expériences numériques exploitées dans le but de déterminer ces corrélations, ont été réalisées à nombre de Darcy et rapport de forme constants. L'influence potentielle de ces nombres adimensionnels sur les corrélations n'a donc pu être testée.

### 8.3.1 Expression de la perméabilité macroscopique

Nous allons envisager dans ce paragraphe de représenter l'évolution de la perméabilité à l'échelle de la section comme une fonction de la fraction fluide  $\phi_\varpi$ , ou de la porosité macroscopique  $\varepsilon_\beta^*$ , pour les régimes de dissolution : *wormhole conique*, *wormholing* et *wormhole ramifié*. Pour les deux cas limites de dissolution, *régime compact* et *uniforme*, un déplacement stable du front de dissolution est observé et la géométrie de l'interface se conserve au cours de son déplacement. On se ramène ici au problème de la solution 1D (voir § 6.1) et la relation  $\mathbf{K}^* - \phi_\varpi$  ne dépend plus de l'évolution temporelle (bien qu'elle reste difficile à exprimer simplement dans les conditions de non-équilibre local). Pour les trois autres régimes cités ci-dessus, la question reste posée. Nous allons essayer de déterminer une relation entre ces deux coefficients sur le même principe que le modèle de Kozeny-Carman à l'échelle de Darcy.

#### *Régime conique*

Bien que les coefficients effectifs soient dépendants du temps, comme illustré par les Figs. 8-2 et 8-3 qui représentent les fonctions  $K^*(t)$  et  $\phi_\varpi(t)$ , l'allure similaire des deux courbes nous laisse à penser qu'il est possible en effet de relier directement ces deux propriétés entre elles. Cette relation est-elle indépendante de l'historique de dissolution ou va-t-elle rester fonction du temps ?

Attardons nous quelques instants sur cette question dans un cas simplifié de notre problème. Considérons un wormhole se propageant dans un milieu poreux de perméabilité initiale  $K_0$  et de largeur  $L$  pour une section du domaine suffisamment loin des conditions aux limites et où l'on peut considérer que le régime d'écoulement est permanent (voir Fig. 8-4). Si l'on assimile ce wormhole à un tube capillaire de largeur  $b$  sur la section considérée, on peut alors estimer analytiquement la perméabilité effective  $K^*$  du domaine. La perméabilité équivalente de la zone fluide est de l'ordre de  $b^2/12$  ce qui nous donne pour la perméabilité  $K^*$

$$\begin{aligned} K^* &= (1 - \phi_\varpi) K_0 + \phi_\varpi b^2/12 \\ &\approx \frac{\phi_\varpi b^2}{12} \quad \text{pour } \phi_\varpi > 0 \end{aligned} \quad (8.49)$$

Or, la largeur  $b$  du canal peut elle-même être reliée à la valeur de la fraction fluide, soit  $b = \phi_\varpi L$ . On a ainsi :

$$K^* = \frac{L^2 \phi_\varpi^3}{12} \quad (8.50)$$

Cette relation nous donne une idée de la corrélation  $\mathbf{K}^* - \phi_\varpi$  pouvant exister dans notre problème.

Nous sommes cependant généralement assez éloignés de ces conditions théoriques. Nous avons exprimé Fig. 8-5 la relation liant, dans le cas du régime conique, la perméabilité macroscopique à la fraction fluide pour un même débit d'injection à différents temps. L'intervalle d'intégration est fixé à  $l_{int} = 0.75 \text{ cm}$ . On voit clairement ici que l'évolution de la perméabilité reste dépendante du temps, excepté pour des faibles valeurs de  $\phi_\varpi$ , et on garde :

$$K^* = f(\phi_\varpi, t) \quad (8.51)$$

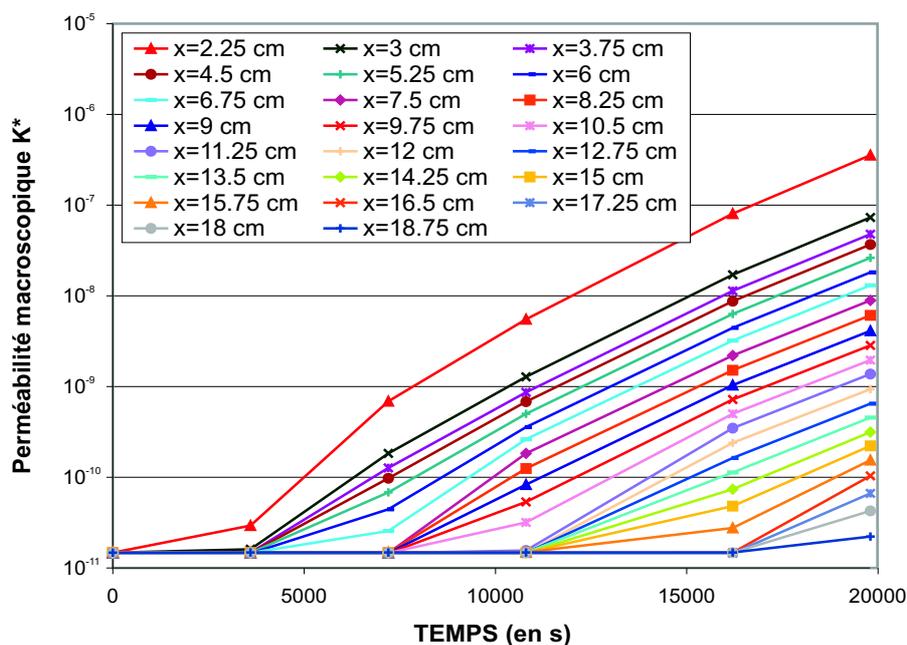


FIG. 8-2 – Evolution de la perméabilité macroscopique  $K^*$  en fonction du temps pour différentes valeurs de  $x$

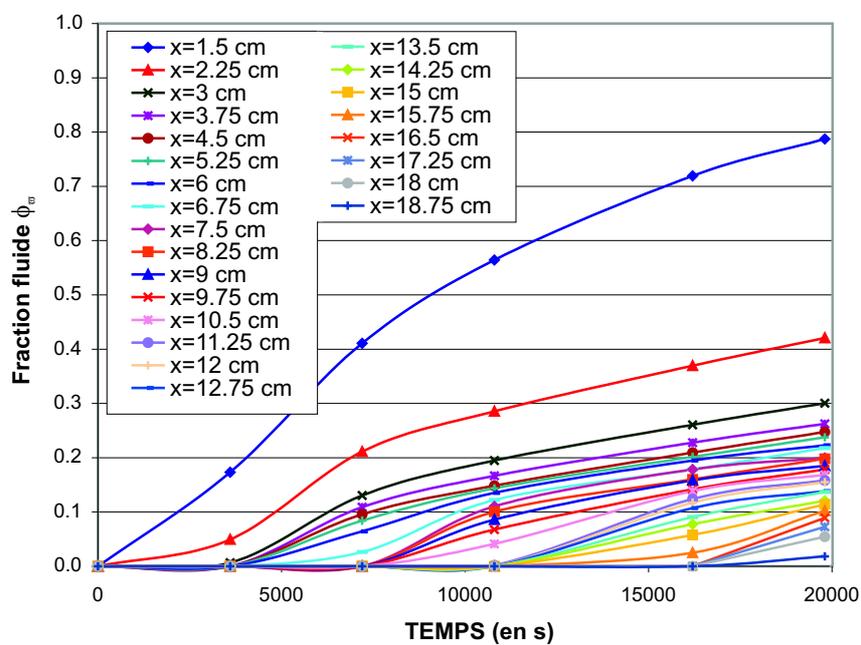


FIG. 8-3 – Evolution de la fraction fluide  $\phi_\omega$  en fonction du temps pour différentes valeurs de  $x$

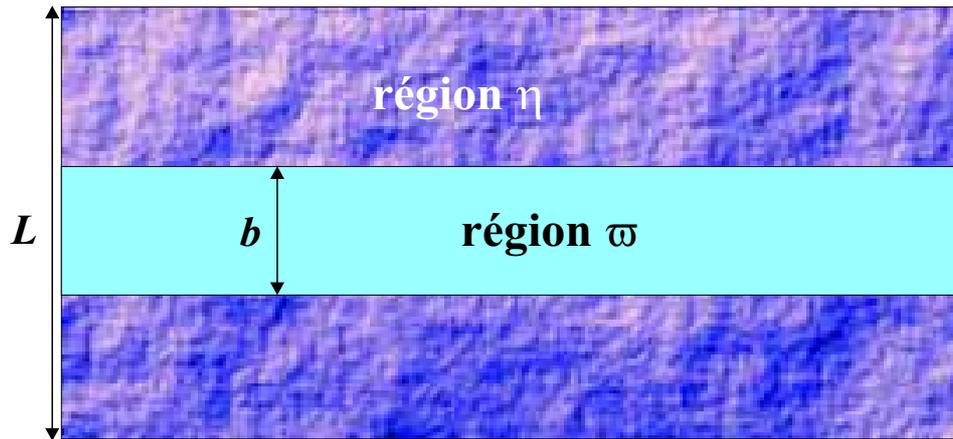
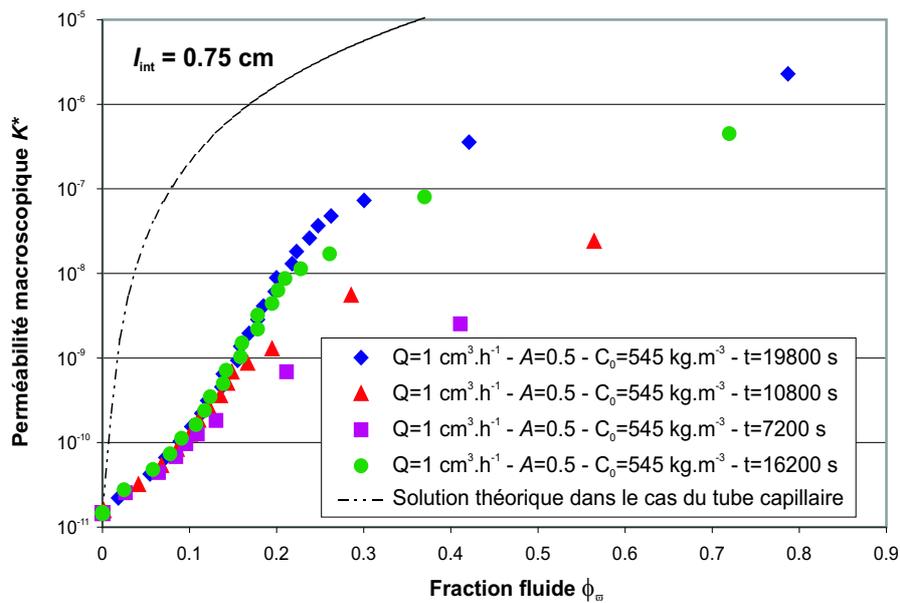


FIG. 8-4 – Représentation de la section d'intégration dans le cas d'un tube capillaire

Ce résultat peut s'expliquer physiquement à partir de l'observation des figures de dissolution. Plus on se rapproche en effet de l'entrée du domaine (c'est-à-dire plus la fraction fluide est importante), moins le wormhole peut être assimilé à un tube capillaire sur la section considérée et la relation (8.50) n'est par conséquent plus vérifiée.

FIG. 8-5 – Evolution de la perméabilité macroscopique  $K^*$  en fonction de la fraction fluide  $\phi_\omega$  (régime conique)

### Régime wormholing

Dans le cas du régime wormholing, par contre, les résultats obtenus sont plus conformes au modèle théorique développé ci-dessus. Nous avons représenté Fig. 8-6, la relation  $K^* - \phi_\omega$  pour différents débits d'injection, différentes valeurs du coefficient de transfert de masse  $\alpha$  et

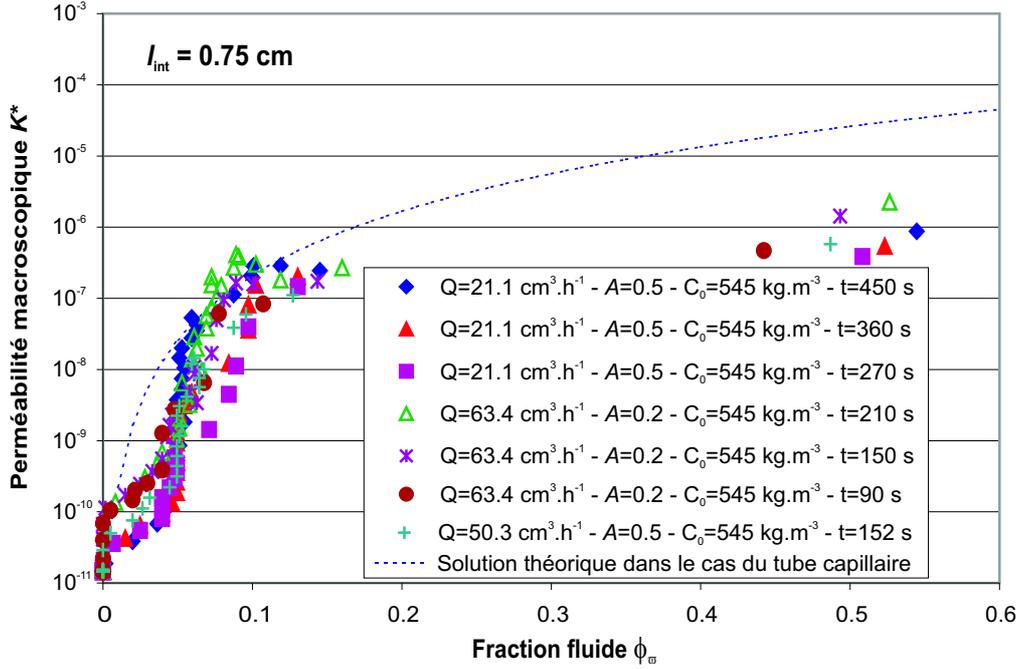


FIG. 8-6 – Evolution de la perméabilité macroscopique  $K^*$  en fonction de la fraction fluide  $\phi_w$  (régime de wormholing)

