HAL
open science

Transport multi-échelle en milieu poreux : vers un couplage de l'hydrodynamique aux processus biophysico-chimiques

Fabrice Golfier

To cite this version:

Fabrice Golfier. Transport multi-échelle en milieu poreux : vers un couplage de l'hydrodynamique aux processus biophysico-chimiques. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Institut National Polytechnique de Lorraine - INPL, 2011. tel-00648924

HAL Id: tel-00648924

https://theses.hal.science/tel-00648924

Submitted on 6 Dec 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.

Nancy-Université
INPL

ENSG-INPL (Nancy Université)
Laboratoire Environnement, Géomécanique et Ouvrages (LaEGO)

Mémoire pour l'obtention de l'Habilitation à Diriger des Recherches

Transport multi-échelle en milieu poreux : vers un couplage de l'hydrodynamique aux processus biophysico-chimiques

Présenté par
Fabrice GOLFIER

Date et lieu de soutenance :
1er Décembre 2011, ENSG

Composition du jury :

Rapporteurs :

Frédérick DELAY	Professeur	EOST Strasbourg
Benoît GOYEAU	Professeur	Ecole Centrale, Paris
Jean-François THOVERT	DR CNRS	LCD (UPR 9028) Poitiers

Examinateurs :

Michel BUES	Professeur	Ecole Nationale Supérieure de Géologie de Nancy
Jean-Raynald de DREUZY	CR CNRS	Geosciences Rennes (UMR 6118)
Michel QUINTARD	DR CNRS	IMFT (UMR 5502) - Toulouse

SOMMAIRE

I. Curriculum Vitae 3

II. Activité d'enseignement 4

III. Activités d'administration, de valorisation et de transfert 6

1. Responsabilités administratives 6

2. Contrats industriels 6

IV. Activité d'encadrement et de responsabilités scientifiques 7

1. Encadrement doctoral et scientifique 7

2. Responsabilités scientifiques 10

3. Rayonnement scientifique 11

V. Liste des publications 12

PREAMBULE 20

I. Quelques mots sur mon parcours scientifique 20

II. Objectifs de recherche et problématique d'étude 21

CHAPITRE 1 – UNE PROBLEMATIQUE MULTI-ECHELLE : METHODE DE CHANGEMENT D'ECHELLE ET FORMALISME THEORIQUE 23

I. Une problématique multi-échelle 23

II. La méthode de prise de moyenne volumique 24

III. Application aux écoulements turbiditiques. Développement d'un modèle de Saint-Venant multi-couche à densité variable. 28

CHAPITRE 2 – INFLUENCE DES HETEROGENEITES SUR LES PROCESSUS DE TRANSFERT ... 32

I. Hétérogénéités du milieu et influence sur les conditions de non-équilibre local 32

II. Variabilité des propriétés physiques du fluide et déclenchement d'instabilité 41

CHAPITRE 3 – PRISE EN COMPTE DES EFFETS DE COUPLAGE EN TRANSPORT REACTIF 46

I. Dissolution en milieu poreux : prise en compte des effets d'historicité 46

II. Gazéification du charbon : transport couplé de masse et de chaleur multi-espèces 55

CHAPITRE 4 – IMPACT DES PROCESSUS BIOLOGIQUES SUR L'HYDRODYNAMIQUE ET LE TRANSPORT 59

I. Introduction 59

1. Complexité et enjeux liés à la prise en compte de l'activité microbienne en milieu poreux. 59

2. Qu'est-ce-qu'un biofilm : rôle et dynamique 60

3. Aspect multi-échelle 62

II. Développement théorique et numérique des modèles macroscopiques de transport 63

III. Étude numérique de la croissance de biofilm en milieu poreux à l'échelle du pore 69

IV. Étude expérimentale du transport de nutriment en milieu poreux avec biofilm 73

CONCLUSION 79

Références Bibliographiques 82

I. CURRICULUM VITAE

ÉTAT CIVIL

FABRICE GOLFIER

Né le 17 février 1975 à Bordeaux (33)
Vie en concubinage, 1 enfant
Grade : **Maître de Conférences Classe Normale - 4ème échelon**
Section de CNU: **60 - Mécanique, Génie Mécanique, Génie Civil**
Etablissement d'affectation : **École Nationale Supérieure de Géologie (ENSG) - Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL)**
Laboratoire d'appartenance : **Laboratoire Environnement, Géomécanique et Ouvrages (*LAEGO*) - EA 1145**
Adresse Professionnelle : rue du Doyen Marcel Roubault BP 40 - 54501 Vandœuvre-lès-Nancy
Tél : 03.83.59.63.44
Mail : Fabrice.Golfier@ensg.inpl-nancy.fr

CURSUS PROFESSIONNEL

Depuis Sept. 2004 — **Maître de Conférences** à l'École Nationale Supérieure de Géologie (ENSG).
Autorisation à co-diriger des thèses depuis 2006
Titulaire de la **Prime d'Encadrement Doctoral et de Recherche** (depuis 2007)

2003-2004 — **Ingénieur de Recherche** à *l'École des Mines d'Albi-Carmaux* (UMR 2392 CNRS - LGPSD), dans le département *Énergétique et Environnement*.

2002-2003 — **Research Assistant** à l'*Oregon State University (OSU),* dans le département de *Civil Engineering* (Oregon, USA).

FORMATION

1998-2001 — **Doctorat de Dynamique des Fluides**, Institut National Polytechnique de Toulouse.
Sujet : « *Modélisation de la dissolution des roches carbonatées par injection d'acide* » (Bourse IFP-ENSPM). Directeur de thèse : M. Quintard (DR CNRS)
Mention : Très Honorable. **Prix Léopold Escande** 2001 (prix de la meilleure thèse INPT).

1996-1997 — **DEA Mécanique des Fluides** (mention AB), Université de Bordeaux I

1994-1997 — **ÉCOLE MATMECA**

1992-1994 — **DEUG A,** Université de Bordeaux I

II. ACTIVITÉ D'ENSEIGNEMENT

Depuis ma nomination en tant que Maître de Conférences (1er septembre 2004), mes activités d'enseignement s'effectuent pour l'essentiel à l'École Nationale Supérieure de Géologie de Nancy (à l'exception de 16h de TP de mécanique des fluides effectués pour l'Ecole Supérieure d'Ingénieurs des Travaux de la Construction de Metz). Elles sont axées autour des Sciences de l'Ingénieur et de leurs applications dans le domaine des Géosciences (hydrogéologie et ingénierie des réservoirs). Compte tenu de la spécificité du public pour partie issue d'une formation naturaliste (60% des élèves de l'ENSG sortent des classes préparatoires BCPST), l'enseignement de la mécanique fondamentale est souvent perçu par les étudiants comme une matière ardue, trop mathématique et déconnectée des processus géologiques et des métiers des géosciences. D'un point de vue pédagogique, je me suis efforcé de créer des passerelles entre ces deux aspects en reliant dans mes enseignements les principes théoriques fondamentaux de la mécanique aux mécanismes géologiques. Un effort particulier en ce sens a été effectué avec mes collègues au travers de la réforme pédagogique de 2010-2012 qui a nécessité de profondément remanier l'ensemble des modules. On peut globalement scinder mes enseignements en 3 catégories :

COURS FONDAMENTAUX EN SCIENCES DE L'INGÉNIEUR

Ces modules ont pour objectif d'apporter aux élèves les connaissances théoriques indispensables autour des processus d'hydrodynamique et de transfert de masse et de chaleur mais dans le cadre des géosciences.
Transferts Thermiques en Géosciences (TD) : estimation de l'âge de la Terre (problème de Lord Kelvin) - écoulement et transfert de chaleur dans un aquitard - impact thermique d'un stockage de déchet radioactif - structure thermique de la lithosphère…
Transferts Réactifs en Milieu Poreux (cours/TD) : présentation des réactions biotiques et abiotiques, des mécanismes d'adsorption. Compréhension des effets d'échelle et de couplage (*e.g.,* différence entre cinétique apparente et intrinsèque). TD de modélisation : application aux méthodes de dépollution « *pump and treat* » ou à la bioremédiation, infiltration d'un DNAPL et LNAPL.
Méthodes Numériques en Hydrogéologie (cours) : Différences Finies - Volumes Finies. Application à la discrétisation des EDP classiquement utilisées en hydrogéologie (équation de diffusivité de nappe, de transport de polluant). Lien avec les codes commerciaux (Modflow, MT3D). Programmation en C++ d'un scénario de pollution des eaux souterraines.
TP de Mécanique des Fluides : Venturi - Pertes de charge - Banc de perméabilité - Pompes

HYDROGÉOLOGIE

Hydrogéologie / Hydrologie de Surface (TD): Bilan évaporométrique - Bassin versant : caractérisation géomorphologique - Mesure de porosité d'un grès - Perméamètre à charge constante - Cartographie et interprétation d'un réseau de données piézométriques en régime permanent - Étude hydrogéologique d'une nappe alluviale libre et d'un système aquifère complexe (nappe perchée) …
Hydraulique des Puits (TD) : Essais de puits en régime permanent et transitoire - Méthode de Theis et de Jacob - Influence des limites de recharge - Pompage en série - Dimensionnement d'un puits.
Hydraulique fluviale (cours/TD) : Loi de Chezy - Écoulement fluvial/torrentiel - Régime critique - Déversoir - Dimensionnement d'un déversoir de crue.

Modélisation des aquifères (TD) : Modélisation sous GMS du comportement hydrodynamique des nappes et du transport de polluant - Étude de cas 2D et 3D (représentation 3D d'un modèle géologique à partir de données discrètes).
Géothermie (TD) : Étude de faisabilité de l'exploitation géothermique des mines ennoyées de Lorraine - Utilisation de l'analogie transfert de masse/ transfert de chaleur et de simulateur commerciaux en hydrogéologie (GMS) pour des problématiques géothermiques.
Hydrogéologie appliquée (terrain + projet) : 3 jours de stage terrain permettant aux étudiants de 3ème année d'effectuer des mesures de jaugeage en rivière par micro-moulinet, de réaliser une étude hydrogéologique (essai de puits, traçage, salinométrie) et de géotechnique de surface. Le stage terrain est suivi d'une étude de dimensionnement et de protection d'un site AEP. Le projet qui me tient à cœur (en collaboration avec Constantin Oltéan) pour l'année universitaire 2011-2012 est de totalement modifier ce module pour le transformer en un stage terrain de 15 jours dans le cadre de la deuxième année ENSG : une semaine serait effectué sur le site de Bure (Observatoire pérenne de l'environnement de l'ANDRA) permettant aux élèves d'étudier le bassin versant de l'Orge : jaugeage, piézométrie, mesures géochimiques… tandis que la seconde semaine concernerait les essais de puits dans une nappe alluviale et la géotechnique de surface (*e.g.*, perméamètre, infiltromètre).

INGÉNIERIE DES RÉSERVOIRS

Modélisation hydrodynamique d'un réservoir (cours/TD) : Formation à l'utilisation du logiciel ECLIPSE (modèle *Black-oil*). Modélisation d'un réservoir pétrolier faillé : description géométrique (maillage *block centered* ou *corner point*) - Définition des propriétés PVT - Données de puits - *history matching* - Simulation prédictives et contraintes économiques.

Mes activités d'enseignement représentent globalement 230-240h ETD/an. À titre d'exemple, la répartition horaire des différents modules dans lesquels j'interviens pour l'année 2010-2011 est listée ci-dessous :

Enseignement	Type	Etudiants	Volume (équiv. TD)
Hydrogéologie / Hydrologie de Surface	TD	1ère année (ENSG)	33 h ETD
Transferts Thermiques en Géosciences	TD	1ère année (ENSG)	24 h ETD
Hydraulique des Puits	TD	2ème année (ENSG)	12 h ETD
Modélisation des aquifères	TD	2ème année(ENSG)	24 h ETD
Hydraulique fluviale	C	2ème année(ENSG)	18 h ETD
Géothermie	TD	2ème année (ENSG)	6 h ETD
TP de Mécanique des Fluides	TP	2ème année (ESITC)	16 h ETD
Simul. Num. en Ingénierie des Réservoirs	TD	2ème année (ENSG)	24 h ETD
Hydrogéologie appliquée (terrain + projet)	TD	3ème année (ENSG)	24 h ETD
Transferts Réactifs en Milieu Poreux	C	3ème année (ENSG)	14 h ETD
Méthodes Numériques en Hydrogéologie	C	3ème année (ENSG)	6 h ETD

Le volume horaire restant correspond aux encadrements de projet des élèves ingénieurs de 2A et 3A, la participation aux jurys de soutenance des stages industriels (2A et 3A) ainsi qu'aux décharges horaires dues aux tâches administratives.
Je tiens enfin à préciser que j'ai actuellement une CRCT de 6 mois (octobre 2011 – avril 2012) qui vient de m'être accordé. Ceci devrait me permettre de me décharger cette année d'une partie de mes enseignements afin de me consacrer plus activement à mes projets de recherche en cours.

III. ACTIVITÉS D'ADMINISTRATION, DE VALORISATION ET DE TRANSFERT

1. RESPONSABILITÉS ADMINISTRATIVES

J'ai intégré à mon arrivée au LAEGO en septembre 2004 l'axe thématique '*Transferts en Milieux Poreux*' sous la direction de Michel Buès. J'ai rapidement pris des responsabilités administratives au niveau de l'établissement puisque de 2005 à 2007 j'ai été en charge avec G. Gillet des départs en année césure au niveau de l'ENSG. Cette tache incluait l'examen des dossiers et l'audition des projets de césure des élèves.

À partir de 2008, j'ai été élu par mes collègues maîtres de conférences au **Conseil Scientifique de l'INPL** où je participe aux discussions sur les orientations des politiques de recherche au niveau de l'établissement et donne mon avis sur les listes des comités de sélection, sur les demandes de co-direction de thèse, de CRCT ou encore sur le classement des demandes de financement région dans le cadre du CPER.

Depuis octobre 2009, je suis aussi membre élu au **Conseil de l'ENSG** et de la commission pédagogique des enseignants et intervient ainsi directement dans les orientations stratégiques de l'école.

J'ai aussi participé au recrutement d'enseignants-chercheurs (MCF ou ATER) en tant que membre suppléant de la CS60 de l'INPL de 2007 à 2008. Depuis le passage de la LRU et la dissolution des commissions de spécialiste, j'ai collaboré à deux comités de sélection.

Dans le cadre du nouveau quinquennal 2013-2017 et la restructuration du paysage lorrain des géosciences, la majeure partie du LAEGO (dont l'équipe « *Transfert en milieux poreux* »), le Laboratoire Géologie et Gestion des Ressources minérales et énergétiques (G2R - UMR CNRS 7566), une part du Laboratoire Environnement et Minéralurgie (LEM - UMR CNRS 7569) ainsi que certains enseignants-chercheurs du Centre de Ressources Pétrographiques et Géochimiques (CRPG - UPR CNRS 2300) ont décidé de fusionner en un nouveau laboratoire intitulé Géoressources. Cette nouvelle UMR, forte de 150 personnes, sera centrée sur l'exploitation des ressources géologiques et au cœur du projet LABEX 'RESSOURCES21' (Cf. Activités de recherche).

Dans ce nouvel organigramme, j'intègrerai l'équipe « Hydrogéomécanique multi-échelles» - résultat de la fusion des anciennes équipes du LAEGO « *Transfert en milieu poreux* » et « *Mécanique des roches* » - qui sera dirigé par Albert Giraud (Professeur) et dont je serai le co-animateur. J'ai ainsi largement participé à l'élaboration du dossier 'Projet' AERES sur les perspectives de cette future équipe pour lesquels nous avons fait émerger trois problématiques scientifiques communes : Prise en compte des informations microstructurales dans les modèles couplés, Influence des processus réactifs sur les propriétés hydrogéomécaniques du milieu, et Caractérisation des hétérogénéités et des fractures dans les modèles couplés à grande échelle.

2. CONTRATS INDUSTRIELS

Les activités de recherche contractuelle (expertise, contrat industriel) auxquelles j'ai collaboré depuis mon arrivée au LAEGO en 2004 sont listés ci-dessous (Cf. Item *Activités de recherche pour les programmes nationaux ou régionaux*) :

CIRAD : 2005 (3 k€)
Dans la continuité de mon post-doctorat au LGPSD, j'ai été chargé d'assurer le suivi technique du code que j'avais développé (modélisation de la gazéification à l'échelle de la particule de char) ainsi que le développement du modèle de gazogène à lit fixe.
Rapport: *Multi agricultural fuelled staged with dry gas cleaning, LIFT OFF mid-term report (European project), 30 pages (+63 p d'annexes), février 2005.*

GSM : 2007-2008 (6 k€)
À la demande de la société G.S.M. Lorraine, nous avons réalisé une expertise complémentaire pour la Préfecture de Meurthe-et-Moselle d'un projet d'exploitation d'un gisement alluvionnaire localisé sur le territoire de la commune de Vittonville (54). L'objet de cette expertise portait plus précisément sur les impacts d'une telle exploitation sur l'environnement naturel et plus particulièrement sur l'hydrogéologie du site.
Rapport : *Expertise technique du projet de rabattement de nappe pour l'exploitation G.S.M. de Vittonville (54), 10 pages (+ 6 pages en note complémentaire), octobre 2008.*

IV. ACTIVITÉ D'ENCADREMENT ET DE RESPONSABILITÉS SCIENTIFIQUES

1. ENCADREMENT DOCTORAL ET SCIENTIFIQUE

Je suis autorisé par l'Institut National Polytechnique de Lorraine à co-diriger des thèses depuis septembre 2006. Outre le co-encadrement de 3 thèses et d'un post-doctorant, j'ai supervisé 18 projets de master recherche (MR-2) dans le cadre du master "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*". Il est à noter qu'une autre thèse sous ma co-direction ainsi qu'un post-doctorat de 1 an viennent de démarrer en octobre 2011. J'encadre aussi chaque année 1 à 2 projets école de 2ème année ENSG (50h de projet/élève) qui ne sont pas détaillés ici.
Concernant la valorisation des projets de master en terme de recherche, un des fils rouges directeurs a concerné le développement du modèle de la croissance de biofilm à l'échelle du pore qui a débuté avec le travail de J. Cuny (2007) et a continué à travers plusieurs master successifs (E. Giuglaris, 2008 ; D. Dequidt, 2009 ; E. Cancel, 2010). Le développement de ce modèle a largement contribué à une meilleure compréhension des processus à petite échelle (e.g., [CSA17]) et devrait continuer à être amélioré dans le cadre du projet MOBIOPOR et du projet HYDROGEN. Une communication à un congrès international a aussi été soumise à la suite du master de M. Pujol (2010) sur les processus géothermiques.
Mes différents (co-)encadrements de travaux de recherche sont listés ci-dessous. L'année de soutenance ainsi que le pourcentage d'encadrement sont précisés pour chaque étudiant.

CO-DIRECTIONS DE THÈSE

TH1 L. ORGOGOZO. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (2006 - 2009) - 50 % (Directeur de Thèse : M.A. Buès, Pr.)