à différents temps. La longueur de l'intervalle  $l_{int}$  reste fixée à  $0.75 \text{ cm}$ . Nous voyons que pour ce régime de dissolution, la relation macroscopique est pratiquement indépendante du temps. Aussi, nous pouvons écrire

$$K^* = f(\phi_w) \quad (8.52)$$

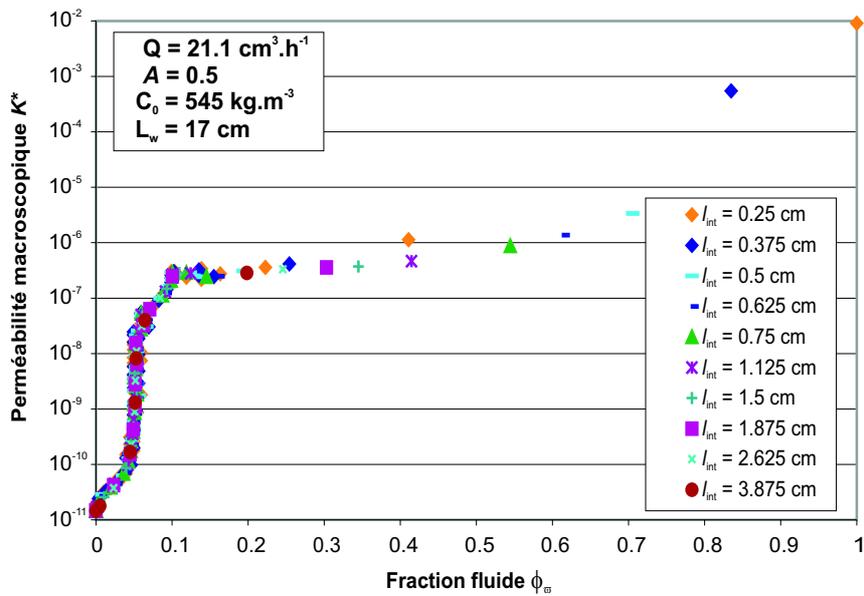


FIG. 8-7 – Influence de la valeur de  $l_{int}$  sur la corrélation  $K^* - \phi_w$  en régime de wormholing

La géométrie du wormhole est en effet pratiquement assimilable dans le cas présent à un tube capillaire et la corrélation tirée de nos simulations est proche de la solution théorique compte tenu des hypothèses adoptées sur le régime d'écoulement et l'impact des conditions initiales.

L'influence de la longueur d'intégration a aussi été testée. La Figure 8-7 présente la relation  $K^* - \phi_w$  obtenue pour une simulation donnée mais en modifiant la valeur de  $l_{int}$ . Cette influence est négligeable, du moins tant que la longueur de l'intervalle reste largement inférieure à la longueur  $L_w$  du wormhole considéré.

#### Régime ramifié

Pour le régime ramifié, enfin, la Fig. 8-8 présente l'évolution de la perméabilité en fonction de la fraction fluide pour différents débits, différentes valeurs du coefficient  $\alpha$ , et à différents temps. Il semble évident qu'une relation  $K^* - \phi_w$  ne semble pas très adéquate pour décrire la perméabilité indépendamment de l'évolution temporelle. Ceci est dû à l'impact de l'étalement du front de dissolution. En effet, il y a maintenant trois zones distinctes dans le domaine : une zone fluide, une zone correspondant au milieu poreux initial et une zone de transition caractérisée par un gradient de porosité dû aux conditions de non-équilibre local. La perméabilité macroscopique  $K^*$  peut augmenter bien que la fraction fluide reste égale à 0 (cf. triangles ▲ sur la Fig. 8-8). En conséquence,  $\phi_w$  ne semble pas adapté pour représenter correctement la géométrie du domaine. La discussion ci-dessus suggère qu'il serait préférable d'utiliser  $\varepsilon_\beta^*$  et les résultats interprétés en fonction de  $\varepsilon_\beta^*$  sur la Fig. 8-9, pour  $l_{int} = 0.75 \text{ cm}$ , confirmer cette hypothèse. La relation à l'échelle de la section pourrait donc être interprété comme suit :

$$K^* = f(\varepsilon_\beta^*) \quad (8.53)$$

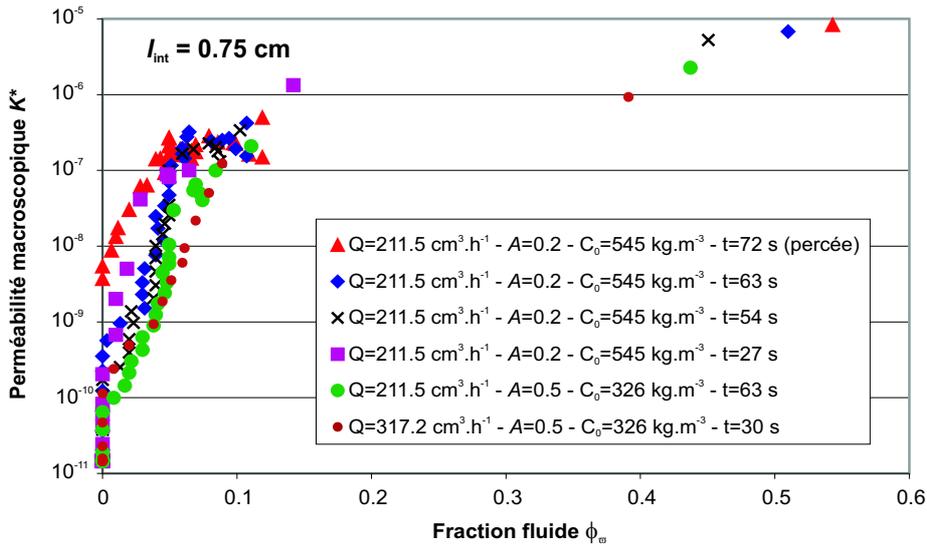


FIG. 8-8 – Evolution de la perméabilité macroscopique  $K^*$  en fonction de la fraction fluide  $\phi_w$  (régime ramifié)

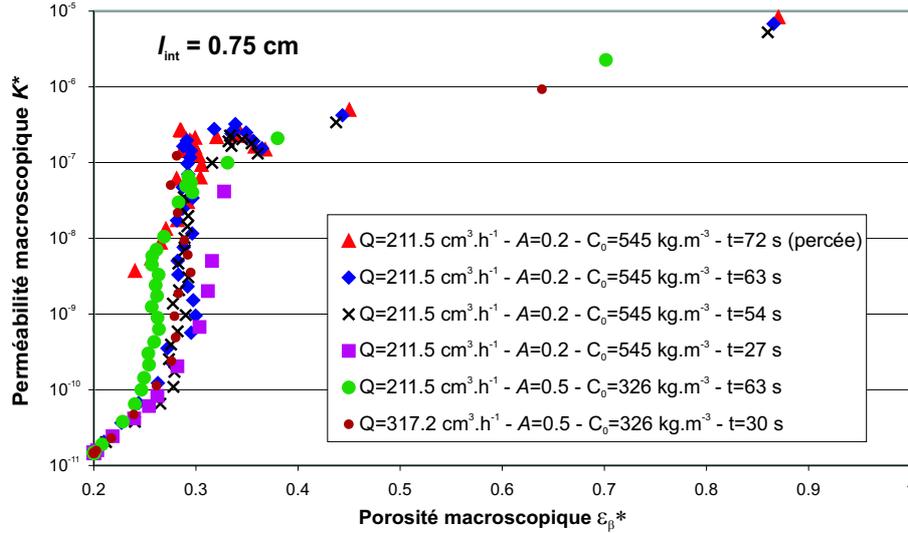


FIG. 8-9 – Evolution de la perméabilité macroscopique  $K^*$  en fonction de la porosité macroscopique  $\varepsilon_{\beta}^*$  (régime ramifié)

L'influence de la longueur  $l_{int}$  sur le calcul de  $K^*$  est là encore négligeable. La Fig. 8-10 confirme que nous pouvons utiliser n'importe quel intervalle d'intégration pourvu qu'il reste strictement inférieur à la longueur du wormhole (ici,  $L_w = 18 \text{ cm}$ ).

### 8.3.2 Expression du coefficient de transfert macroscopique

Le coefficient de transfert de masse à l'échelle de la section  $\alpha^*$  est beaucoup plus difficile à estimer. En se basant sur la relation à l'échelle de Darcy  $\alpha = f(Pe_{cell}, \varepsilon_{\beta})$  et à partir de la forme du problème de fermeture, nous exprimons l'hypothèse que le coefficient  $\alpha^*$  dépend du nombre de Péclet  $Pe$  et de la fraction fluide  $\phi_{\varpi}$  (ou de la porosité macroscopique  $\varepsilon_{\beta}^*$  pour les régimes de dissolution en non-équilibre local). En première approximation, nous considérerons que la dépendance en fonction du Péclet est faible comparée à l'influence de  $\phi_{\varpi}$  (ou  $\varepsilon_{\beta}^*$ ). Nous reviendrons plus tard sur cette hypothèse.

Nous avons représenté Fig. 8-11 l'évolution du coefficient de transfert de masse  $\alpha^*$  en fonction de la porosité macroscopique  $\varepsilon_{\beta}^*$  pour différents temps et différents débits en *régime conique*, *wormholing* et *ramifié*. La première constatation est le fait que la corrélation  $\alpha^* - \phi_{\varpi}$  (resp.  $\alpha^* - \varepsilon_{\beta}^*$ ) n'est pas aussi évidente à obtenir que la relation  $K^* - \phi_{\varpi}$  (resp.  $K^* - \varepsilon_{\beta}^*$ ). Même si le régime conique semble donner à première vue la corrélation la plus précise, on retrouve en réalité le même phénomène d'instationnarité précédemment observé pour la relation  $K^* - \phi_{\varpi}$  en *régime conique*.

À  $\phi_{\varpi} = 0$  (ou  $\varepsilon_{\beta}^* = 0.2$ , porosité initiale du milieu considéré), nous obtenons la valeur du coefficient de transfert de masse à l'échelle de Darcy. Il est évident que la variation du facteur de forme  $A$  dans l'expression du coefficient de transfert de masse  $\alpha$  implique ici une modification directe du paramètre à l'échelle de la section. Quand la fraction fluide (resp. la porosité macroscopique) augmente, le coefficient de transfert macroscopique diminue pour

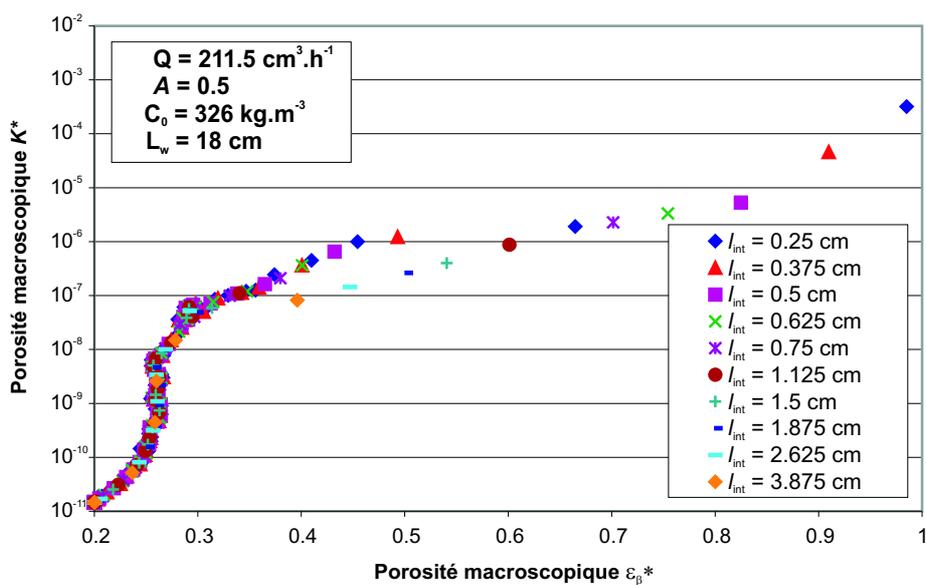


FIG. 8-10 – Influence de la longueur de l'intervalle d'intégration sur la corrélation  $K^* - \varepsilon_\beta^*$  en régime ramifié

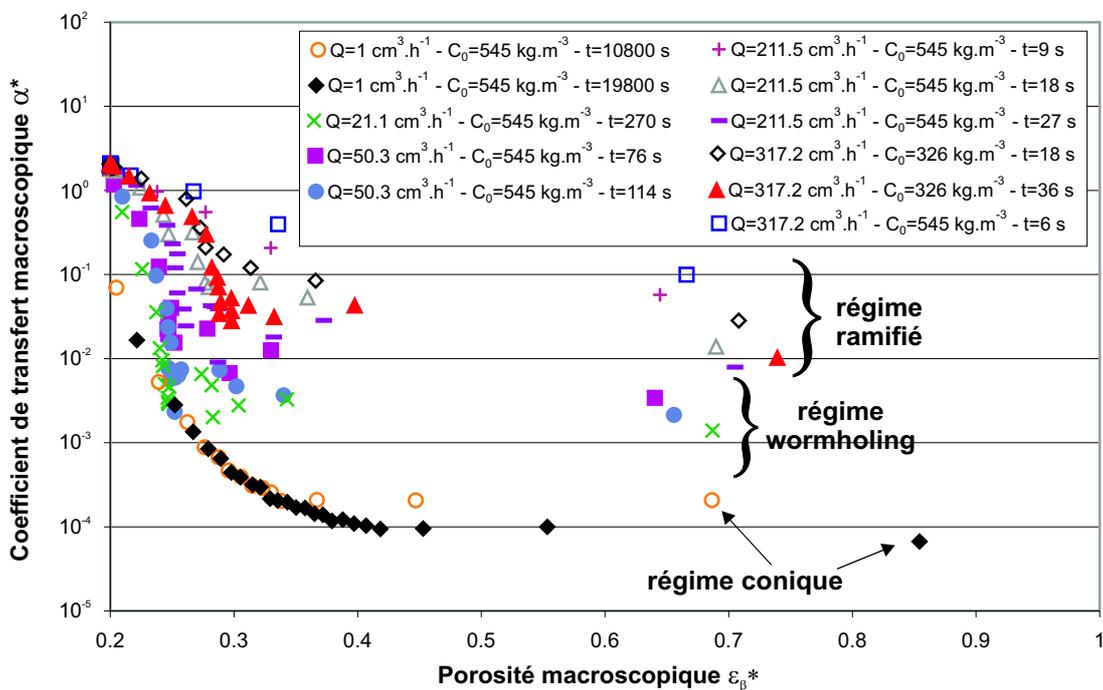


FIG. 8-11 – Variation du coefficient de transfert macroscopique en fonction de la porosité macroscopique  $\varepsilon_\beta^*$