TH2 M. KORT. Dissolution en Milieux Poreux ou Fracturés : Couplage et Changement d'échelle. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (2007 - 2011

soutenance prévue fin 2011) - 40% (Directeur de Thèse : M.A. Buès, Pr.; Co-directeur de Thèse : C. Oltéan, MCF)

TH3 T. KONE. Biodégradation in situ de NAPL : interaction entre dissolution du polluant et croissance du biofilm. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (en préparation depuis octobre 2008) - 40% (Directeur de Thèse : M.A. Buès, Pr.; Co-directeur de Thèse : C. Oltéan, MCF)

TH4 M. BENIOUG. Modélisation expérimentale et numérique de la croissance de biofilm en milieu poreux. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine (démarrage en octobre 2011 - financement ANR) - 40% (Directeur de Thèse : M.A. Buès, Pr.; Co-directeur de Thèse : C. Oltéan, MCF)

POST-DOCTORANTS

PDC1 N. VERDON. Modélisation des écoulements gravitaires sous-marins, Financement ANR ANNOT3D, 14 mois : 2008-2009 (50%, co-encadrant : A. Le Solleuz, MCF)

PDC2 A.ENIGBO. Modélisation de la croissance bactérienne à l'échelle du pore : Application au stockage souterrain de l'hydrogène. 12 mois, démarrage en octobre 2011 (70%, co-encadrant : M. Quintard, DR CNRS)

MASTER

MA1 L. ORGOGOZO. Modélisation du transport de solutés biologiquement actifs au sein d'un milieu poreux incluant une phase biofilm. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2006 - 100%*

MA2 S. BERNARD. Mise en place d'un modèle expérimental de dissolution d'un milieu poreux. Utilisation du système eau/sel dans une cellule de Hele-Shaw. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2007 – 50%*

MA3 B. LECLERC. Dissolution en milieu poreux. Approche expérimentale de la cinétique de dissolution par l'étude du système sel-eau. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2007 (Co-encadrant : F. Golfier) – 50%*

MA4 J. CUNY. Modélisation du transport de soluté biologiquement actif au sein d'un milieu poreux incluant une phase biofilm - Automate cellulaire. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2007 – 100%*

MA5 E. GIUGLARIS. Modélisation du transport de soluté biologiquement actif au sein d'un milieu poreux incluant une phase biofilm – Modélisation de la croissance du biofilm. Changement d'échelle. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2008 - 100%*

MA6 A. HAZOUARD. Application de la technique de visualisation optique schlieren synthétique orientée sur l'arrière plan (Background Oriented Schlieren) au suivi de

champ des concentrations en NaCl d'un pilote expérimental de dissolution 2D. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2008 - 50%*

MA7 I. THEODORAKOPOULOS. Etude numérique de la dissolution au sein d'une fracture ou d'un tube capillaire à l'échelle du pore. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2008 - 100%*

MA8 D. DEQUIDT. Modélisation du transport de soluté biologiquement actif au sein d'un milieu poreux incluant une phase biofilm - Modélisation de la croissance par automate cellulaire. Changement d'échelle. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2009 - 100%*

MA9 P. LE PAPE. Tests préliminaires pour une expérience de transport réactif en milieux poreux. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2009 - 50%*

MA10 M-M. KOLLER. Etudes numériques d'écoulement gravitaire sous-marins. Modélisation de ruptures de barrage sous Comsol Multiphysics. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2009 - 50%*

MA11 A. AGAPITOVA. Transport en milieu poreux hétérogènes. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2009 - 100%*

MA12 M. PUJOL. Coupled flow/heat modelling using SEAWAT. Application to the prediction of the impact of reinjection on the temperatures of the Yarragadee confined aquifer used for geothermal application in Perth. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2010 - 100%*

MA13 E. CANCEL. Etude de la croissance de biofilm en milieu poreux - résolution Stokes en méthode spectrale. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2010 - 50%*

MA14 E. DAVY. Aspects analytiques de l'étude expérimentale du transport de NAPL dans un milieu poreux comportant une phase biofilm. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2010 - 50%*

MA15 E. KROURI. Traitement par oxydation chimique d'un sol contaminé aux HAP. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2010 - 50%*

MA16 B. LABARTHE. Bio-rémédiation des aquifères contaminés par des polluants organiques : développement d'un model expérimental. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2010 - 50%*

MA17 L. MINEO-KLEINER. Modélisation des écoulements gravitaires sous-marins par les équations de Saint-Venant. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2011 - 100%*

MA18 J. LECOMTE. Traitement par oxydation chimique d'un sol contaminé aux HAP. Master recherche "*Géosciences Génie Civil - Hydrogéomécanique*", *INPL, 2011 - 50%*

2. RESPONSABILITÉS SCIENTIFIQUES

Les différents programmes de recherche auxquels j'ai collaborés ou que j'ai coordonnés depuis 2004 sont détaillés ci-dessous :

PROGRAMMES NATIONAUX

Responsable d'une action thématique dans le cadre du LABEX 'RESSOURCES21' (démarrage 2011)
Je suis coordinateur de l'action thématique « *Modéliser la géométrie, le transport et les processus physico-chimiques en 3D aux échelles régionales* » et membre du bureau opérationnel dans le cadre du Laboratoire d'Excellence 'RESSOURCES21' (projet retenu et classé A+).
Porteur de projet dans le cadre du projet ANR MOBIOPOR (2010-2014)
Je suis impliqué à hauteur de 60% dans le projet MOBIOPOR : « *MOdelling of contaminant BIOdegradation in PORous media : from bacteria to the field-scale* » qui est financé dans le cadre du programme Blanc ANR sur la période 2010-2014 pour un montant total de 450 k€. Ce projet dont je suis le porteur est mené en collaboration avec le Laboratoire de Chimie Physique et Microbiologie pour l'Environnement (LCPME, UMR 7564) et l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT, UMR 5502).
Porteur de projet dans le cadre du programme national « EC2CO » (2007-2009)
J'étais impliqué à hauteur de 50% dans le projet « *Influence de la présence de biofilm sur les processus hydrodynamiques et géochimiques en milieu poreux* » qui était financé dans le cadre du programme national «EC2CO » (Ecosphère Continentale et Côtière) au niveau de l'action « CYTRIX » (Cycles hydro-biogéochimiques, transferts et impacts écotoxicologiques) pour un montant de 25 k€/an. Ce projet dont j'étais le responsable a été mené en collaboration avec le Centre de Géochimie de la Surface (CGS, UMR 7517).
Responsable de la partie Hydrodynamique dans le cadre du projet ANR ANNOT3D (2005-2009)
J'étais impliqué à hauteur de 60% dans le projet « *Caractérisation du contrôle de la tectonique sur les écoulements sous-marins. De l'étude de terrain à la modélisation numérique des processus. Exemple des Grès d'Annot* » (responsable : A. Le Solleuz, MCF laboratoire G2R) qui était financé dans le cadre du programme ANR Jeunes Chercheuses et Jeunes Chercheurs 2005 pour un montant de 120 k€ sur 3 ans (cf. Thématiques de recherche. *Ecoulements Gravitaires Sous-marins*).

PROGRAMMES LOCAUX

Responsable d'une action thématique dans le cadre du projet CARNOT 'HYDROGEN' (2011-2014)
Je suis impliqué dans le cadre du projet « *Phénomènes d'auto-organisation dans le transport bio-réactif multicomposant en milieux poreux : application aux stockages souterrains de l'hydrogène »*' qui regroupe 4 laboratoires (porteur M. Panfilov - LEMTA, LAEGO, LCPME, LRGP, IMFT) et financé à hauteur de 140 k€ dans le cadre des projets de recherche collaboratifs interfédérations de l'ICEEL (Institut Carnot). Je suis responsable de l'action

thématique 4 : « *Modélisation mathématique à l'échelle du pore de la croissance des bactéries méthanogènes et détermination des cinétiques apparentes à l'échelle macroscopique*'. Le financement d'un post-doctorat de un an est prévu dans le cadre de cette action.

Co-porteur d'un projet inter-laboratoires de la FR-EST (2009)

Le projet « *Développement d'un modèle 3D d'écoulement gravitaire sous-marin* » mené en collaboration avec A. Le Solleuz (G2R, INPL) et G. Caumon (CRPG, INPL) a été financé à hauteur de 9 k€.

Porteur d'un projet Jeunes Chercheurs (2007-2008) du Conseil Régional de Lorraine

Le projet « *Étude expérimentale et numérique du transport de soluté biologiquement actif au sein d'un milieu poreux incluant une phase biofilm* » a été financé (14,5 k€ en 2007 - 14 k€ en 2008) dans le cadre du soutien aux Jeunes Chercheurs du Conseil Régional de Lorraine.

Porteur d'un projet Jeunes Chercheurs 2005 INPL

Dans le cadre de l'appel à projet Jeunes chercheurs 2005 de l'INPL, une étude portant sur le phénomène de dissolution en milieu poreux couplé à des gradients de masse volumique a été financée à hauteur de 7 k€. Ce projet dont j'étais le responsable a été le résultat d'un partenariat entre le LAEGO (C. Oltéan, M. Buès), le LEMTA (O. Caballina, F. Lemoine) et le LEM (K. Devineau, J. Duval, F. Thomas).

GISFI : Groupement d'Intérêt Scientifique sur les Friches Industrielles

Articulé autour de quatre axes de recherche, nous apportons nos compétences dans l'axe 2, *i.e. :* "Transport des polluants", qui a pour objectif de quantifier les flux de matière susceptibles de polluer les sols et atteindre les eaux souterraines. Les résultats obtenus pourront ensuite être confrontés aux résultats expérimentaux fournis par les colonnes lysimétriques ou les parcelles mises en place sur le site pilote de l'ancienne cokerie d'Haumécourt, démantelée dans les années 80 et fortement contaminée encore en HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques).

3. RAYONNEMENT SCIENTIFIQUE

ACTIVITÉ DE COMITÉ DE LECTURE ET D'EXPERTISE

Je suis **rapporteur pour plusieurs revues internationales** autour de problématiques de transfert couplé en géosciences (*Transport in Porous Media, Geophysical Research Letters, Chemical Geology, Chemical Engineering Science, International Journal of Heat and Mass Transfer)* et plus particulièrement dans le domaine de l'hydrogéologie (*Water Resources Research, Water Research, Advances in Water Resources).* Les articles soumis à mon expertise concernent principalement l'application des méthodes de changement d'échelle et la modélisation des processus biologiques en milieu poreux. J'ai aussi été sollicité comme **expert dans le cadre des appels d'offre ANR** en 2009 (programme ECOTECH) et 2011 (programme Blanc).