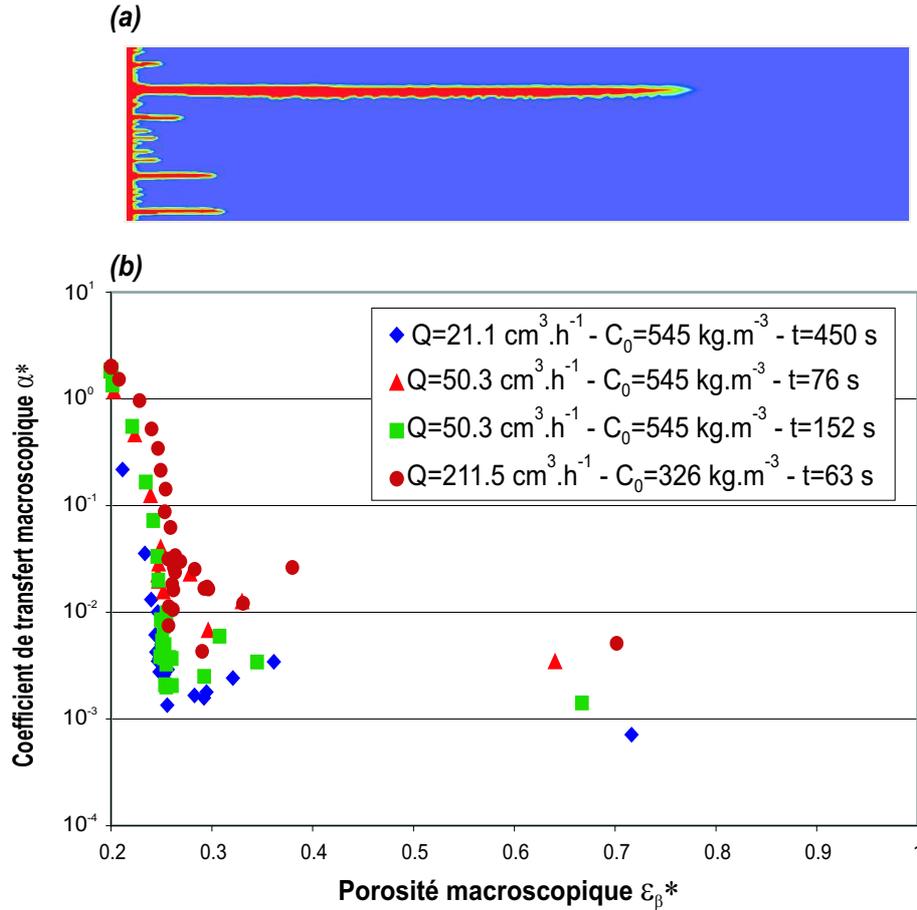


FIG. 8-12 – (a) champ de porosité et (b) corrélation  $\alpha^* - \varepsilon_\beta^*$  en régime de wormholing *avant* élimination des wormholes non dominants

passer par un palier avant de tendre vers 0 quand  $\phi_\varpi \rightarrow 1$  (resp.  $\varepsilon_\beta^* \rightarrow 1$ ). On constate que la valeur de ce palier dépend du régime considéré. En effet, si  $\alpha$  est proportionnel à  $1/l_\beta^2$  où  $l_\beta$  représente la longueur caractéristique à l'échelle du pore (ici  $l_\beta = 300 \mu\text{m}$ ),  $\alpha^*$  est proportionnel à  $1/l_\varpi^2$  où  $l_\varpi$  correspond à la largeur du wormhole. Aussi, comme la largeur du wormhole décroît lorsqu'on passe du régime conique au régime de wormholing et du régime de wormholing au régime ramifié (bien qu'il soit difficile de déterminer précisément une limite au wormhole dans des conditions de non-équilibre local de dissolution), la valeur du paramètre  $\alpha^*$  diminue de la même manière. En conséquence, quand la fraction fluide  $\phi_\varpi$  (resp.  $\varepsilon_\beta^*$ ) augmente, le coefficient de transfert à l'échelle de la section diminue d'un facteur  $(l_\beta/l_\varpi)^2$  par rapport à sa valeur initiale calculée à  $\phi_\varpi = 0$  (resp.  $\varepsilon_\beta^* = 0.2$ ).

L'incertitude autour de la relation pour  $\alpha^*$  soulève une difficulté majeure : comme à l'échelle inférieure, différentes tentatives nous ont confirmé en effet que la vitesse de propagation des wormholes prédite par notre modèle à l'échelle de la section était extrêmement sensible à la valeur de ce coefficient, en particulier dans la zone en bout de wormhole ( $\phi_\varpi < 0.1$ ). En se basant sur l'hypothèse que cette incertitude était liée à la multitude de canaux d'écoulement se développant aux temps courts à l'entrée du domaine, nous avons éliminé des champs de

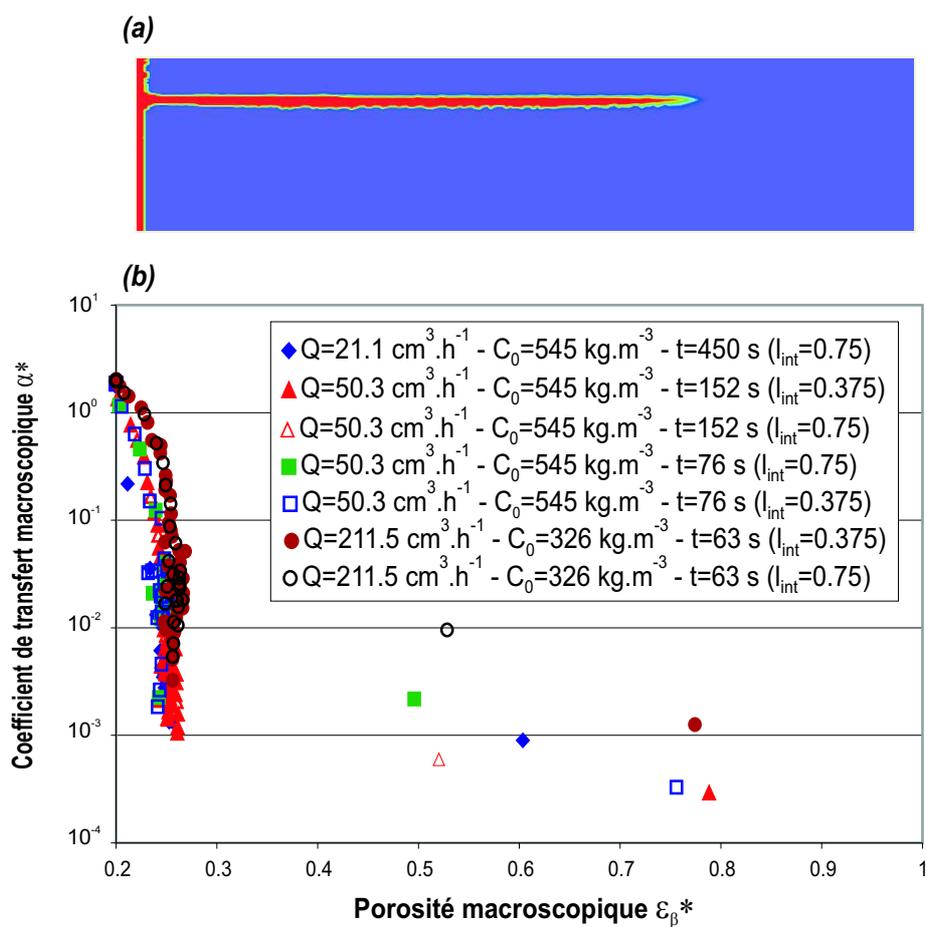
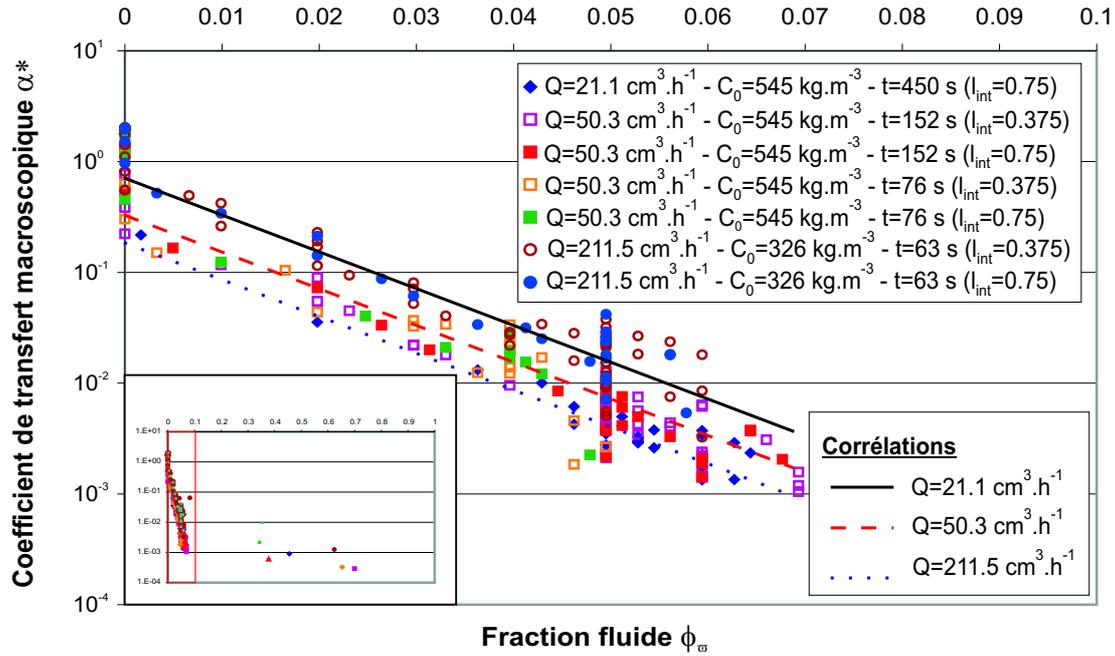


FIG. 8-13 – (a) champ de porosité et (b) corrélation  $\alpha^* - \varepsilon_{\beta}^*$  en régime de wormholing après élimination des wormholes non dominants


 FIG. 8-14 – Détermination des corrélations  $\alpha^* = f(Pe, \phi_w)$ 

porosité et de concentration les wormholes destinés à ne plus se développer en considérant uniquement l'influence du wormhole dominant (*hypothèse du wormhole dominant*). L'utilisation de cette approximation est confirmée par la comparaison des Figs. 8-12 et 8-13. La variation de la longueur de l'intervalle d'intégration joue là encore un rôle négligeable sur la détermination de la corrélation. Un rapprochement intéressant peut être effectué entre cette hypothèse et la condition de quasi-stationnarité souvent utilisée dans la résolution des problèmes de fermeture. En faisant cette hypothèse on élimine les effets non-locaux en temps et en espace. De la même manière, négliger ces wormholes revient à négliger les variations spatio-temporelles des déviations et, dans ce cas, le développement proposé n'est valable en théorie que pour des temps longs et à une certaine distance de l'entrée du domaine.

D'autre part, un zoom autour de la zone où le coefficient de transfert décroît rapidement, et qui renferme l'essentiel de la physique de dissolution, illustré sur la Fig. 8-14, permet de mettre en évidence une dépendance non négligeable du coefficient  $\alpha^*$  vis à vis de la vitesse d'injection, c'est-à-dire du Péclet. Il a donc été nécessaire de tenir compte à la fois de la fraction fluide (ou de la porosité  $\varepsilon_\beta^*$ ) et du nombre de Péclet d'injection dans l'écriture de nos corrélations pour le coefficient de transfert à l'échelle de la section. Au final, nous obtenons de cette manière des corrélations pour  $\alpha^*$  dépendant de  $\varepsilon_\beta^*$  de manière exponentielle (représentation en log-normale sur la Fig. 8-14) et dont l'amplitude varie en fonction du Péclet d'injection.

Plusieurs résultats importants peuvent être tirés du développement de ces corrélations :

- *En régime conique*, les coefficients effectifs ne peuvent être dissociés de l'historique de dissolution.
- L'expression du coefficient de transfert de masse, même en tenant compte d'hypothèses

simplificatrices, reste difficile à estimer numériquement, ce qui représente un obstacle majeur dans le développement d'un modèle macroscopique à l'échelle de la section.

- Les corrélations obtenues sont *indépendantes* de la longueur de l'intervalle d'intégration  $l_{int}$ .

## 8.4 Validation du modèle en 1D

A partir des systèmes d'équations obtenus précédemment et des corrélations du coefficient de transfert de masse et de perméabilité fournies par les simulations numériques à l'échelle de Darcy, deux modèles 1D homogénéisés ont pu être développés afin de juger de la validité d'une telle représentation. Le *modèle simple-milieu ou à 1 équation à non-équilibre local* correspond au couplage des équations macroscopiques de Darcy, Eqs. (8.3) et (8.9), pour la partie écoulement avec les équations de transport et dissolution du § 8.2.2, Eqs. (8.45) et (8.46). Le développement du *modèle double-milieu ou à 2 équations à équilibre local*, basé sur les équations de transport-réaction présentées au § 8.2.1, Eqs. (8.20) et (8.21), va nécessiter l'introduction d'une hypothèse supplémentaire. En effet, ce modèle nécessite en théorie la détermination des vitesses moyennes régionales  $\mathbf{V}_\varpi^*$  et  $\mathbf{V}_\eta^*$ , c'est-à-dire la résolution des équations macroscopiques de Darcy propres à chacune des régions :

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_\varpi^* = 0 \quad (8.54)$$

$$\mathbf{V}_\varpi^* = -\frac{1}{\mu} \mathbf{K}_\varpi^* \cdot (\nabla P_\varpi^* - \rho_\beta \mathbf{g}) \quad \text{dans la région } \varpi \quad (8.55)$$

et

$$\nabla \cdot \mathbf{V}_\eta^* = 0 \quad (8.56)$$

$$\mathbf{V}_\eta^* = -\frac{1}{\mu} \mathbf{K}_\eta^* \cdot (\nabla P_\eta^* - \rho_\beta \mathbf{g}) \quad \text{dans la région } \eta \quad (8.57)$$

où  $\mathbf{K}_\varpi^*$  et  $\mathbf{K}_\eta^*$  représentent les tenseurs de perméabilité effective régionales (Quintard & Whitaker 1998). Or ces deux vitesses moyennes sont reliées par la relation suivante :

$$\mathbf{V}_\beta^* = \mathbf{V}_\varpi^* + \mathbf{V}_\eta^* \quad (8.58)$$

$$= \phi_\varpi \mathbf{U}_\varpi^* + (1 - \phi_\varpi) \mathbf{U}_\eta^* \quad (8.59)$$

Compte tenu du fait que la vitesse moyenne intrinsèque dans le milieu poreux  $\mathbf{U}_\eta^*$  est négligeable devant la vitesse dans la région fluide, on peut considérer que

$$\mathbf{V}_\beta^* \approx \mathbf{V}_\varpi^* \quad (8.60)$$

ce qui nous permet d'utiliser les Eq. (8.3) et (8.9) pour la partie écoulement de notre problème. Cette approximation ne soulève de difficultés que pour de faibles valeurs de  $\phi_\varpi$ , lorsque le wormhole ne s'est pas encore développé.

<b>Injection à Débit Constant</b>	
201 x 101 noeuds	$A = 0.5$
$\rho_\sigma = 2160 \text{ kg.m}^{-3}$	$\mu = 1.10^{-3} \text{ Pa.s}$
$\varepsilon_\beta^* = 0.2$ (ou $\phi_\omega = 10^{-4}$ )	$\beta = 1.62$
$D_\beta = 2.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$	$K^* = 1.5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$

TAB. 8.1 – Données numériques

Nous allons maintenant pouvoir juger de la capacité de nos deux modèles à représenter la dissolution à l'échelle de la section. Pour cela, nous allons comparer les prédictions fournies par nos modèles macroscopiques avec les simulations plus fines réalisées à l'échelle inférieure. Le tenseur de dispersion à l'échelle de la section,  $\mathbf{D}_\beta^{**}$ , qui apparaît dans les équations de transport, n'ayant pas été calculé, il a été pris égal à  $\phi_\omega D$  (ou  $\varepsilon_\beta^* D$  en non-équilibre local) dans nos simulations. Cette hypothèse a une faible influence sur le temps de propagation car nous nous sommes concentrés ici sur les régimes *wormholing* et *ramifié*, pour lesquels le nombre de Péclet est relativement important. Les calculs à l'échelle de Darcy, qui serviront de simulations de référence, sont obtenus à partir du modèle présenté dans la première partie de cette thèse et les caractéristiques locales du milieu poreux étudié correspondent à celles utilisées dans le § 6.2.3 (cf. tableau 6.4). A partir de ces paramètres sont obtenues les caractéristiques de notre milieu à l'échelle de la section, rassemblées dans le tableau 8.1, et qui serviront de données à nos simulations. Les corrélations utilisées pour le coefficient de transfert de masse  $\alpha^*$  et la perméabilité effective  $K^*$  sont obtenues à partir des études développées dans les chapitres précédents.

La comparaison des résultats de notre modèle à une équation avec le modèle à l'échelle de Darcy pour le débit  $Q = 50 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$  (débit optimum) avec  $C_0 = 545 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $Q = 211.5 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$  (régime ramifié) avec  $C_0 = 326 \text{ kg.m}^{-3}$  est présentée respectivement Figs. 8-15 et 8-16. Il faut souligner que le choix du critère d'arrêt du wormhole est ici un paramètre déterminant : il a été fixé à  $\varepsilon_\beta^* = 0.25$  à partir de l'observation des champs de porosité. Les résultats sont cependant peu représentatifs. Le modèle à l'équation ne réussit pas à reproduire la vitesse de propagation du wormhole pour l'un ou l'autre des régimes et surestime le temps de percée.

Les simulations réalisées à partir du modèle à deux équations et la comparaison avec les résultats obtenus à l'échelle de Darcy pour  $Q = 21 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg.m}^{-3}$ , et pour  $Q = 50 \text{ cm}^3.\text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg.m}^{-3}$  ou  $C_0 = 326 \text{ kg.m}^{-3}$  sont rassemblées Figs. 8-17, 8-18 et 8-19. La valeur initiale de  $\phi_\omega$  à  $t = 0 \text{ s}$ , théoriquement égale à 0, est fixée à  $10^{-4}$  (valeur très faible mais non nulle) pour des raisons numériques. Le choix du critère d'arrêt du wormhole est estimé à  $\phi_\omega = 10^{-2}$ . Les résultats semblent beaucoup plus prometteurs : on prédit correctement la vitesse de propagation des wormholes (même coefficient de pente) à l'exception des temps courts où le temps de propagation est sous-estimé. Cette déviation s'explique par la non-prise en compte du phénomène de concurrence des wormholes dans le calcul de  $\alpha^*$  ("*hypothèse du wormhole dominant*") et souligne la difficulté à exprimer ce coefficient indépendamment de l'historique. La comparaison des champs de fraction fluide obtenus directement à l'aide du modèle à l'échelle de la section ou par intégration spatiale des champs de porosité à l'échelle

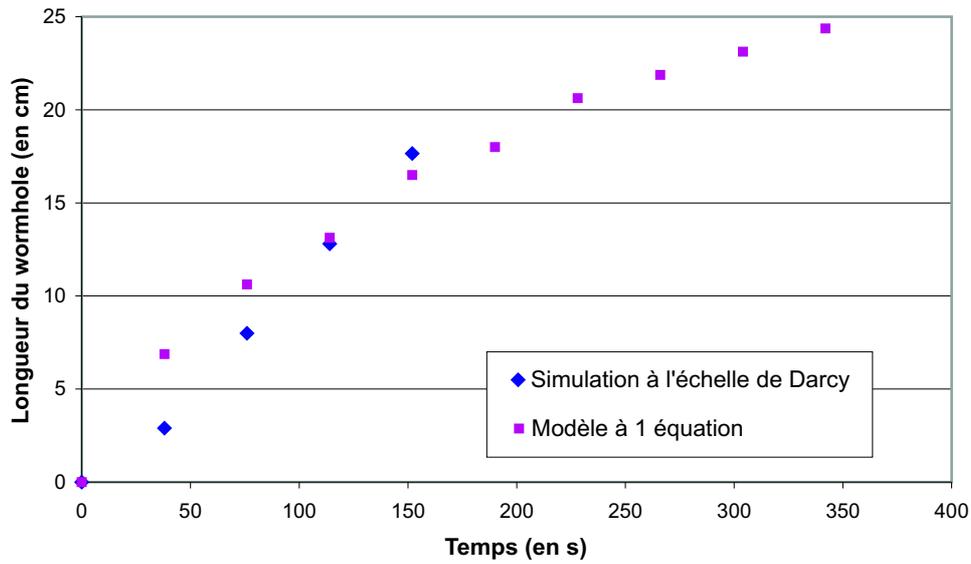


FIG. 8-15 – Comparaison du modèle à l'échelle de Darcy et du modèle à 1 équation pour  $Q = 50 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

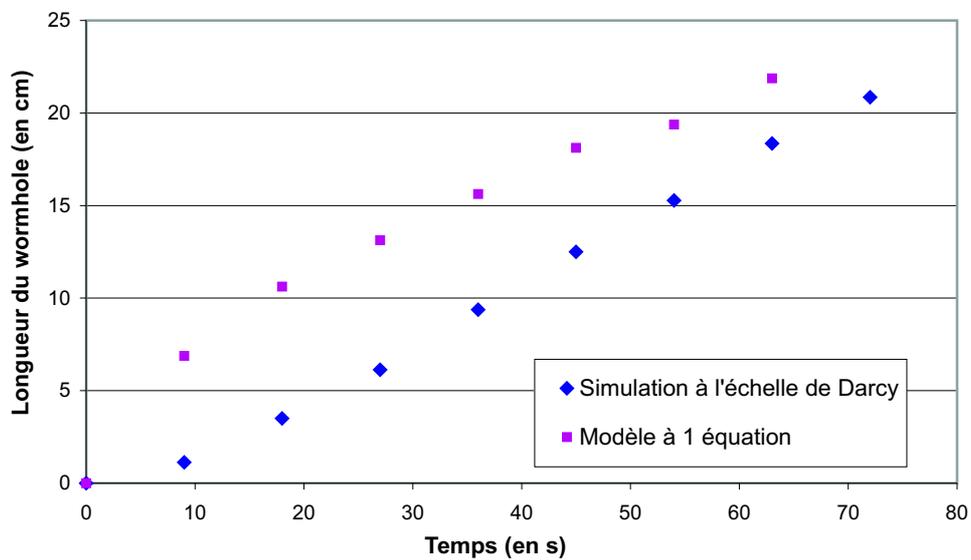


FIG. 8-16 – Comparaison du modèle à l'échelle de Darcy et du modèle à 1 équation pour  $Q = 211.5 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 326 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

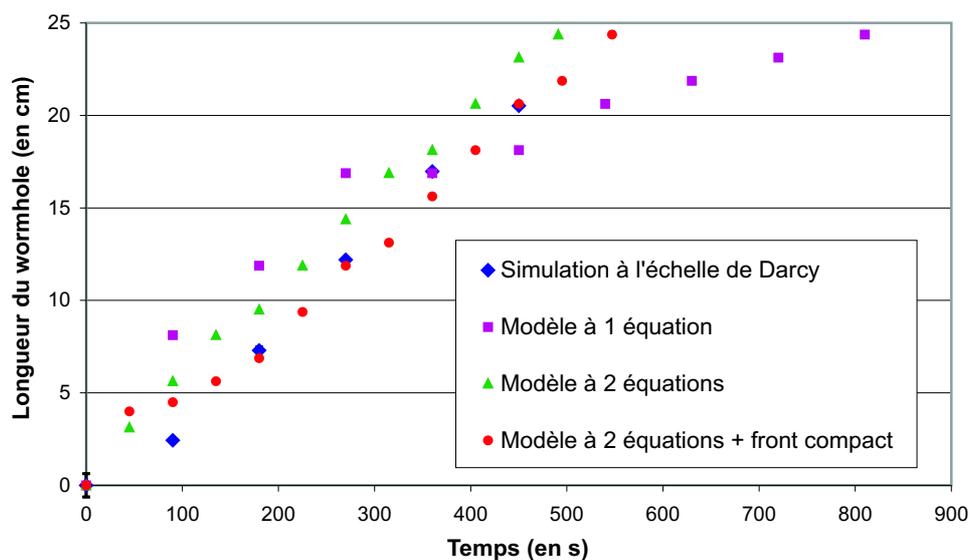


FIG. 8-17 – Comparaison du modèle à l'échelle de Darcy et du modèle à 2 équations pour  $Q = 21 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

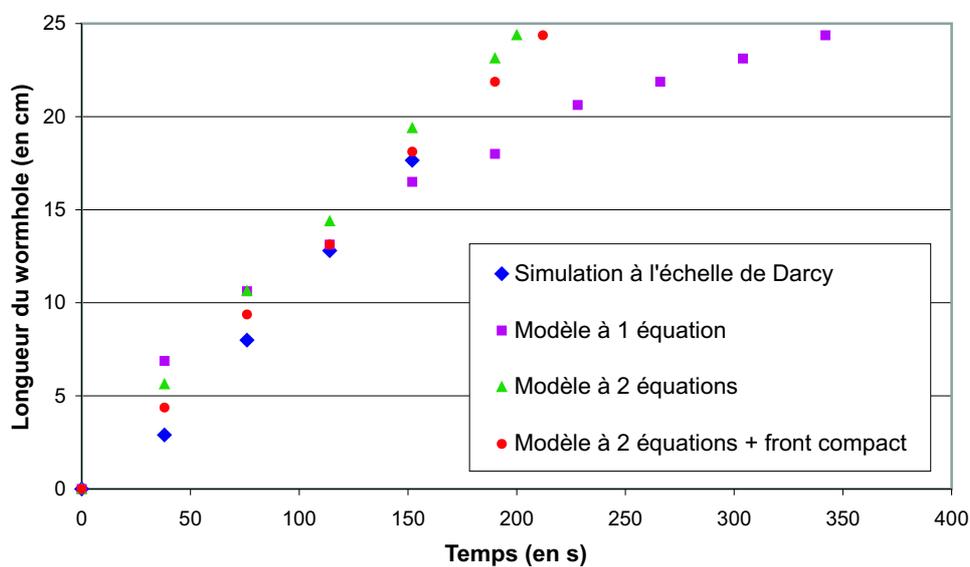


FIG. 8-18 – Comparaison du modèle à l'échelle de Darcy et du modèle à 2 équations pour  $Q = 50 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