Enfin, j'ai participé en tant qu'examinateur à 2 jurys de thèse (C. Cohen - *Modélisation et simulation de la stimulation des réservoirs pétroliers*, 2008 ; S. Letellier - *Dispersion à deux ou trois phases dans le cadre de l'ingénierie tissulaire du cartilage*, 2009) et j'ai été convié à 2 comités de pilotage de thèse (F. Henon - *Caractérisation et modélisation des écoulements gazeux au cours du compostage de déchets organiques en taille réelle : Application à l'expertise et l'optimisation de procédés*, 2007 ; J.M. Custos - *Modélisation du prélèvement d'eau et d'éléments en traces métalliques par les racines de plantes hyperaccumulatrices en conditions d'humidité non stationnaires*, 2010).

ANIMATION SCIENTIFIQUE

J'ai participé en 2010 au comité d'organisation des « *Journées d'Etude sur les Milieux Poreux* » accueilli sur Nancy conjointement par le LAEGO, le LEMTA et le LRGP. Ce congrès francophone organisé tous les deux ans rassemble la communauté scientifique mécanicienne travaillant sur la problématique des milieux poreux (environ 100-150 chercheurs). Dans le cadre de la Fête de la science, nous animons aussi régulièrement sur le site du GISFI à Haumécourt un atelier destiné à sensibiliser le grand public aux problématiques scientifiques liées au devenir des polluants dans les eaux souterraines. Des expériences en cellule de Hele-Shaw sont présentées pour illustrer les processus physiques.

SOCIÉTÉS SAVANTES

Membre de l'Association Française de Mécanique (depuis 2004)
Membre de l'Association Française de Vélocimétrie Laser (2005-2006)

FORMATIONS PROFESSIONNELLES

École d'automne CNRS de l'AFVL « Vélocimétrie et granulométrie laser », 12-16 septembre 2005, Saint-Pierre d'Oléron.

Formation permanente CNRS « Voyage au centre d'un biofilm : physico-chimie des exopolymères », 27-29 septembre 2011, Nancy.

V. LISTE DES PUBLICATIONS

ACL - ARTICLES DANS DES REVUES À COMITÉ DE LECTURE

[ACL18] **Golfier F.**, Wood B. and Quintard M. (**2011**) Comparison of theory and experiment for solute transport in weakly heterogeneous bimodal porous medium, *Advances in Water Resources*, 34(7), 899-914, doi:10.1016/j.advwatres .2011.04.019

[ACL17] Wood B., **Golfier F.** and Quintard M. (**2011**) Dispersive Transport in Porous Media with Biofilm: Local Mass Equilibrium in Simple Unit Cells, *International Journal of Environment and Waste Management*, 7(1-2), p. 24-48, doi: 10.1504/IJEWM.2011.037364.

[ACL16] Orgogozo L., **Golfier F.**, Buès M.A, Quintard M. (**2010**) Upscaling of Transport Processes in Porous Media with Biofilms in Non-Equilibrium Conditions, *Advances in Water Resources*, 33(5), 585-600. doi:10.1016/j.advwatres .2010.03.004.

[ACL15] Orgogozo L., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2010**) Modèles de transport d'espèces chimiques en solution dans des conduites colonisées par un biofilm : perspective d'applications en système d'eau potable, *European Journal of Water Quality*, 41(2), 77. doi:10.1051/water/2010006.

[ACL14] Orgogozo L., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2009**) Upscaling of transport processes in porous media with biofilms in equilibrium and non-equilibrium conditions, *Applicable Analysis*, 88(10-11), 1579-1588. doi: 10.1080/00036810902913862.

[ACL13] **Golfier F.**, Van de Steene L., Salvador S., Mermoud F., Oltean C. and Buès M.A.

(**2009**) Impact of peripheral fragmentation on the steam gasification of an isolated wood charcoal particle in a diffusion-controlled regime, *Fuel*, 88(8), 1498-1503.

[ACL12] Oltean C., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2009**) The Permeability Contrast Influence on the Plume Propagation with Variable Physical Properties, *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 13(4), 413-427. doi:10.3166/ejece.13.413-427.

[ACL11] **Golfier F.**, Wood B., Orgogozo L., Quintard M. and Buès M.A. (**2009**) Biofilms in Porous Media: Development of Macroscopic Transport Equations via Volume Averaging with Closure for Local Mass Equilibrium Conditions, *Advances in Water Resources*, 32(3), 463-485.

[ACL10] Oltean C., **Golfier F.** and Buès M.A (**2008**) Experimental and numerical study of the validity of Hele-Shaw cell as analogue model for variable-density flow in homogeneous porous media, *Advances in Water Resources*, 31(1), 82-95, doi: 10.1016/j.advwatres.2007.06.007.

[ACL9] **Golfier F.**, Quintard M., Cherblanc F., Zinn B. and Wood B. (**2007**) Comparison of theory and experiment for solute transport in highly heterogeneous porous medium, *Advances in Water Resources*, 30(11), 2235-2261, doi: 10.1016/j.advwatres.2007.05.004.

[ACL8] Mainhagu J., Oltéan C., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2007**) Measurement by Laser Induced Fluorescence on miscible density driven flows in a Hele-Shaw cell: settings and preliminary results, *Comptes-Rendus Mécanique* 335(2), 105-112.

[ACL7] Wood B., Radakovich K. and **Golfier F.** (**2007**) Effective Reaction at a Fluid-Solid Interface: Applications to Biotransformation in Porous Media, *Advances in Water Resources*, 30(6-7), 1630-1647. doi:10.1016/j.advwatres.2006.05.032

[ACL6] **Golfier F.**, Quintard M., Bazin B. and Lenormand R. (**2006**) Core-Scale Description of Porous Media Dissolution During Acid Injection – Part II: Calculation of the Effective Properties, *Computational and Applied Mathematics*, 25(1), 55-78.

[ACL5] Mermoud F., Salvador S., Van de Steene L. and **Golfier F.** (**2006**) Influence of the pyrolysis heating rate on the steam gasification rate of large wood char particles, *Fuel*, 85(10-11), 1473-1482.

[ACL4] Mermoud F., **Golfier F.**, Salvador S. and Van de Steene L. (**2006**) Experimental and Numerical Study of steam gasification of a single charcoal particle, *Combustion and Flame*, 145(1-2), 59-79.

[ACL3] **Golfier F.**, Bazin B., Lenormand R. and Quintard M. (**2004**) Core-Scale Description of Porous Media Dissolution During Acid Injection – Part I: Theoretical Development, *Computational and Applied Mathematics*, special issue on Multiscale Phenomena, 23(2-3), 173-194.

[ACL2] **Golfier F.**, Quintard M. and Whitaker S. (**2002**) Heat and Mass Transfer in Tubes: An Analysis Using the Method of Volume Averaging, *Journal of Porous Media*, 5, 169-185.

[ACL1] **Golfier F.**, Zarcone C., Bazin B., Lenormand R., Lasseux D. and Quintard, M. (**2002**) Modelling of the dissolution in porous media at the Darcy-scale: On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium, *Journal of Fluid Mechanics*, 457, 213-254.

AE - ARTICLES EN COURS D'ÉVALUATION OU DE SOUMISSION

[AE3] Mainhagu J., **Golfier F.**, Oltéan C. and Buès M.A. (**2011**) Gravity-driven contaminant transport from a point-source in a plane fracture, *Journal of Contaminant Hydrology* (en révision)

[AE2] **Golfier F.**, Lasseux D. and Quintard M. (**2011**) Questions on the Effective Permeability of a Vuggy porous Medium and the Use of a Darcy Brinkman Model, *Computational Geosciences* (en rédaction).

[AE1] Orgogozo L., **Golfier F.**, Buès M.A., Quintard, M. and Kone, T. (**2011**) A double-medium formulation for groundwater contaminant transport in presence of biofilm, *Water Resources Research* (en rédaction)

OS - OUVRAGES SCIENTIFIQUES OU CHAPITRES D'OUVRAGE

[OS2] **Golfier F.**, Bazin B., Lasseux D., Lenormand R. and Quintard M. (**2002**) A discussion on Darcy-scale modeling of porous media dissolution in homogeneous and heterogeneous systems, in *Developments in Water Science*, 47, Proceedings of the XIVth International Conference on Computational Methods in Water Resources (CMWR XIV), vol. 1, 615-622, edited by S.M. Hassanizadeh, R.J. Schotting, W.G. Gray and G.F. Pinder, Elsevier, Amsterdam.

[OS1] Wood B.D., Quintard M., **Golfier F.** and Whitaker S. (**2002**) Biofilms in Porous Media: Development of Macroscopic Transport Equations via Volume Averaging with Closure, in *Developments in Water Science*, 47, Proceedings of the XIVth International Conference on Computational Methods in Water Resources (CMWR XIV), vol. 2, 1195-1202, edited by S.M. Hassanizadeh, R.J. Schotting, W.G. Gray and G.F. Pinder, Elsevier, Amsterdam.

CAI - CONGRÈS INTERNATIONAL AVEC ACTES

[CAI18] Kone T., **Golfier F.**, Oltean C., Lefèvre E. and Buès M.A. (**2011**) Experimental study of coupling between bacterial growth and solute transport in biofilm coated porous media, Geophysical Research Abstracts, Vol. 13, EGU2011-8972, *EGU General Assembly* 2011.

[CAI17] Pujol M., Bolton G. and **Golfier F**. (**2010**) Flow and heat modelling of a Hot Sedimentary Aquifer (HSA) explored for geothermal heat production in the Perth Urban Area, Western Australia (WA), *Australian Geothermal Energy Conference* 2010, November 17 - 19, Adelaide Convention Centre (6 pages).

[CAI16] Orgogozo L., **Golfier F.**, Oltean C., Buès M.A. and Quintard M. (**2010**) A two equation model of biologically reactive solute transport in porous media, *CMWR, XVIII Int. Conf. on Water Resour.*, Barcelona (8 pages).

[CCI15] Trieuh H.T., Oltean C., **Golfier F.** and Buès M.A (**2010**), Laboratory and Numerical Investigations of Variable Density-Flow and Transport in Hele-Shaw Cell, *CMWR, XVIII Int. Conf. on Water Resour.*, Barcelona (8 pages).