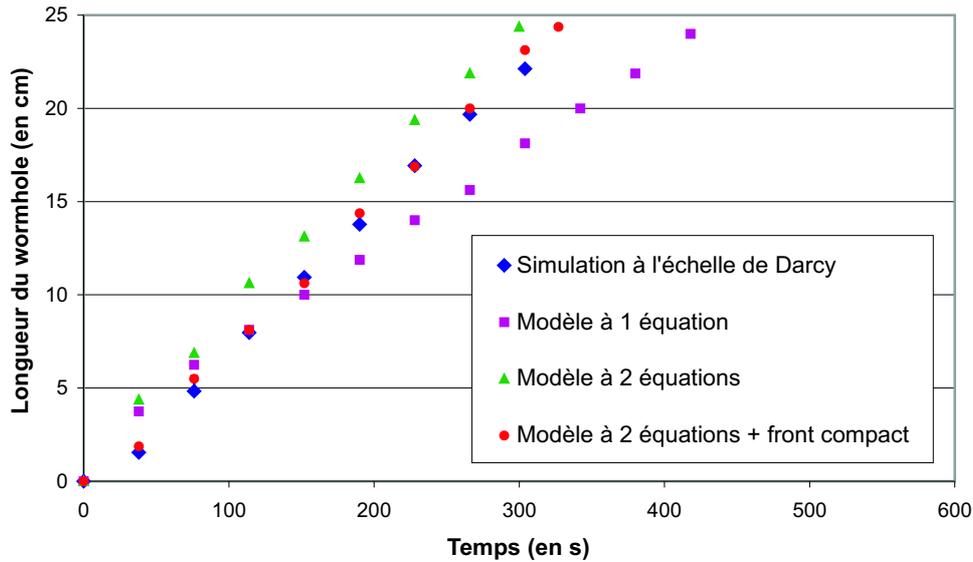


FIG. 8-19 – Comparaison du modèle à l'échelle de Darcy et du modèle à 2 équations pour  $Q = 50 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 326 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

de Darcy confirment cette hypothèse. On voit bien sur la Fig. 8-20, que la valeur de  $\phi_w$  est correctement prédite excepté à l'entrée du domaine poreux où elle est largement sous-estimée car le modèle à l'échelle de la section ne tient pas compte de la multitude de wormholes qui se développent sur quelques centimètres. Il faut souligner d'autre part que les corrélations utilisées dans les conditions des Figs. 8-18 et 8-19, où seule la concentration change, sont identiques, ce qui confirme que les coefficients effectifs sont peu sensibles aux variations du  $N_{ac}$ .

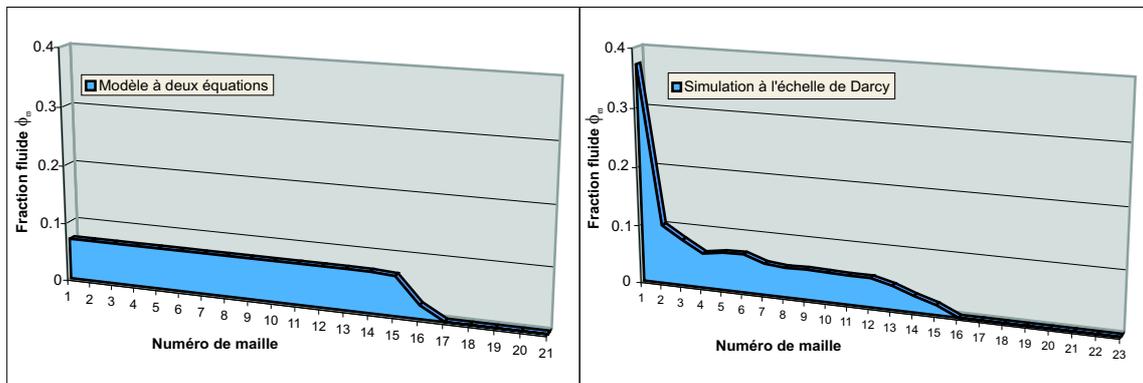


FIG. 8-20 – Comparaison des valeurs de fraction fluide prédites par le modèle à 2 équations et le modèle de Darcy pour  $Q = 50 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  à  $t = 152 \text{ s}$

Ces premiers résultats nous laissent donc pressentir qu'il est impossible de s'affranchir complètement des effets non-locaux et qu'une corrélation *unique* pour le coefficient de transfert macroscopique, *indépendante de  $x$  et de  $t$* , ne permet pas de retranscrire totalement les mécanismes de dissolution à l'échelle de la section. Plusieurs approches peuvent être proposées

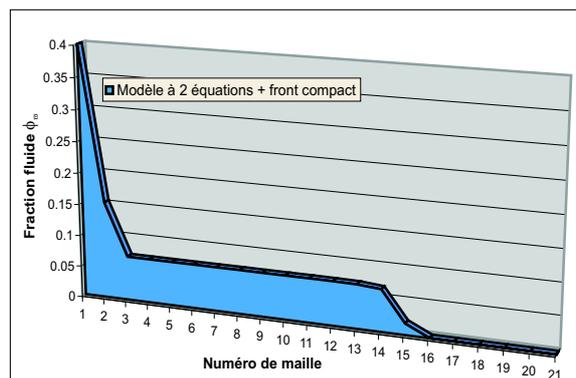


FIG. 8-21 – Valeurs de fraction fluide prédites par le modèle à 2 équations à front compact pour  $Q = 50 \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et  $C_0 = 545 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  à  $t = 152 \text{ s}$

pour modéliser ce comportement et corriger les erreurs induites par une telle représentation : (i) prise en compte des effets temporels par l'introduction d'une corrélation différente pour  $\alpha^*$  aux temps courts tel que  $\alpha^* = \alpha_{compact}^* = c^{te}$  pour  $t \leq t_0$ , (ii) prise en compte des effets spatiaux par l'introduction d'une corrélation différente pour  $\alpha^*$  à l'entrée du domaine tel que  $\alpha^* = \alpha_{compact}^* = c^{te}$  pour  $x \leq x_0$ . Nous avons opté ici, à partir de l'observation des valeurs de fraction fluide, pour une "approche mixte" en prenant une corrélation différente pour  $\alpha^*$  tant que le milieu poreux en entrée n'est pas suffisamment dissout, soit  $\alpha^* = \alpha_{compact}^* = c^{te}$  pour  $\phi_{\omega}^{entrée} \leq \phi_0$ . La variable  $\alpha_{compact}^*$  devient alors un paramètre de calage du modèle. Les résultats de l'introduction de ce modèle compact de dissolution en entrée sont donnés par la courbe ● pour les Figs. 8-17, 8-18 et 8-19 et l'influence sur le champ de fraction fluide est présentée Fig. 8-21.

Ces différents résultats nous confortent dans l'idée que le système étudié doit être traité comme un domaine à double milieu, qui nécessite pour chaque région une description adaptée si l'on désire reproduire correctement le phénomène de dissolution à l'échelle de la section.

## 8.5 Conclusions

Un modèle de transport-réaction à l'échelle de la section a été présenté dans cette seconde partie. Il ne faut pas considérer cette étude comme un aboutissement aux efforts entrepris dans le développement d'une description précise de la dissolution à l'échelle de la section mais plutôt comme une ébauche de réponse aux questions soulevées par une telle représentation.

Si nous ne prétendons pas avoir fourni un ou des modèles définitifs, nous pensons néanmoins avoir apporté notre contribution à la discussion sur leur possible mise en place. Plusieurs résultats importants peuvent être tirés de cette démarche :

- Si la forme de l'équation macroscopique de transport-réaction reste encore imprécise, un modèle à deux équations semble la meilleure approche du moins dans l'hypothèse d'un équilibre local de dissolution. Dans le cas du non-équilibre local, le débat reste ouvert. On peut même se demander si une représentation "homogénéisée" suffisamment précise

---

est possible dans ces conditions.

- Les coefficients effectifs qui apparaissent dans ces équations sont très complexes à estimer, et ce, pour deux raisons essentielles :
  - Si on s’appuie sur les problèmes de fermeture suggérés pour estimer ces coefficients, leur solution est fortement liée au choix de la géométrie de la cellule unitaire à l’échelle de Darcy. Or, à cette échelle, la géométrie des wormholes peut être très complexe et varie avec le temps de manière non uniforme ce qui rend très imprécise une telle estimation.
  - Ces propriétés effectives, en particulier le coefficient de transfert de masse, restent de toute manière en partie liées à l’historique de dissolution.

Si ce type de modélisation semble donc représenter une avancée intéressante, comme nous l’avons vu, beaucoup de travail reste à accomplir, spécialement en ce qui concerne le coefficient de transfert de masse  $\alpha^*$ . En effet, comme à l’échelle de Darcy, ce coefficient contrôle de manière prépondérante le mode de propagation des wormholes et sa détermination est d’une importance capitale. L’influence des nombres adimensionnels caractéristiques tels que le nombre de Darcy  $N_D$  et le rapport de forme  $F$  n’ont même pas pu être examinés. A l’heure actuelle, il faut admettre qu’une corrélation différente est nécessaire si l’on modifie les conditions expérimentales. Afin d’affiner ces corrélations, il serait donc intéressant d’essayer de les estimer par des approches différentes : soit de manière expérimentale, soit en résolvant les problèmes de fermeture sur des cellules unitaires suffisamment complexes dont la géométrie pourrait être générée à l’aide des figures de dissolution réalisées à l’échelle de Darcy.



Troisième partie

## Conclusions et Perspectives



# Conclusions et perspectives

Dans ce travail nous nous sommes intéressés à l'étude du problème de dissolution d'un milieu poreux. Si les mécanismes physiques à l'échelle microscopique sont bien connus, la représentation macroscopique de ce phénomène reste encore à explorer. L'objectif de cette étude a été de développer une telle modélisation macroscopique aux différentes échelles d'observation et de déterminer les propriétés physiques associées.

A l'échelle de Darcy, nous avons développé un modèle tri-dimensionnel complet de transport-réaction en se basant sur les méthodes de prise de moyenne volumique. Moyennant un certain nombre d'hypothèses et de simplifications, il est possible d'obtenir un modèle à deux équations, qui peut être vu comme une généralisation des modèles rencontrés en génie chimique établis empiriquement. Un des avantages majeurs de la technique employée ici, est le lien entre les échelles générées par les problèmes de fermeture. A travers une définition locale de la géométrie sur une cellule unitaire représentative du milieu étudié, ces problèmes permettent d'estimer explicitement les propriétés effectives telles que le tenseur de dispersion ou le coefficient de transfert de masse.

Ce modèle constitue une approche originale pour deux raisons. D'une part, il utilise une équation de Darcy-Brinkman pour la résolution de l'écoulement de manière à décrire de manière continue les champs de vitesse et de pression dans les deux régions : zone fluide et milieu poreux. D'autre part, le développement des équations macroscopiques de transport-réaction vérifie les conditions de non-équilibre local ce qui permet de représenter via le coefficient de transfert l'ensemble des régimes de dissolution. Des méthodes numériques originales et précises ont été mises en place pour la résolution de ces systèmes d'équations.

Des simulations sur des configurations 2D et 3D pour des milieux aussi bien homogènes qu'hétérogènes ont été réalisées ce qui constitue une réelle avancée dans le domaine. Elles ont permis de reproduire les régimes de dissolution observés expérimentalement et d'étudier sous un angle nouveau les théories développées dans la littérature. Notre modèle à l'échelle de Darcy offre en conséquence un outil très intéressant pour comprendre les mécanismes physiques mis en jeu et prédire la propagation des wormholes de manière quantitative. Il peut être utilisé pour étudier les effets de nombreux paramètres externes, tels que la variation de température ou de concentration, ou l'influence de la nature du réactif. On pourrait par exemple s'intéresser aux émulsions acides, qui entraînent une diminution des effets diffusifs. Un tel modèle peut aussi être utilisé pour obtenir des informations sur des questions complexes, comme la forme des faciès de dissolution pour des milieux de grande dimension, qui sont difficiles à étudier avec des modèles

---

purement microscopiques. Ces informations pourraient s'avérer d'une grande utilité dans la compréhension de l'évolution instationnaire des mécanismes instables de dissolution autour des puits par exemple, ou dans un milieu semi-infini. Enfin, un modèle à l'échelle de Darcy présente une forme mathématique plus simple, plus appropriée pour des études de stabilité, et qui, à leur tour, pourront fournir des informations intéressantes.

A l'échelle de la section, plusieurs approches ont été explorées en se basant, par analogie, sur le modèle macroscopique réalisé à l'échelle inférieure. On a ainsi pu tester les modèles simple-milieu, où le milieu considéré incorpore à la fois la physique du wormhole et la matrice poreuse environnante, et les modèles double-milieu pour lesquels les wormholes sont traités séparément. Dans les deux cas, les corrélations employées pour l'expression des coefficients effectifs ont été tirées directement de l'observation des simulations numériques à l'échelle de Darcy et non pas de la résolution de problèmes de fermeture.

De nombreuses questions restent ici encore en suspens aussi bien sur la forme macroscopique des équations que sur les corrélations utilisées pour les coefficients effectifs. Néanmoins, quelques indices probants laissent à penser qu'un modèle double-milieu est le meilleur candidat pour décrire le comportement physique du système. D'autre part, les coefficients effectifs ne peuvent être totalement découplés, semble-t-il, des effets non-locaux spatiaux et temporels et l'expression de leur corrélation reste donc fonction de  $x$  et de  $t$ .

Les résultats sont cependant très encourageants et une bonne estimation du coefficient de transfert macroscopique  $\alpha^*$  permet de reproduire correctement la propagation du wormhole dans le domaine. Les études préliminaires présentées ici nécessiteraient toutefois d'être poursuivies en faisant varier les différents nombres adimensionnels et en augmentant le nombre de simulation de manière à obtenir des corrélations, pour  $\alpha^*$  en particulier, ayant un caractère plus général. Il serait intéressant aussi d'approfondir les recherches théoriques dans le développement d'un modèle macroscopique dans les *conditions de non-équilibre local*.