[CAI14] Kort M., **Golfier F.**, Oltean C. and Buès M.A. (**2009**) Dissolution of an isolated fracture, *MatGeos'09, 2nd international workshop on mathematical geosciences*, December 7-8, Freiberg , Germany (8 pages).

[CAI13] Verdon N., **Golfier F.**, Le Solleuz A. (**2009**) A multilayer Saint Venant model with density variation effects applied to hyperpycnal currents, *Coupled Problems 2009*, June 8-10, Ischia Island, Italy (4 pages).

[CAI12] Orgogozo L., **Golfier F.**, Oltean C., Buès M.A., Wood B.D. and Quintard M. (**2009**) Numerical and experimental approach of bioreactive transport in porous medium including a biofilm phase, *The Fourth Biot Conference on Poromechanics*, June 8-10, Columbia University, New-York, USA (6 pages).

[CAI11] Febvay J.B., Oltean C., **Golfier F.**, Fabriol R. and Buès M.A. (**2008**) Hydrodynamic study of the long term evolution of a salt cavity following collapse, *Post-Mining 2008*, Feb. 6-8, Nancy, France (10 pages).

[CAI10] Tagutchou J.P., Van de Steene L., Salvador S., **Golfier F.**, Martin E. and Mermoud F. (**2007**) Fixed bed gasification of wood char: Thermal, chemical and mechanical characterisation, *Eurotherm 81, Reactive Heat Transfer in Porous Media*, June 4-6, Albi, France (7 pages).

[CAI9] Febvay J.B., Hamm V., Oltean C., **Golfier F.**, Fabriol R. and Buès M.A. (**2005**) Hydrodynamic study of the long term evolution of a salt cavity after collapsing, *Post-Mining 2005*, Nov. 16-17, Nancy, France (10 pages).

[CAI8] Wood B.D., **Golfier F.**, Majors P., Quintard M. and Whitaker S. (**2004**) Biofilms in porous media: Upscaling conservation equations and measurement of microbial distributions via NMR, *International Water Association Conference on Biofilms*, Las Vegas, NV., 24-26 Oct., 7 pages.

[CAI7] Mermoud F., **Golfier F.**, Van de Steene L., Salvador S. and Girard P. (**2004**) Factors influencing wood char gasification at macro-particle size, *Science in Thermal and Chemical Biomass Conversion Conference*, Vancouver island, Canada, 30 august.

[CAI6] **Golfier F.**, Mermoud F., Salvador S., Dirion J-L. and Van de Steene L. (**2004**) Modelling of char gasification at particle scale: how to select the best assumptions in the scope of fixed bed modelling, *2nd World Conference and Technology on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection*, Rome, Italy, 10-14 May, 4 pages.

[CAI5] Mermoud F., Van de Steene L., Girard P., **Golfier F.** and Salvador S. (**2004**) Factors influencing wood char gasification at macro-particle scale, *2nd World Conference and Technology on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection*, Rome, Italy, 10-14 May, 4 pages.

[CAI4] **Golfier F.**, Zarcone C., Lasseux D., Bazin B., Lenormand R. and Quintard M. (**2001**) Darcy-Scale and Core-Scale Modelling of Porous Media Dissolution, *3rd Int. Symp. on Env. Hydraulics*, Tempe (AZ), 6 pages.

[CAI3] Pomés V., Bazin B., **Golfier F.**, Zarcone C., Lenormand R. and Quintard M. (**2001**) On the Use of Upscaling Methods to Describe Acid Injection in Carbonates, *SPE paper 71511*, presented at New Orleans, Louisiana, 30 Sept.-3 Oct., 11 pages.

[CAI2] **Golfier F.**, Lasseux D., Zarcone C., Lenormand R., Bazin B. and Quintard M. (**2001**) Acidizing Carbonate Reservoirs: Numerical Modelling of Wormhole, *SPE paper 68922*, presented at the Eur. Form. Damage Conf. held in The Hague, 21-22 May, 11 pages.

[CAI1] **Golfier F.**, Lasseux D., Bazin B. and Quintard M. (**2000**) Micro-Scale Diffusion Controlled Dissolution – a Physical Analysis of Instability Based on Numerical Modelling of Dissolution Patterns, in *Proceedings of the 7th Eur. Conf. on the Mathematics of Oil Recovery*, Baveno (Italy), V28, 7 pages.

CAN - CONGRÈS NATIONAL AVEC ACTES

[CAN5] **Golfier F**. (**2010**) Influence de la présence de biofilm sur les processus hydrodynamiques et géochimiques en milieu poreux, *Colloque restitution EC2CO*, 23-25 Novembre, Toulouse, poster (8 pages).

[CAN4] Oltean C., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2008**) The Permeability Contrast Influence on the Plume Propagation with Variable Physical Properties, *XXIVeme Rencontres Universitaires de Génie Civil*, June 4-6, Nancy, France (8 pages).

[CAN3] Orgogozo L., Golfier F., Oltéan C., Buès M.A., Wood B.D. and Quintard M. (**2007**) Modélisation du transport actif de soluté en milieu poreux en présence d'un biofilm, *18ème Congrès de Mécanique*, 27-31 August, Grenoble (6 pages).

[CAN2] **Golfier F.**, Mermoud F., Salvador S., Dirion J-L. and Van de Steene L. (**2004**) Etude préliminaire à l'échelle du pore en vue du développement d'un modèle macroscopique d'un gazogène en lit fixe et comparaison avec les expériences, *Congrès Français de Thermique SFT 2004*, Giens, 25-28 Mai, 6 pages.

[CAN1] **Golfier F.**, Lasseux D. and Quintard M. (**1999**) Etude du Problème de Darcy-Brinkman dans une Structure Fluide / Poreux, *14ème Congrès de Mécanique*, Toulouse, 6 pages.

CSA - CONGRÈS SANS ACTES OU SANS COMITÉS DE LECTURE

[CSA28] Kone T., **Golfier F.**, Oltean C., Buès M.A. and Lefèvre E. (2011) Experimental modelling of reactive transport of an organic solute in biofilm-coated porous media, *INTERPORE2011, 3thd International Conference on Porous Media*, 29-31 march, Bordeaux.

[CSA27] Le Solleuz A., **Golfier F.** and Verdon N. (**2010**) A 2D numerical approach to predict sedimentary deposits of submarine gravity flow based on a Saint-Venant model with density variation effects. Example of Annot Basin (SE, France), Poster presented at the *AGU Fall Meeting* (San Francisco), 12-17 december.

[CSA26] Orgogozo L., **Golfier F.**, Buès M.A. and Quintard M. (**2010**) Transport Biologiquement Actif en Milieu Poreux Colonisé par un Biofilm : Modèle à 2 Equations, *9ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Nancy, 20-21 octobre.

[CSA25] Kort M., **Golfier F.**, Oltéan C., Buès M.A. (**2010**) Dissolution d'une Fracture Isolée, *9ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Nancy, 20-21 octobre.

[CSA24] Orgogozo L., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2009**) Modèles de transport d'espèces chimiques en solution dans des conduites colonisées par un biofilm : perspective d'applications en système d'eau potable, *Colloque ASEES : Interactions Eaux-Matériaux. Impacts Potentiels sur la Santé*, Paris, 25-26 novembre (8 pages).

[CSA23] Trieu H.T., Mainhagu J., Oltéan C., **Golfier F.** and Buès M.A. (**2009**) Transport de Polluants Inertes Miscibles à l'Eau et à Propriétés Physiques Variables, *8ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Paris, 21-22 octobre.

[CSA22] **Golfier F.**, Quintard M. and Wood B. (**2009**) Etude du Transport en Milieu Faiblement Hétérogène dans le cas d'une Injection Pulsée, *8ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Paris, 21-22 octobre.

[CSA21] Verdon N., **Golfier F.** and Le Solleuz A. (**2009**) A multilayer Saint Venant model with density variation effects applied to 2D submarine flows, *European Geosciences Union*, General Assembly 2009, 19 – 24 April, Vienna, Austria.

[CSA20] **Golfier F.**, Wood B. and Quintard M. (**2008**) Comparison of theory and experiment for solute transport in bimodal heterogeneous porous medium, *Conference on Scaling Up and Modeling for Transport and Flow in Porous Media*, October 13-16, Dubrovnik, Croatia.

[CSA19] Orgogozo L., **Golfier F.**, Buès M.A., Wood B.D. and Quintard M. (**2008**) Upscaling of transport Processes in porous media with biofilm in equilibrium and non equilibrium conditions, *Conference on Scaling Up and Modeling for Transport and Flow in Porous Media*, October 13-16, Dubrovnik, Croatia.

[CSA18] Orgogozo L., **Golfier F.**, Buès M.A., Wood B.D. and Quintard M. (**2008**) Modelling of reactive transport processes in porous media including a biofilm phase in non equilibrium conditions, *Euromech Colloquium, Nonlinear Mechanics of Multiphase Flow in Porous Media*, June 9-12, Nancy, France.

[CSA17] **Golfier F.**, Cuny J., Oltean C. and Buès M.A. (**2007**) Impact de la croissance de biofilm en milieu poreux sur les processus hydrodynamiques, *7ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Lyon, 24-25 octobre.

[CSA16] Cohen C., Ding D., Bazin B., **Golfier F.** and Quintard M. (**2007**) Dissolution de milieux poreux: modélisation multi-échelle et instabilités, *18ème Congrès Français de Mécanique*, conf. Invité, session Milieux Poreux, Couplages multiphysiques, 27-31 August, Grenoble.

[CSA15] Mainhagu J., Oltean C., **Golfier F.**, Buès M.A. (**2005**) Ecoulement gravitaire en milieu poreux : étude expérimentale, *7ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Bordeaux, 26-27 octobre.

[CSA14] Febvay J.B., Hamm V., Oltean C., **Golfier F.**, Fabriol R., Buès M.A. (**2005**), Evolution à long terme d'une cavité dans le sel après effondrement : aspect hydrodynamique, *7ème journée d'étude sur les milieux poreux*, Bordeaux, 26-27 octobre.