Il reste maintenant à exploiter ces résultats à l'échelle du réservoir. L'introduction d'un changement d'échelle supplémentaire permettant la description du phénomène de *wormholing* à l'échelle de la maille du réservoir semble difficilement envisageable. Il est donc préférable d'utiliser notre modèle macroscopique à l'échelle de la section sous la forme d'un simulateur "near-well-bore" couplé à un modèle classique de réservoir. Pour être plus précis, les résultats de notre modèle pourraient servir à calculer le coefficient de *skin effect*, que l'on traduira dans le modèle de réservoir par un facteur modifiant l'expression du transfert puits/réservoir, de façon à prendre en compte les conditions réelles au voisinage du puits durant l'acidification.

Dans ce but, la première étape, essentielle, est de vérifier les capacités prédictives de notre modèle à l'échelle de la section en se basant uniquement sur les données accessibles à partir de procédés expérimentaux, c'est-à-dire le champ de porosité ou de fraction fluide qui peut être déterminé à l'aide de méthode scanner. L'objectif est de déterminer les corrélations pour les coefficients effectifs à l'aide de méthodes inverses et donc de caler le modèle macroscopique en se basant uniquement sur les données expérimentales exploitables.

Quatrième partie

**Nomenclature, Annexes et  
Bibliographie**



# Nomenclature

## Lettre romaines

- $A$  facteur de forme du coefficient de transfert  $\alpha$ .
- $A_{\beta\sigma}$  interface entre les régions  $\beta$  et  $\sigma$ ,  $\text{m}^2$ .
- $A_{\varpi\eta}$  interface entre les régions  $\varpi$  et  $\eta$ ,  $\text{m}^2$ .
- $\mathbf{b}$  vecteur de fermeture qui détermine  $\tilde{P}_\beta$  en fonction de  $(\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g})$ .
- $\mathbf{B}$  vecteur de fermeture qui relie  $\mathbf{V}_\beta^*$  à  $(\nabla P_\beta^* - \rho_\beta \mathbf{g})$ .
- $\mathbf{b}_\beta$  vecteur de fermeture qui détermine  $\tilde{c}_{A\beta}$  en fonction de  $\nabla C_{A\beta}^*$ .
- $\mathbf{b}_\varpi$  vecteur de fermeture qui détermine  $\tilde{C}_{A\varpi}$  en fonction de  $\nabla C_{A\varpi}$ .
- $c_{i\beta}$  concentration massique de l'espèce  $i$  dans la phase  $\beta$ ,  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $\tilde{c}_{i\beta}$  déviation spatiale de la concentration massique de l'espèce  $i$ ,  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $C_{i\beta}$  moyenne volumique intrinsèque de concentration de l'espèce  $i$  dans la phase  $\beta$ ,  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $C_0$  moyenne volumique intrinsèque de concentration acide imposée en entrée,  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $C_{Aj}^*$  moyenne volumique intrinsèque à l'échelle de la section de la concentration acide dans la région  $j$  ( $j = \varpi, \eta$ ),  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $\tilde{C}_{Aj}$  déviation spatiale de la concentration moyenne de l'acide dans la région  $j$  ( $j = \varpi, \eta$ ),  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $C_{A\beta}^*$  moyenne volumique intrinsèque de la concentration acide à l'échelle de la section,  $\text{kg.m}^{-3}$ .
- $\mathbf{d}_\beta$  coefficient à l'échelle de Darcy assimilable à une vitesse,  $\text{m.s}^{-1}$ .
- $D$  coefficient de diffusion moléculaire,  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ .
- $\mathbf{D}_\beta^*$  tenseur de dispersion dans la phase  $\beta$ ,  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ .
- $\mathbf{D}_\beta^{**}$  tenseur de dispersion à l'échelle de la section dans la phase  $\beta$ ,  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ .
- $D_a$  nombre adimensionnel de Damköhler.
- $F$  nombre adimensionnel de rapport de forme.
- $Fr$  nombre adimensionnel de Froude.
- $\mathbf{K}$  tenseur de perméabilité du milieu poreux,  $\text{m}^2$ .
- $\mathbf{K}^*$  tenseur de perméabilité effective à l'échelle de la section,  $\text{m}^2$ .
- $\mathbf{K}_\eta^*$  tenseur de perméabilité effective à l'échelle de la section pour la région  $\eta$ ,  $\text{m}^2$ .
- $\mathbf{K}_\varpi^*$  tenseur de perméabilité effective à l'échelle de la section pour la région  $\varpi$ ,  $\text{m}^2$ .

$Ki$	nombre cinétique.
$l_\beta$	longueur de référence de la cellule unitaire périodique, m.
$l_\eta$	longueur caractéristique à l'échelle locale associée à la région $\eta$ , m.
$l_\varpi$	longueur caractéristique à l'échelle locale associée à la région $\varpi$ , m.
$l_{int}$	longueur de l'intervalle d'intégration à l'échelle de la section, m.
$L$	longueur de la carotte rocheuse, m.
$L_\varpi$	longueur du wormhole, m.
$\mathbf{n}_{\beta\sigma}$	vecteur normal à l'interface $A_{\beta\sigma}$ .
$N_{ac}$	nombre adimensionnel de pouvoir acide.
$N_D$	nombre adimensionnel de Darcy.
$p_\beta$	pression dans la phase $\beta$ , Pa.
$P_\beta$	moyenne volumique intrinsèque de la pression dans la phase $\beta$ , Pa.
$\tilde{P}_\beta$	déviations spatiales de la pression moyenne à l'échelle de la section, Pa.
$P_\beta^*$	moyenne volumique de la pression à l'échelle de la section, Pa.
$P_\eta^*$	moyenne volumique de la pression à l'échelle de la section pour la région $\eta$ , Pa.
$P_\varpi^*$	moyenne volumique de la pression à l'échelle de la section pour la région $\varpi$ , Pa.
$Pe$	nombre adimensionnel de Péclet.
$Q$	débit d'injection, en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .
$Re$	nombre adimensionnel de Reynolds.
$\mathbf{s}_\beta$	vecteur de fermeture qui détermine $\tilde{c}_{A\beta}$ en fonction de $C_{A\beta}$ .
$\mathbf{s}_\varpi$	vecteur de fermeture qui détermine $\tilde{C}_{A\varpi}$ en fonction de $C_{A\varpi}$ .
$t$	temps, s
$t_{conv}$	temps caractéristique de convection, s.
$t_{diff}$	temps caractéristique de diffusion, s.
$t_\alpha$	temps caractéristique de transfert de masse, s.
$\mathbf{u}_\beta$	coefficient à l'échelle de Darcy assimilable à une vitesse, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\mathbf{v}_{A\beta}$	vitesse de l'espèce acide dans la phase $\beta$ , en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\mathbf{v}_\beta$	vitesse de la phase $\beta$ à l'échelle du pore, en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\tilde{\mathbf{v}}_\beta$	déviations spatiales de la vitesse de filtration, en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$V$	volume élémentaire de référence à l'échelle du pore, en $\text{m}^3$ .
$V_{\beta-phase}$	volume de la phase fluide $\beta$ à l'échelle du pore, en $\text{m}^3$ .
$V_{BT}$	volume de pore à injecter pour percer la carotte rocheuse, en $\text{m}^3$ .
$V_d$	volume élémentaire de référence à l'échelle de Darcy, en $\text{m}^3$ .
$V/V_P$	volume de pore injecté.
$\mathbf{V}_\beta$	vitesse moyenne de filtration à l'échelle de Darcy, en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\mathbf{V}_0$	vitesse moyenne de filtration imposée en entrée, en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\mathbf{V}_\beta^*$	vitesse moyenne de filtration à l'échelle de la section, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\mathbf{V}_j^*$	vitesse régionale de filtration à l'échelle de la section dans la région $j$ , $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\tilde{\mathbf{V}}_\beta$	déviations spatiales de la vitesse moyenne de filtration, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .
$\mathbf{w}$	vitesse de déplacement de l'interface, en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

---

*Variables grecques*

$\alpha$	coefficient macroscopique de transfert de masse, $s^{-1}$ .
$\alpha^*$	coefficient de transfert de masse, $s^{-1}$ .
$\alpha_L$	Dispersivité longitudinale à l'échelle locale, m.
$\alpha_T$	Dispersivité transversale à l'échelle locale, m.
$\beta$	coefficient stoechiométrique de la réaction, kg/kg.
$\varepsilon_\beta$	porosité du milieu poreux.
$\varepsilon_\beta^*$	porosité macroscopique du milieu poreux.
$\mu$	viscosité dynamique du fluide, Pa.s.
$\rho_\beta$	masse volumique de l'eau, $kg.m^{-3}$
$\rho_\sigma$	masse volumique de la roche, $kg.m^{-3}$
$\phi_\varpi$	Fraction fluide du wormhole.

*Indices*

$A$	indice faisant référence à l'espèce acide.
$B$	indice faisant référence à l'espèce aqueuse.
$\beta$	indice faisant référence à la phase fluide.
$\sigma$	indice faisant référence à la phase solide.
$\varpi$	indice faisant référence à la région wormhole.
$\eta$	indice faisant référence à la région poreuse.



## Annexe A

# Corrélations pour les coefficients effectifs

Dans cette annexe sont rassemblées les corrélations utilisées à l'échelle de Darcy pour les coefficients effectifs : le coefficient de transfert de masse  $\alpha$  (tableau A.1) et les dispersivités  $\alpha_L$  et  $\alpha_T$  pour le tenseur de dispersion  $\mathbf{D}_\beta^*$  (tableau A.2).

	<b>A</b>	<b>B</b>	<b>n</b>
$\varepsilon_\beta = 0.1507$	238.02	0.92762	0.48589
$\varepsilon_\beta = 0.2891$	115.03	0.65943	0.5712
$\varepsilon_\beta = 0.3537$	87.563	0.60319	0.58589
$\varepsilon_\beta = 0.4152$	69.055	0.55323	0.59685
$\varepsilon_\beta = 0.5290$	46.022	0.45151	0.61792
$\varepsilon_\beta = 0.6305$	32.456	0.36836	0.63368
$\varepsilon_\beta = 0.7597$	20.33	0.25891	0.65447
$\varepsilon_\beta = 0.8304$	15.086	0.21066	0.66087
$\varepsilon_\beta = 0.9135$	9.6934	0.1147	0.71095

TAB. A.1 – Paramètres d'interpolation du coefficient de transfert

	$\alpha_L/l$		$\alpha_T/l$	
	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>a</b>	<b>b</b>
$\varepsilon_\beta = 0.1507$	$6.78 \cdot 10^{-5}$	0.94741	$3.13 \cdot 10^{-3}$	0.15325
$\varepsilon_\beta = 0.2891$	$6.1029 \cdot 10^{-4}$	0.89011	0.024455	-0.14347
$\varepsilon_\beta = 0.3537$	$1.2738 \cdot 10^{-3}$	0.85723	0.029051	-0.17813
$\varepsilon_\beta = 0.4152$	$2.3785 \cdot 10^{-3}$	0.82024	0.030468	-0.19597
$\varepsilon_\beta = 0.5290$	$6.8136 \cdot 10^{-3}$	0.73222	0.020713	-0.16438
$\varepsilon_\beta = 0.6305$	0.012204	0.67777	0.019316	-0.18382
$\varepsilon_\beta = 0.7597$	0.017695	0.61699	0.015718	-0.21086
$\varepsilon_\beta = 0.8304$	0.013358	0.60974	0.022366	-0.30159
$\varepsilon_\beta = 0.9135$	9.6934	0.54354	0.0064685	-0.19624