[CSA13] Wood B.D., Quintard M., **Golfier F.**, Tartakovski A. and Whitaker S. (**2005**) Upscaling Biofilm Processes in Porous Media, *SIAM Conference on Mathematical and Computational Issues in the Geosciences*, Avignon

[CSA12] **Golfier F.**, Quintard M. (**2004**) Darcy-scale modelling of dissolution patterns in porous media, *16th ALERT – Geomaterials Workshop*, Aussois, France, 11-13 Oct.

[CSA11] Wood B., Quintard M., **Golfier F.**, Cherblanc F., Harvey C.F. (**2004**) A Volume Averaging Approach for Transport in Bimodal Heterogeneous Porous Media, *The Gordon Research Conference on 'Flow and Transport in Permeable Media'*, Oxford, UK, 11-16 July.

[CSA10] **Golfier F.**, Bazin B., Lenormand R. and Quintard M. (**2004**) Dissolution in porous media: upscaling, instabilities, and heterogeneity effects, *ICTAM 2004*, Warsaw,

Poland, 15-21 August.

[CSA9] **Golfier F.**, Bazin B., Lenormand R. and Quintard M. (**2003**) Problems in Upscaling Dissolution Processes in Porous Media, *International Conference on Gas-Water-Rock Interactions Induced by Reservoir Exploitation, CO2 Sequestration, and other Geological Storage*, November, Rueil-Malmaison, France.

[CSA8] **Golfier F.**, Wood B.D. and Cherblanc F. (**2003**) Upscaling Transport in Two-region Bimodal Porous Media: Comparison of Theory and Experiment, *SIAM Conference on Mathematical and Computational Issues in the Geosciences* (GS03), Austin, Texas, 17-20 march.

[CSA7] Wood B.D., **Golfier F.**, Quintard M. and Whitaker S. (**2002**) Upscaling Biofilm Processes from the Pore-scale to the Darcy-scale: A report on continuing theoretical and experimental research, Poster presented at the *AGU Fall Meeting* (San Francisco).

[CSA6] **Golfier F.**, Quintard M. (2001) Porous Media Dissolution Patterns and Up-Scaling, *Sixth SIAM Conference on Mathematical and Computational Issues in the Geosciences*, Boulder, USA

[CSA5] **Golfier F.**, Quintard M. and Whitaker S. (**2001**) Mass Exchange Coefficients for Flow in Porous Media: Results for a Bundle of Capillary Tubes, *AGU Spring Meeting*, Boston. (conf. invited)

[CSA4] **Golfier F.**, Zarcone C., Bazin B., and Quintard M. (**2000**) Carbonate Dissolution: Numerical Modelling of Wormhole Propagation and Comparison to Experiments, Poster presented at the *AGU Fall Meeting* (San Francisco).

[CSA3] **Golfier F.**, Bazin B., Zarcone C., Lenormand R., Lasseux D., Quintard M. (**2000**) Dissolution of porous media : Modelling the wormholing process. 2nd Int. Conf. On Computer Methods for Engineering in Porous Media, Besançon, Juillet.

[CSA2] Lasseux D., **Golfier F.**, Quintard M., Bertin H. (**2000**) On the determination of effective permeability of vuggy porous media. *2nd Int. Conf. On Computer Methods for Engineering in Porous Media*, Besançon, Juillet.

[CSA1] **Golfier F.**, Bazin B., Zarcone C., Lenormand R., Lasseux D., Quintard M. (**2000**) Experimental Study and Numerical Modeling of Wormhole Formation in Porous Media, Geophysical Research Abstracts, Volume 2, *XXV EGS General Assembly*.

SE - SÉMINAIRES ET JOURNÉES D'ÉTUDE

[SE10] **Golfier F.** (**2007**) Transport en milieux poreux en présence de biofilms : de l'échelle du pore à l'échelle macroscopique, *séminaire interne CGS*, Strasbourg, 16 octobre.

[SE9] **Golfier F.** (**2007**) Biofilm en milieux poreux modélisation et changement d'échelle, *séminaire interne LTHE*, Grenoble, 8 juin.

[SE8] **Golfier F.** (2007) Modélisation macroscopique du transport actif de soluté en milieu poreux en présence d'un biofilm, *séminaire interne IMFT*, Toulouse, 16 février.

[SE7] Commandre J.M., **Golfier F.**, Mermoud F., Dirion J.L. and Salvador S. (**2005**) Modelling of wood char gasification at particle scale and at fixed bed scale, Lift

Off mid-term meeting, European commission, Brussels, Belgium, 15 mars.

[SE6] Quintard M., Wood B.D., **Golfier F.** and Whitaker, S. (**2004**) Modélisation des Biofilms, *Journée FERMAT* (Fédération pour l'Etude des Réacteurs et la Maîtrise des Transferts), Toulouse.

[SE5] **Golfier F.**, Salavador, S. and Dirion J.L. (**2004**) Gasification du char – modélisation à l'échelle de la particule et du réacteur, *séminaire interne EMAC*, Albi, 12 février.

[SE4] **Golfier F.**, Wood B.D., Whitaker S. and Quintard M. (**2004**) Biofilms dans les milieux poreux – Développement des équations macroscopiques par changement d'échelle, *Journée PNRH*, Bordeaux, 20-21 janvier.

[SE3] Quintard M., **Golfier F.**, Bazin B., Lenormand R. and Lasseux D. (**2004**) Instabilités de dissolution en milieux poreux, *Journée PNRH*, Bordeaux, 20-21 janvier.

[SE2] **Golfier F.** (**2003**) Char Gasification III – Modelling approach, "Staged Gasification", *technical seminar*, Albi, 15-16 septembre.

[SE1] **Golfier F.** and Quintard M. (**2000**) Dissolution in Porous Medium, *Journée ERCOFTAC* (European Research Community on Flow, Turbulence and Combustion), Toulouse, 14 april.

PRÉAMBULE

I. QUELQUES MOTS SUR MON PARCOURS SCIENTIFIQUE

Mon travail sur les milieux poreux a réellement démarré il y a un peu plus de dix ans de cela, en 1998 lors de mon stage ingénieur de 3eme année à Air Liquide sur la modélisation de l'écoulement et du transport avec adsorption en milieu poreux. Mon responsable de stage au LEPT n'était alors autre que Michel Quintard…

C'est ainsi qu'un an plus tard je débutais sous sa direction mes travaux de doctorat, portant sur l'étude de la dissolution en milieu poreux. Cette thèse, financée par l'Institut Français du Pétrole, fut effectuée au sein du Groupe d'Etudes sur les Milieux Poreux de l'IMFT. Mon travail comprenait des aspects à la fois théorique et numérique et était déjà directement relié au domaine des géosciences puisque, *in fine*, l'objectif de cette étude concernait le développement des méthodes de stimulation acide en génie pétrolier. C'est là que je découvris les problématiques multi-échelle des milieux poreux et que je me formais à la méthode de prise de moyenne volumique qui constitua par la suite le cœur de mes travaux de recherche.

Désireux de continuer dans cette voie, je partis effectuer un séjour de post-doctorat d'un an à *l'Oregon State University* (OSU) en 2002. Sous la direction de Brian Wood, je commençai à travailler sur l'influence des hétérogénéités - inhérentes à tout milieu géologique - sur les processus de transport à grande échelle et le comportement d'un polluant miscible. C'est aussi sous sa direction que je m'intéressai à la complexité des biofilms et des mécanismes biologique en milieu poreux qui allait petit à petit prendre une part de plus en plus importante dans mes travaux. Ce nouvel axe de recherche offrait des défis importants à relever car encore peu exploré et il couplait des problèmes issus de la mécanique à la complexité des milieux vivants.

En 2003, je retrouvais la France et plus précisément le LGPSD à l'École des Mines d'Albi-Carmaux et où je me penchais sur la gazéification du charbon. Ce travail qui s'insérait dans le cadre du projet européen LIFTOF, en collaboration avec le CIRAD qui s'occupait en particulier de la partie expérimentale, avait pour objectif l'optimisation d'un nouveau gazogène à lit fixe. Je devais résoudre un problème de transport réactif en milieu poreux incluant comme pour la dissolution une variation de la géométrie et des propriétés hydrodynamiques au cours du temps mais auquel venait s'ajouter des complexités supplémentaires liées à l'écoulement compressible des gaz et au transfert couplé de masse et de chaleur. Je travaillais sur ces aspects en collaboration avec Sylvain Salvador et Laurent

Van de Steene et menais à bien le développement d'un modèle à l'échelle de la particule de charbon qui permit d'analyser et d'expliquer les comportements expérimentaux observés.

Mon recrutement en septembre 2004 au sein de l'Ecole Nationale Supérieure de Géologie et dans l'équipe « *Transferts en milieux poreux* » du LAEGO, sous l'égide de Michel Buès, m'amena à orienter plus fortement les applications de mes recherches et de mon enseignement dans le cadre des géosciences. Ma participation actuelle autour de la modélisation du transport de fluides minéralisateurs dans le cadre du LABEX « Ressources 21 » ainsi que l'intégration de notre équipe dans le futur laboratoire GEORESSOURCES devrait accroître encore plus cette orientation dans le futur. Tout en continuant d'approfondir ma recherche sur les méthodes de changement d'échelle et la prise en compte des mécanismes bio-géochimiques, j'ai commencé aussi à m'intéresser en parallèle à l'influence de la variabilité des propriétés physiques du fluide lors de mon arrivée au LAEGO ; les écoulements gravitaires en milieu poreux constituant une des thématiques de recherche majeures de l'équipe. Je terminerai ce bref descriptif par mon travail récent sur le couplage de ces effets gravitaires avec les processus de dissolution qui constitue un retour à mes travaux de jeunesse et ferme d'une certaine manière la boucle …

Comme on peut le voir au travers de ce bref résumé de mon parcours scientifique, mon travail sur la modélisation du transport multi-échelle en milieu poreux avec un intérêt de plus en poussé pour l'intégration des processus réactifs constitue le fil rouge de mes activités. C'est donc tout naturellement que j'ai axé mon HDR autour de cette thématique.