TAB. A.2 – Paramètres d'interpolation des dispersivités



# Bibliographie

- Ahmad, I. & Berzins, M. (2001), ‘MOL solvers for hyperbolic PDEs with source terms’, *Mathematics and Computers in Simulation* **56**(2), 115–125.
- Ahmadi, A., Aigueperse, A. & Quintard, M. (2001), ‘Calculation of the effective properties describing active dispersion in porous media : From simple to complex unit cells’, *Adv. Water Resour.* **24**, 423–438.
- Ahmadi, A. & Quintard, M. (1996), ‘Large-scale properties for two-phase flow in random porous media’, *J. of Hydrology* **183**, 69–99.
- Anderson, T. B. & Jackson, R. (1967), ‘A fluid mechanical description of fluidized beds’, *Ind. Engng Chem. Fundam.* **6**, 527–538.
- Arquis, E. & Caltagirone, J. P. (1984), ‘Sur les conditions hydrodynamiques au voisinage d’une interface milieu fluide-milieu poreux : Application à la convection naturelle’, *C. R. Acad. Sci. Paris* **299**(1), 1–4.
- Bazin, B. (2000), ‘From matrix acidizing to acid fracturing : A laboratory evaluation of acid / rock interactions’, *SPE Prod. and Facilities* **15**(4), 1–8.
- Bazin, B. & Abdulahad, G. (1999), ‘Experimental investigation of some properties of emulsified acid systems for stimulation of carbonate formations’, SPE 53237, presented at the SPE Middle East Oil Show, Bahrain.
- Bazin, B., Chauveteau, G. & Bouteica, M. (1997), ‘Acid filtration in dynamic conditions to mimic fluid loss in acid fracturing’, SPE 38168, presented at the Europ. Formation Damage Conf., The Hague.
- Bazin, B., Roque, C. & Bouteica, M. (1995), ‘A laboratory evaluation of acid propagation in relation to acid fracturing : Results and interpretation’, SPE 30085, presented at the Europ. Formation Damage Conf., The Hague.
- Bear, J. (1961), ‘On the tensor form of dispersion in porous media’, *Journal of Geophysical Research* **66**, 1185–1197.
- Beavers, G. S. & Joseph, D. D. (1967), ‘Boundary conditions at a naturally permeable wall’, *J. Fluid Mech.* **30**, 197–207.
- Beckermann, C., Ramadhyani, S. & Viskanta, R. (1987), ‘Natural convection flow and heat transfer between a fluid layer and a porous layer inside a rectangular enclosure’, *J. Heat Transfer* **109**, 363–370.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- Beckermann, C., Viskanta, R. & Ramadhyani, S. (1988), 'Natural convection in vertical enclosures containing simultaneously fluid and porous layers', *J. Fluid Mech.* **186**, 257–284.
- Bekri, S., Thovert, J. F. & Adler, P. M. (1995), 'Dissolution of porous media', *Chem. Engng Sci.* **50**(17), 2765–2791.
- Bekri, S., Thovert, J. F. & Adler, P. M. (1997), 'Dissolution and deposition in fractures', *Engng. Geo.* **48**, 283–308.
- Brare, V. (1999), 'Analyse des résultats', Rapport de Stage.
- Brinkman, H. C. (1947), 'A calculation of the viscous force exerted by a flowing fluid on dense swarm of particles', *Appl. Sci. Res.* **A1**, 27–34.
- Bruneau, C. H., Fabrie, P. & Rasetarinera, P. (1997), 'An accurate finite difference scheme for solving convection-dominated diffusion equations', *Int. J. for Num. Meth. in Fluids* **24**, 169–183.
- Buijse, M. A. (1997), 'Mechanisms of wormholing in carbonate acidizing', SPE 37283, presented at the SPE Int. Symposium on Oilfield Chem., Houston.
- Burton, P. A. (1993), Convergence of Flux Limiter Schemes for Hyperbolic Conservation Law with Source Terms, PhD thesis.
- Carbonell, R. G. & Whitaker, S. (1983), 'Dispersion in pulsed systems II : Theoretical developments for passive dispersion in porous media', *Chem. Engng Sci.* **38**, 1795–1802.
- Carbonell, R. G. & Whitaker, S. (1984), *Fundamentals of Transport Phenomena in Porous Media*, J. Bear and M. Y. Corapcioglu edn, Martinus Nijhof, chapter Heat and Mass Transfer in Porous Media, pp. 121–198.
- Chang, F., Qu, Q. & Frenier, W. (2001), 'A novel self-diverting acid developed for matrix stimulation of carbonate reservoirs', SPE 65033, presented at the Int. Symposium on Oilfield Chem., Houston.
- Chella, R., Lasseux, D. & Quintard, M. (1998), 'Multiphase, multicomponent fluid flow in homogeneous and heterogeneous porous media', *Revue de L'Institut Français du Pétrole* **53**(3), 335–346.
- Chen, Y., Fambrough, J., Bartko, K., Li, Y., Montgomery, C. & Ortoleva, P. (1997), 'Reaction-transport simulation of matrix acidizing and optimal acidizing strategies', SPE 37282, presented at the SPE Int. Symposium on Oilfield Chem., Houston.
- Cherblanc, F. (1999), Etude Du Transport Miscible En Milieux Poreux Hétérogènes : Prise En Compte Du Non-Équilibre, PhD thesis, Université de Bordeaux I.
- Civan, F. (2001), 'Scale effect on porosity and permeability : Kinetics, model and correlation', *AIChE J.* **47**(2), 271–287.
- Colquhoun-Lee, I. & Stepanek, J. (1974), 'Mass transfer in single phase flow in packed beds', *The Chemical Engineer* pp. 108–111.
- Conway, M. W., Asadi, M., Penny, G. S. & Chang, F. (1999), 'A comparative study of straight/gelled/emulsified hydrochloric acid diffusivity coefficient using diaphragm cell and

- rotating disk', presented at the SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Houston (Texas).
- Cushman, H. J. (1997), *The Physics of Fluids in Hierarchical Porous Media : Angstroms to Miles*, Academic Publishers, The Netherlands.
- Cushman, H. J. & Moroni, M. (2001a), 'Statistical mechanics with three-dimensional particle tracking velocimetry experiments in the study of anomalous dispersion. I. theory', *Phys. Fluids* **13**(1), 75–80.
- Cushman, H. J. & Moroni, M. (2001b), 'Statistical mechanics with three-dimensional particle tracking velocimetry experiments in the study of anomalous dispersion. II. experiments', *Phys. Fluids* **13**(1), 81–91.
- Daccord, G. (1989), *The Fractal Approach to Heterogeneous Chemistry*, John Wiley and Sons edn, D. Avnir, chapter Dissolutions, Evaporations, Etchings, pp. 183–197.
- Daccord, G., Lenormand, R. & Lietard, O. (1993), 'Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid. 1 - model for the wormholing phenomenon', *Chem. Engng Sci.* **48**(1), 169–178.
- Daccord, G., Lenormand, R. & Touboul, E. (1989), 'Carbonate acidizing : Toward a quantitative study of the wormholing phenomenon', *SPE Prod. Engng* **4**, 63–68.
- Daccord, G., Lietard, O. & Lenormand, R. (1993), 'Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid. 2 - convection vs reaction, behavior diagram', *Chem. Engng Sci.* **48**(1), 179–186.
- Daccord, G., Nittmann, J. & Stanley, H. E. (1986), 'Radial viscous fingers and diffusion-limited aggregation : Fractal dimension and growth sites', *Phys. Rev. Lett.* **56**(4), 336–339.
- Dagan, G. (1979), 'The generalization of Darcy's law for nonuniform flows', *Water Resour. Res.* **15**, 1–7.
- Dagan, G. (1990), *Flow and Transport in Porous Formation*, Springer Verlaag, New York.
- DeZabala, E. F. & Radke, C. J. (1986), 'A non-equilibrium description of alkaline water flooding', *Soc. Petrol. Engng J.* **26**, 29–43.
- Durlofsky, L. & Brady, J. F. (1987), 'Analysis of the Brinkman equation as a model for flow in porous media', *Phys. Fluids* **30**(11), 3329–3341.
- Dwivedi, P. N. & Upadhyay, S. N. (1977), 'Particle-fluid mass transfer in fixed and fluidized beds', *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.* **16**(2), 157–165.
- Dykhuizen, R. C. (1990), 'A new coupling term for dual-porosity models', *Water Resour. Res.* **26**, 351–356.
- Ergun, S. (1952), 'Fluid flow through packed columns', *Chem. Engng Progress* **48**, 89–94.
- Fogler, H. S. (1999), *Elements of Chemical Reaction Engineering*, third edn, Prentice Hall PTR.
- Fogler, H. S., Lund, K. & McCune, C. C. (1976), 'Predicting the flow and reaction of HCl/HF acid mixtures in porous sandstone cores', SPE 5646, presented at the Annual Fall Tech. Conf. and Exhibition, Dallas.

- Fortin, M. & Glowinski, R. (1982), *Méthodes de Lagrangien Augmenté*, Dunod, Paris.
- Fredd, C. N. (2000), 'Dynamic model of wormhole formation demonstrates conditions for effective skin reduction during carbonate matrix acidizing', SPE 59537, presented at the Permian Basin Oil and Gas Recovery Conference, Texas.
- Fredd, C. N. & Fogler, H. S. (1998a), 'Alternative stimulation fluids and their impact on carbonate acidizing', *SPE J.* **13**(1), 34.
- Fredd, C. N. & Fogler, H. S. (1998b), 'Influence of transport and reaction on wormhole formation in porous media', *AIChE J.* **44**(9), 1933–1949.
- Fredd, C. N. & Fogler, H. S. (1999), 'Optimum conditions for wormhole formation in carbonate porous media : Influence of transport and reaction', *SPE J.* **4**(3).
- Fredd, C. N. & Miller, M. J. (2000), 'Validation of carbonate matrix stimulation models', SPE 58713, presented at the Int. Symposium on Formation Damage, Lafayette (Louisiana).
- Frick, T. P., Kurmayr, M. & Economides, M. J. (1994), 'Modeling of fractal patterns in matrix acidizing and their impact on well performance', SPE 23789, presented at the SPE Production and Facilities.
- Gartling, D. K. (1988), A finite element formulation for incompressible, conjugate, viscous/porous flow problems, in 'Int. Conf. On Comput. Methods in Flow Analysis', Okayama, Japan.
- Gdanski, R. D. (1999), 'A fundamentally new model of acid wormholing in carbonates', SPE 54719, presented at the European Formation Damage Conference, The Hague.
- Gdanský, R. & Van Domelen, M. (1999), 'Slaying the myth of infinite reactivity of carbonates', SPE 50730, Oildfield Chem. Symposium, Houston.
- Gehlar, L. W. (1984), *Fundamental of Transport Phenomena in Porous Media*, Martinus Nijhoff Publishers, The Netherlands, chapter Stochastic Analysis of Flow in Heterogeneous Porous Media.
- Genthon, P., Cabioch, G., Calmant, S. & Ormond, A. (2001), 'Distribution des cavités de l'atoll soulevé de walpole. implications sur le processus de karstification par les eaux météoriques', *C. R. Acad. Sci. Paris* **332**, 439–445.
- Golfier, F., Quintard, M. & Whitaker, S. (2002), 'Heat and mass transfer in tubes : An analysis using the method of volume averaging', *J. Porous Media* . A paraître.
- Golfier, F., Zarcone, C., Bazin, B., Lenormand, R., Lasseux, D. & Quintard, M. (2002), 'On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium', *J. Fluid Mech.* . A paraître.
- Goyeau, B., Benihaddadene, T., Gobin, D. & Quintard, M. (1997), 'Averaged momentum equation for flow through a non homogeneous porous structure', *Transport in Porous Media* **28**, 19–50.
- Goyeau, B., Benihaddadene, T., Gobin, D. & Quintard, M. (1999), 'Numerical calculation of the permeability in a dendritic mushy zone', *Metall. and Mater. Trans. B* **30B**, 613–622.

- Gray, W. G. (1975), 'A derivation of the equations for multiphase transport', *Chem. Engng Sci.* **30**, 229–233.
- Gray, W. G., Leijnse, A., Kolar, R. L. & Blain, C. A. (1993), *Mathematical Tools for Changing Spatial Scales in the Analysis of Physical Systems*, CRC Press, Boca Raton, FL.
- Groves, C. G. & Howard, A. D. (1994), 'Early development of karst systems. 1 : Preferential flow path enlargement under laminar flow', *Water Resour. Res.* **30**(10), 2837–2846.
- Harten, A. (1983), 'High resolution schemes for hyperbolic conservation laws', *J. of Comp. Phys.* **49**, 357–393.
- Hoefner, M. L. & Fogler, H. S. (1988), 'Pore evolution and channel formation during flow and reaction in porous media', *AIChE J.* **34**(1), 45–54.
- Hoefner, M. L., Fogler, H. S., Stenius, P. & Sjöblom, J. (1987), 'Role of acid diffusion in matrix acidizing of carbonates', *J. of Pet. Tech.* pp. 203–208.
- Howes, F. A. & Whitaker, S. (1985), 'The spatial averaging theorem revisited', *Chem. Engng Sci.* **40**, 1387–1392.
- Huang, T., Hill, A. D. & Schechter, R. S. (1997), 'Reaction rate and fluid loss : The keys to wormhole initiation and propagation in carbonate acidizing', SPE 37312, presented at the SPE Int. Symposium on Oilfield Chem., Houston.
- Huang, T., Zhu, D. & Hill, A. D. (1999), 'Prediction of wormhole population density in carbonate matrix acidizing', SPE 54723, presented at the Europ. Formation Damage Conf., The Hague.
- Hubbard, M. E. & Garcia-Navarro, P. (2000), 'Flux difference splitting and the balancing of source terms and flux gradients', *J. Comput. Phys.* . A paraître.
- Hung, K. M., Hill, A. D. & Sepehrnoori, K. (1989), 'A mechanistic model of wormhole growth in carbonate matrix acidizing and acid fracturing', *J. of Pet. Tech.* pp. 59–66.
- Jahoda, M. & Hornof, V. (2000), 'Concentration profiles of reactant in a viscous finger formed during the interfacially reactive immiscible displacements in porous media', *Powder Technology* **110**, 253–257.
- Kaviany, M. (1991), *Principles of Heat Transfer in Porous Media*, Springer-Verlag, NY, USA.
- Knabner, P., Van Duijn, C. J. & Hengst, S. (1995), 'An analysis of crystal dissolution fronts in flow through porous media. part I : Compatible boundary conditions', *Adv. Water Resour.* **18**(3), 171–185.
- Koval, E. J. (1963), 'A method for predicting the performance of unstable miscible displacement in heterogeneous porous media', *Trans. AIME* **228**, 145–154.
- Kuznetsov, A. V. (1997), 'Influence of the stress jump condition at porous medium/clear-fluid interface on a flow at a porous wall', *Int. Communications in Heat and Mass Transfer* **24**(3), 401–410.
- Larrea, J. C. (1991), Etude Par Simulation Numérique de L'hydrodynamique Au Voisinage D'une Interface Poreuse, PhD thesis, INP Toulouse.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- Larrea, J. C., Prat, M. & Boisson, H. (1992), ‘Sur les conditions aux limites à la paroi pour le calcul d’un écoulement laminaire dans un canal à parois poreuses’, *C. R. Acad. Sci. Paris* **315**(2), 143–148.
- Lasseux, D., Golfier, F., Quintard, M. & Bertin, H. (2000), On the determination of effective permeability of vuggy porous media, *in* ‘2nd Int. Conf. On Computer Methods for Engineering in Porous Media’, Besançon.
- Le Bray, Y. (1997), Contributions à l’Etude Du Changement de Phase Liquide-Vapeur En Milieu Poreux. Simulations Numériques sur Réseaux de Pores, PhD thesis, Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse.
- Le Bray, Y. & Prat, M. (1999), ‘Three-dimensional pore network simulation of drying in capillary porous media’, *Int. J. of Heat and Mass transfer* **42**, 4207–4224.
- Leclerc, S. (1998), ‘Analyse des resultats’, Rapport de Stage.
- Lenormand, R., Touboul, E. & Zarcone, C. (1988), ‘Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media’, *J. Fluid Mech.* **189**, 165–187.
- Levich, V. G. (1962), *Physicochemicals Hydrodynamics*, Prentice Hall, Englewood Cliffs, NJ.
- Levy, T. (1981), ‘Loi de Darcy ou loi de Brinkman’, *C.R. Hebd. Acad. Sci. Paris* **272**, 871–874.
- Lhuillier, D., Goyeau, B. & Gobin, D. (1999), La viscosité effective dans le modèle de Darcy-Brinkman : Approche self-consistante, *in* ‘4èmes Journées d’Etude sur Les Milieux Poreux de Nancy’.
- Liu, X., Ormond, A., Bartko, K., Li, Y. & Ortoleva, P. (1997), ‘A geochemical reaction-transport simulator for matrix acidizing analysis and design’, *J. of Pet. Sci. and Engng* **17**, 181–196.
- Lund, K., Fogler, H. S. & McCune, C. C. (1973), ‘The dissolution of dolomite in hydrochloric acid’, *Chem. Engng Sci.* **28**, 691.
- Lund, K., Fogler, H. S., McCune, C. C. & Ault, J. W. (1975), ‘The dissolution of calcite in hydrochloric acid’, *Chem. Engng Sci.* **30**, 825.
- Lundgren, T. S. (1972), ‘Slow flow through stationary random beds and suspension of spheres’, *J. Fluid Mech.* **51**(2), 273–299.
- Lynn, J. D. & Nasr-El-Din, H. A. (2001), ‘A core based comparison of the reaction characteristics of emulsified and in-situ gelled acids in low permeability, high temperature, gas bearing carbonates’, SPE 65386, presented at the Int. Symp. on Oilfield Chem., Houston.
- Mahinpey, N., Ojha, M. & Trass, O. (2001), ‘Transient mass and heat transfer in a smooth pipe’, *Int. J. Heat and Mass Transfer* **44**(20), 3919–3930.
- Marle, C. M. (1967), ‘Ecoulements monophasiques en milieu poreux’, *Rev. Inst. Français du Pétrole* **22**(10), 1471–1509.
- Matheron, G. (1965), *Les Variables Régionalisées et Leur Estimation : Une Application de la Théorie Aléatoire Aux Sciences de la Nature*, Masson, Paris.
- Miller, C. T., Christakos, G., Imhoff, P. T., McBride, J. F., Pedit, J. A. & Trangenstein, J. A. (1998), ‘Multiphase flow and transport modeling in heterogeneous porous media : Challenges and approaches’, *Advances In Water Resources* **21**(2), 77–120.