II. OBJECTIFS DE RECHERCHE ET PROBLÉMATIQUE D'ÉTUDE

L'augmentation récurrente des besoins en ressources fossiles tant minérales qu'énergétiques (métaux de base, pétrole, gaz) ainsi qu'une demande sociétale de plus en forte pour une meilleure politique environnementale ont apporté ces dernières années un éclairage nouveau sur l'exploitation et l'utilisation durable du sous-sol. Afin de faire face aux défis technologiques liés à ces nouveaux besoins : utilisation de ressources encore inexploitées, dépollution de nappes fortement contaminées… et à la nécessité de disposer d'outils prédictifs permettant d'appréhender les solutions envisagés, d'importants progrès dans la compréhension et la description des processus de transferts couplés en milieu poreux restent encore à accomplir.

À ce titre, mes différentes activités de recherche s'insèrent dans une problématique axée autour du *transport multi-échelle en milieu poreux :*

- apports théorique et numérique au niveau de la modélisation multi-échelle,
- développements ciblés vers les géosciences (en particulier dans une perspective environnementale) en intégrant les processus bio-physico-chimiques.

Comme souligné ci-dessus, les applications de ces travaux sont directement liées à l'utilisation des ressources du sous-sol que ce soit dans le cadre de l'exploitation des aquifères

(alimentation en eau potable, protection des nappes, géothermie), en génie pétrolier (méthode de stimulation acide) ou encore pour le stockage souterrain (stockage de H_2). On peut aussi citer certains débouchés en génie des procédés (*e.g.* ; bioréacteur, gazéification en lit fixe…). Plus spécifiquement, mes activités de recherche portent sur le transport et transfert de fluides géologiques dans les sols (transport réactif ou non en milieux poreux saturé, biodégradation, dissolution des polluants, ...).

D'un point de vue méthodologique, on retrouve dans cette thématique les problèmes usuels de la modélisation en milieux poreux : aspects multi-échelle, modélisation directe, changement d'échelle, validation et confrontation aux résultats expérimentaux. Les aspects principaux des problèmes à traiter sont liés:

(i) aux échanges entre phases (aspects non-équilibre local ou équilibre local),

(ii) aux couplages (effet des autres mécanismes de transport sur les propriétés effectives d'une équation de bilan),

(iii) à la présence de termes sources de réaction (linéaire, non-linéaire),

(iv) à la prise en compte de l'évolution éventuelle de la structure poreuse : effet d'historicité.

Après une brève introduction aux problématiques liées aux aspects multi-échelle et sur le formalisme théorique (méthode de prise de moyenne volumique) permettant d'y répondre, mes différentes activités scientifiques seront présentées selon trois axes :

- Influence des hétérogénéités sur les processus de transfert
- Prise en compte des effets de couplage en transport réactif
- Impact des processus biologiques sur l'hydrodynamique et le transport

Je terminerai par un survol des défis qui restent à surmonter et des perspectives à venir de mon travail de recherche.

CHAPITRE 1

TRANSPORT MULTI-ÉCHELLE : MÉTHODE DE CHANGEMENT D'ÉCHELLE ET FORMALISME THÉORIQUE

I. UNE PROBLÉMATIQUE MULTI-ÉCHELLE

Une grande part de la difficulté liée à la modélisation des processus d'écoulement et de transport en milieux poreux concerne l'aspect multi-échelle du phénomène.

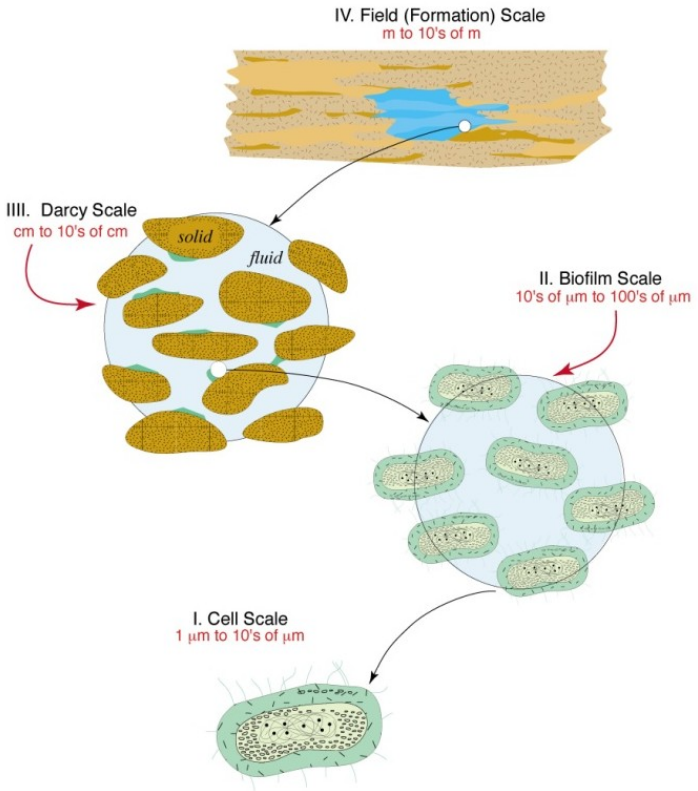


Figure 1. Exemple de système multi-échelle : application à la bioremédiation in situ

En pratique, cela se traduit par l'existence de plusieurs échelles de longueur distinctes caractérisant les différents processus physiques, chimiques et biologiques mis en jeu dans tout

système réel. La Figure 1 illustre la complexité d'un tel problème en termes d'échelles et de processus. Nous avons supposé ici que les différents niveaux de ce système hiérarchisé étaient suffisamment disparates pour qu'ils soient représentés de manière discrète. Le schéma pris pour exemple représente un problème classique de bioremédiation *in situ* dans lequel le processus complexe d'atténuation naturelle des polluants organiques s'effectue dans un aquifère hétérogène. Les phénomènes mis en jeu vont ainsi de l'échelle de la bactérie (échelle I) aux hétérogénéités à grandes échelles de l'aquifère (échelle IV). À cette disparité des échelles vient s'ajouter une disparité des processus. En fait, si l'on se place d'un point de vue physique, à la plus grande échelle ou à celle du milieu poreux homogène (intermédiaire entre l'échelle III et IV), le transport d'espèces chimiques et de bactéries est habituellement résolu comme un processus continu. Les distinctions entre les phases fluide, solide et biofilm ne sont pas traitées de manière indépendante. Toutefois, les processus considérés à cette échelle peuvent être dominés par l'adsorption et les phénomènes de réaction intracellulaires qui se manifestent à la plus petite échelle (échelle I, Figure 1). On se trouve ainsi en présence de processus fortement couplés entre les différents niveaux d'observation.

L'objectif général de mes activités de recherche est de mieux comprendre l'influence des effets microscopiques (tortuosité, réaction aux interfaces fluides/roches, transfert de masse interphase, …), aussi bien sur l'écoulement macroscopique que sur les propriétés de transport du soluté considéré, afin de traduire ce comportement dans les modèles macroscopiques. Bien qu'un travail substantiel ait été accompli de manière indépendante aux différentes échelles et que de nouvelles technologies aient récemment permis d'acquérir des mesures des processus microscopiques avec une résolution sans précédent (*e.g.*, microtomographie, RMN, microPIV, microscopie confocale, …) très peu d'efforts ont été accomplis pour intégrer l'information concernant les mécanismes bio-physico-chimiques impliqués au travers les différentes échelles. S'il est vrai que l'intérêt porté aux processus réactifs en milieu poreux a conduit au développement d'un grand nombre de modèles mathématiques pour décrire le transport de soluté, ceux-ci sont généralement basés sur : (i) l'identification des processus principaux de réaction et de transfert de masse qui peuvent être impliqués dans le système étudié et (ii) la formulation du modèle mathématique à l'échelle de Darcy (ou du V.E.R.) à partir du bilan de masse des processus pris en compte. Bien que la plupart de ces modèles soient mécanistiques dans le sens où ils essaient d'identifier les processus importants mis en jeu (*e.g.*, limitation par transfert de masse, comportement proche de l'équilibre thermodynamique), ils ne sont pas obtenus à partir d'un formalisme rigoureux qui moyenne les équations à l'échelle inférieure. Cela signifie que les paramètres à l'échelle de Darcy sont supposés existés *a priori* et ne sont pas reliés d'une quelconque manière à la structure microscopique du milieu poreux. Les coefficients effectifs (*e.g.* : le tenseur de dispersion) apparaissant dans le système d'équations macroscopiques ont alors besoin d'être calés ou mesurés directement avec les difficultés expérimentales inhérentes à tous milieux géologiques.

II. LA MÉTHODE DE PRISE DE MOYENNE VOLUMIQUE

Une solution pour résoudre ce problème de disparité des échelles est d'appliquer des méthodes de changement d'échelle qui permettent de conserver au niveau macroscopique les

principales caractéristiques des processus physiques, biologiques et chimiques se produisant aux échelles inférieures. Ceci est effectué à travers le développement d'équations de transport macroscopique exprimées en terme des moyennes spatiales (ou d'ensemble) des processus eux-mêmes.

La *prise de moyenne volumique* (*e.g.* : Whitaker, 1999), de même que l'*homogénéisation* (Sanchez-Palencia et Sanchez Hubert, 1992), est une de ces méthodes. Elle est basée sur l'introduction d'un opérateur de moyenne, noté < >. Celui-ci est défini sur un volume élémentaire, appelé V.E.R. (Volume Elémentaire Représentatif - cf. Figure 1, échelle III par exemple), 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 doit rester très petite devant la longueur caractéristique de l'échelle supérieure. Toujours pour la même situation de référence, sous réserve que cette hypothèse soit vérifiée, on peut ainsi définir à l'échelle du pore des concentrations moyennes de soluté (noté A) associées à la phase fluide (notée γ) ou biofilm (notée ω). On a ainsi :

$$\langle c_{A\omega} \rangle = \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{V_\omega(t)} c_{A\omega} \, dV. \tag{1}$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle = \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{V_\gamma(t)} c_{A\gamma} \, dV. \tag{2}$$

où $\langle c_{A\omega} \rangle$ et $\langle c_{A\gamma} \rangle$ (resp. $c_{A\omega}$ et $c_{A\gamma}$) représentent les concentrations moyennes (resp. microscopiques) du soluté A pour chacune des deux phases, $\mathcal{V}$ le volume de prise de moyenne associé à l'échelle du pore (échelle III, Figure 1) et V_ω et V_γ les sous-volumes associés à chacune des phases.