- Moyne, C., Didierjean, S., Amaral Souto, H. P. & Da Silveira, O. T. (1999), Dispersion thermique en milieu poreux : Modèle à une équation, *in* 'Congrès Annuel de la Société Française Des Thermiciens', Elsevier, pp. 467–472.
- Mumallah, N. A. (1991), 'Factors influencing the reaction rate of hydrochloric acid and carbonate rock', SPE 21036, presented at the SPE Int. Symposium on Oilfield Chem., California.
- Mumallah, N. A. (1997), 'Effective HCl diffusion coefficients from correlations of HCl-limestone reactions', SPE 37458, presented at the SPE Production Operations Symposium, Oklahoma.
- Mumallah, N. A. (1998), 'Reaction rates of hydrochloric acid with chalks', *J. of Pet. Sci. and Engng* **21**, 167–177.
- Naimi, A. (1997), Sur la Formulation et Simulation de L'effet D'inertie Dans L'hydrodynamique En Milieu Poreux, PhD thesis, Université de Paris-Sud.
- Nield, D. A. (1983), 'The boundary correction for the Rayleigh-Darcy problem : Limitations of the Brinkman equation', *J. Fluid Mech.* **128**, 37–46.
- Nilson, R. H. & Griffiths, S. K. (1990), 'Wormhole growth in soluble porous materials', *Phys. Rev. Lett.* **65**(13), 1583–1586.
- Nittmann, J. & Stanley, H. E. (1987), 'Role of fluctuations in viscous fingering and dendritic crystal growth : A noise-driven model with non-periodic sidebranching and no threshold for onset', *J. Phys. A : Math. Gen.* **20**, 981–986.
- Nozad, I., Carbonell, R. G. & Whitaker, S. (1985), 'Heat conduction in multiphase systems i : Theory and experiment for two-phase systems', *Chem. Engng. Sci.* **40**, 843–855.
- Ochoa-Tapia, J. A. & Whitaker, S. (1995a), 'Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid I : Theoretical development', *Int. J. Heat Mass Transfer* **38**(14), 2635–2646.
- Ochoa-Tapia, J. A. & Whitaker, S. (1995b), 'Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid II : Comparison with experiment', *Int. J. Heat Mass Transfer* **38**(14), 2647–2655.
- Odeh, A. S. & Cohen, M. F. (1989), 'A technique for improving the simulation of linear, miscible hydrocarbon displacement in the event of viscous fingering', *Energy Sources* **11**, 9–17.
- Patankar, S. V. (1980), *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow : Computational Methods in Mechanics and Thermal Science*, Hemisphere Publishing Corporation.
- Poirier, D. R. (1987), 'Permeability for flow of interdendritic liquid in columnar-dendritic alloys', *Met. Trans.* **18B**, 245–255.
- Power, S. E. & Abriola, L. M. Weber Jr., W. J. (1992), 'An experimental investigation of nonaqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems : Steady state mass transfer rates', *Water Resour. Res.* **28**(10), 2691–2705.
- Powers, S. E., Loureiro, C. O., Abriola, L. M. & Weber Jr., W. J. (1991), 'Theoretical study of the significance of nonequilibrium dissolution of nonaqueous phase liquids in subsurface systems', *Water Resour. Res.* **27**(4), 463–477.

- Quintard, M. (1996a), 'Fracture-matrix mass exchange coefficients', internal report of L.E.P.T.-ENSAM.
- Quintard, M. (1996b), 'One-phase flow in vuggy rocks', internal report of L.E.P.T.-ENSAM.
- Quintard, M., Cherblanc, F. & Whitaker, S. (2001), 'Dispersion in heterogeneous porous media : One-equation non-equilibrium model', *Transport in Porous Media* **44**(1), 181–203.
- Quintard, M., Kaviani, M. & Whitaker, S. (1997), 'Two-medium treatment of heat transfer in porous media : Numerical results for effective properties', *Adv. in Water Resour.* **20**(2-3), 77–94.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1988), 'Two-phase flow in heterogeneous porous media : The method of large-scale averaging', *Transport in Porous Media* **3**, 357–413.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1990), 'Two-phase flow in heterogeneous porous media i : The influence of large spatial and temporal gradient', *Transport in Porous Media* **5**, 341–379.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1993a), 'One and two-equation models for transient diffusion processes in two-phase systems', *Adv. Heat Transfer* **23**, 369–464.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1993b), 'Transport in ordered and disordered porous media : Volume averaged equations, closure problems, and comparison with experiment', *Chem. Engng. Sci.* **48**, 2537–2564.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1994a), 'Convection, dispersion, and interfacial transport of contaminants : Homogeneous porous media', *Adv. in Water Resour.* **17**, 221–239.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1994b), 'Transport in ordered and disordered porous media I : The cellular average and the use of weighting functions', *Transport in Porous Media* **14**, 163–177.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1995a), 'Aerosol filtration : An analysis using the method of volume averaging', *J. Aerosol Sci.* **26**(8), 1227–1255.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1995b), 'Local thermal equilibrium for transient heat conduction : Theory and comparison with numerical experiments', *In. J. Heat Mass Transfer* **38**, 2779–2796.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1998), 'Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media – III. large-scale mechanical equilibrium and the regional form of Darcy's law', *Adv. in Water Resour.* **21**, 617–629.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1999), 'Dissolution of an immobile phase during flow in porous media', *Ind. and Engng Chem. Res.* **38**(3), 833–844.
- Robichaud, M. P., Tanguy, P. A. & Fortin, M. (1990), 'An iterative implementation of the Uzawa algorithm for 3-D fluid flow problems', *Int. J. for Num. Meth. in Fluids* **10**, 429–442.
- Rowan, G. (1959), 'Theory of acid treatment of limestone formations', *J. Inst. Petrol.* **45**(431).
- Rubinstein, J. (1986), 'Effective equations for flow in random porous media with a large number of scales', *J. Fluid Mech.* **170**, 379–383.

- Rubinstein, R. Y. & Torquato, S. (1989), ‘Flow in random porous media ; mathematical formulation ; variational principles and rigorous bounds’, *J. Fluid Mech.* **206**, 25–46.
- Saffman, P. G. & Taylor, G. I. (1958), ‘The penetration of a fluid into a porous medium or hele-shaw cell’, *Proc. R. Soc.* **A245**, 312–329.
- Sahimi, M., Gavalas, G. R. & Tsotsis, T. T. (1990), ‘Statistical and continuum models of fluid-solid reactions in porous media’, *Chem. Engng Sci.* **45**(6), 1443–1502.
- Saleh, S., Thovert, J.-F. & Adler, P. (1993), ‘Flow along porous media by particle image velocimetry’, *AIChE J.* **39**, 1765–1776.
- Sanchez-Palencia, E. (1980), *Lecture Notes in Physics*, Vol. 127, Springer-Verlaag, New York, chapter Non-homogeneous media and vibration theory.
- Schechter, R. S. (1992), *Oil Well Stimulation*, Prentice Hall, NY.
- Schechter, R. S. & Gidley, J. L. (1969), ‘The change in pore size distribution from surface reactions in porous media’, *AIChE J.* **15**(3), 339–350.
- Schuling, R. (1990), ‘Geochemical engineering : Some thoughts on a new research field’, *Appl. Geochem.* **5**, 251–262.
- Sherwood, J. D. (1987), ‘Stability of a plane reaction front in a porous medium’, *Chem. Engng. Sci.* **42**, 1823–1829.
- Slattery, J. C. (1967), ‘Flow of viscoelastic fluids through porous media’, *AIChE Journal* **13**, 1066–1071.
- Sorbie, K. S., Zhang, H. R. & Tsibuklis, N. B. (1995), ‘Linear viscous fingering : New experimental results, direct simulations and the evaluation of averaged models’, *Chem. Engng Sci.* **50**(4), 601–616.
- Speck, P., de Graaf, J. W. M., Nieuwenhuis, J. D. & Zijlstra, J. J. P. (1998), ‘Optimizing the process of sulphuric acid injection into limestones’, *J. of Geo. Explo.* **62**, 331–335.
- Takacs, L. (1985), ‘A two-step scheme for the advection equation with minimised dissipation and dispersion errors’, *Mon. Weather Rev.* **113**.
- Tam, C. T. (1969), ‘The drag on a cloud of spherical particles in low Reynolds number flows’, *J. Fluid Mech.* **38**, 537–546.
- Tardy, P. & Quintard, M. (1999), ‘Solving stiff mass transfers in compositional multiphase flow models : Numerical stability and spurious solutions’, *Comp. Geo.* **3**, 161–183.
- Thoenes, D. J. & Kramers, H. (1958), *Chem. Engng. Sci.* **8**.
- Todd, M. R. & Longstaff, W. J. (1972), ‘The development, testing and application of a numerical simulator for predicting miscible flood performance’, *Trans. AIME* **253**, 874–882.
- Vafai, K. & Thiyagaraja, R. (1987), ‘Analysis of flow and heat transfer at the interface region of a porous medium’, *Int. J. Heat Mass Transfer* **30**(7), 1391–1405.
- Vafai, K. & Tien, C. L. (1982), ‘Boundary and inertia effects on convective mass transfer in porous media’, *Int. J. Heat Mass Transfer* **25**(8), 1183–1190.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- Van Der Vorst, H. (1992), 'Bi-CGSTAB : A fast and smoothly converging variant of BI-CG for the solution of nonsymmetric linear systems', *SIAM J. Sci. Statist. Comput.* **13**, 631–644.
- Van Duijn, C. J., Knabner, P. & Schotting, R. J. (1998), 'An analysis of crystal dissolution fronts in flows through porous media part 2 : Incompatible boundary conditions', *Adv. in Water Resour.* **22**(1), 1–16.
- Vignes-Adler, M., Adler, P. M. & Gougat, P. (1987), 'Transport processes along fractals. the Cantor-Taylor brush', *Phys. Chem. Hydrodyn.* **8**(4), 401–422.
- Vossoughi, S., Smith, J. E., Green, D. W. & Willhite, G. P. (1984), 'A new method to simulate the effects of viscous fingering on miscible displacement processes in porous media', *Trans. AIME* **277**, 56–64.
- Wang, Y., Hill, A. D. & Schechter, R. S. (1993), 'The optimum injection rate for matrix acidizing of carbonate formations', SPE 26578, presented at the Tech. Conf. and Exhib., Houston.
- Whitaker, S. (1967), 'Diffusion and dispersion in porous media', *AIChE J.* **13**, 420–427.
- Whitaker, S. (1985), 'A simple geometrical derivation of the spatial averaging theorem', *Chem. Engng Ed.* **19**, 18–52.
- Whitaker, S. (1986), 'Flow in porous media I : A theoretical derivation of Darcy's law', *Transport in Porous Media* **1**, 3–35.
- Whitaker, S. (1999), *The Method of Volume Averaging*, Kluwer, Dordrecht, The Netherlands.
- Williams, B. B., Gidley, J. L. & Schechter, R. S. (1979), 'Acidizing fundamentals', Monograph Series, SPE, Richardson, TX.
- Zanotti, F. & Carbonell, R. G. (1984a), 'Development of transport equations for multiphase systems - I : General development for two-phase systems', *Chem. Engng Sci.* **39**, 263–278.
- Zanotti, F. & Carbonell, R. G. (1984b), 'Development of transport equations for multiphase systems - III : Application to heat transfer in packed beds', *Chem. Engng Sci.* **39**, 299–311.
- Zanotti, F. & Carbonell, R. G. (1984c), 'Development of transport equations for multiphase systems - II : Application to one-dimensional axi-symmetric flows of two-phases', *Chem. Engng Sci.* **39**, 279–297.
- Zhang, Z. F. & Smith, J. E. (2001), 'The velocity of DNAPL fingering in water-saturated porous media : Laboratory experiments and a mobile-immobile model', *J. of Contaminant Hydrology* **49**, 335–353.