On peut introduire de manière similaire les concentrations moyennes intrinsèques $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$ et $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ qui sont définies sur l'espace poral plutôt que sur le volume total du milieu poreux $\mathcal{V}$. Celles-ci sont reliées aux moyennes précédentes de la manière suivante :

$$\langle c_{A\omega} \rangle = \varepsilon_\omega \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \tag{3}$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle = \varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \tag{4}$$

où ε_ω et ε_γ représentent les fractions volumiques de chacune des deux phases. Dans ces conditions, les grandeurs microscopiques peuvent s'écrire sous la forme d'une décomposition spatiale entre leurs valeurs moyennes et un terme de fluctuation microscopique appelé déviation :

$$c_{A\omega} = \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} \tag{5}$$

$$c_{A\gamma} \quad = \quad \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \tilde{c}_{A\gamma} \tag{6}$$

telles que

$$\left\langle \tilde{c}_{A\gamma} \right\rangle = 0 \quad ; \quad \left\langle \tilde{c}_{A\omega} \right\rangle = 0 \tag{7}$$

L'opérateur de moyenne $\langle \ \rangle$ est ensuite appliqué aux équations gouvernant le phénomène considéré à l'échelle microscopique. Associé à l'utilisation de différents théorèmes régissant les relations entre l'opérateur de prise de moyenne volumique et les opérateurs classiquement utilisés en physique (gradient spatial, divergence, dérivée temporelle), il permet d'exprimer les équations de conservation à l'échelle d'observation considérée. On obtient ainsi:

$$\left\langle \mathcal{L}\left(c_{A\gamma}, c_{A\omega}\right) \right\rangle = \mathcal{L}^{macro}\left(\left\langle c_{A\gamma} \right\rangle^{\gamma}, \left\langle c_{A\omega} \right\rangle^{\omega}\right) + \mathcal{L}^{micro}\left(\tilde{c}_{A\gamma}, \tilde{c}_{A\omega}\right) \tag{8}$$

où $\mathcal{L}$ représente le système initial d'équations à l'échelle du pore et $\mathcal{L}^{macro}$ et $\mathcal{L}^{micro}$ les problèmes résultants de l'application de l'opérateur de moyenne. À ce stade, les nouvelles équations de conservation ne sont pas encore fermées dans le sens qu'elles dépendent encore de paramètres à petite échelle (*i.e.*, les termes de déviation). La fermeture s'obtient en linéarisant ces termes de déviations par rapport aux grandeurs macroscopique ou termes sources qui contrôlent les processus à petite échelle. Dans l'exemple considéré, ces relations de fermeture prennent la forme suivante :

$$\begin{aligned} \tilde{c}_{A\gamma} &= \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + r_{A\gamma}\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} - \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}\right) \\ \tilde{c}_{A\omega} &= \mathbf{b}_{A\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{b}_{A\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + r_{A\omega}\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} - \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}\right) \end{aligned} \tag{9}$$

de sorte que nous obtenons finalement en introduisant ces expressions dans l'Eq. (8) :

$$\left\langle \mathcal{L}\left(c_{A\gamma}, c_{A\omega}\right) \right\rangle = \mathcal{L}^{*}\left(\left\langle c_{A\gamma} \right\rangle^{\gamma}, \left\langle c_{A\omega} \right\rangle^{\omega}\right) \tag{10}$$

avec $\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}$, $\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$, $\mathbf{b}_{A\gamma\omega}$, $\mathbf{b}_{A\omega\omega}$, $r_{A\gamma}$ et $r_{A\omega}$, les variables de fermeture et $\mathcal{L}^{*}$ le système d'équations macroscopiques dans lesquels n'apparaissent plus que les concentrations macroscopiques et des coefficients effectifs fonctions de ces variables de fermeture.

À ce stade, deux procédures s'offrent à nous:

1. Si les données à l'échelle du pore ne sont pas connues, la formulation macroscopique issue du changement d'échelle peut être appliquée de manière heuristique et les coefficients effectifs qui interviennent dans ces équations doivent alors être calés ou estimés à partir de résultats expérimentaux,

2. Si la géométrie à petite échelle a été caractérisée ou que du moins des informations sur les grandeurs microscopiques sont disponibles (à l'aide par exemple de mesures expérimentales tels que RMN, tomographie ou encore visualisation optique dans le cas

de milieux transparents), les paramètres macroscopiques peuvent alors être calculés mathématiquement à partir de la résolution des problèmes dits de fermeture.

En effet, en soustrayant les équations macroscopiques non fermées, Eq. (8), du problème initial à l'échelle du pore $\mathcal{L}\left(c_{A\gamma}, c_{A\omega}\right)$, il est possible d'obtenir le système d'équations associé aux déviations spatiales $\mathcal{L}^{dev}\left(\tilde{c}_{A\omega}\right)$. En introduisant les relations de fermeture présentées précédemment, Eq. (9), on peut alors déterminer les différents problèmes mathématiques dont les variables de fermeture sont solutions, tel que pour la phase ω, nous avons :

$$\mathcal{L}^{dev}\left(\tilde{c}_{A\omega}\right) = \mathcal{L}_{\omega\gamma}\left(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}\right)\cdot\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma} + \mathcal{L}_{\omega\omega}\left(\mathbf{b}_{A\omega\omega}\right)\cdot\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega} + \mathcal{L}_{\omega}\left(r_{A\omega}\right)\left(\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega} - \langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma}\right) = 0 \quad (11)$$

ce qui implique

$$\mathcal{L}_{\omega\gamma}\left(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}\right) = 0 \ ; \ \mathcal{L}_{\omega\omega}\left(\mathbf{b}_{A\omega\omega}\right) = 0 \ ; \ \mathcal{L}_{\omega}\left(r_{A\omega}\right) = 0 \quad (12)$$

où $\mathcal{L}_{\omega\gamma}$, $\mathcal{L}_{\omega\omega}$ et $\mathcal{L}_{\omega}$ sont les problèmes de fermeture associés à $\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$, $\mathbf{b}_{A\omega\omega}$ et $r_{A\omega}$, respectivement.

Ces problèmes aux limites sont définis sur le volume de prise de moyenne ou V.E.R (Volume Elémentaire Représentatif) et résolus en pratique sur une cellule unitaire périodique représentative des propriétés du milieu à l'échelle microscopique. La quantité d'information à petite échelle (fraction volumique, longueur de corrélation, …) requise ne peut pas être déterminée *a priori*. Toutefois, on peut noter que les termes de fluctuation $\tilde{c}_{A\gamma}$ et $\tilde{c}_{A\omega}$ apparaissent uniquement via des termes intégraux. Autrement dit, les propriétés effectives (qui dépendent des variables de fermeture) ne sont pas particulièrement sensibles au choix des conditions limites pourvu que le volume de moyenne, V, soit suffisamment grand devant les longueurs caractéristiques $\square_{\omega}$ and $\square_{\gamma}$ (Ochoa-Tapia *et al.*, 1994). En conséquence, n'importe quelle solution pour $\tilde{c}_{A\gamma}$ et $\tilde{c}_{A\omega}$ qui produit des valeurs correctes des intégrales surfaciques peut être utilisée pour évaluer les coefficients effectifs du milieu poreux considéré. Il est ainsi généralement admis de considérer des limites périodiques aux frontières externes de la cellule unitaire (sauf cas particulier, *e.g.* milieu fracturé…) parce qu'elles imposent des contraintes moins fortes sur la solution que ne le feraient, par exemple des conditions de Dirichlet. (cf. une discussion sur ce point dans [ACL11]). À ce stade, les champs solutions de $\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}$, $\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$, $\mathbf{b}_{A\gamma\omega}$, $\mathbf{b}_{A\omega\omega}$, $r_{A\gamma}$ et $r_{A\omega}$ restent encore définis à une constante près. Une dernière condition est nécessaire pour fermer les problèmes et celle-ci est imposée à partir de l'Eq. (7), *i.e.* par une contrainte de moyenne nulle par phase.

Développée par Slattery (1967), Whitaker (1967) ou Marle (1967), cette méthode a initialement été appliquée au passage de l'échelle du pore à celle de Darcy dans le cas d'écoulement monophasique (Whitaker, 1986), ou de transport de soluté (Eidsath *et al.*, 1983). Son utilisation a par la suite été étendue à des problèmes de plus en plus complexe tant réactifs (*e.g.*, Goyeau *et al.*, 1999 ; Quintard et Whitaker, 1999a) que multiphasiques (*e.g.*, Quintard et Whitaker, 1988).

III. APPLICATION AUX ÉCOULEMENTS TURBIDITIQUES. DÉVELOPPEMENT D'UN MODÈLE DE SAINT-VENANT MULTI-COUCHE À DENSITÉ VARIABLE.

Si historiquement, la méthode de prise de moyenne volumique a été utilisée avec succès sur des problèmes des plus simples (dérivation de l'équation de Darcy, dispersion d'un traceur) aux plus complexes (transport réactif, écoulement multiphasique), un exemple original d'application de ce formalisme mathématique concerne la dérivation de l'équation de Saint-Venant. Classiquement, l'équation de Barré de Saint-Venant, qui permet de modéliser des écoulements à surface libre à faible profondeur est obtenue en moyennant sur la hauteur les équations de Navier-Stokes. La relation d'intégration de Leibnitz utilisée dans ce cas pour traiter les dérivées au sein des intégrales peut être assimilée à une application en 1D des théorèmes de prise de moyenne utilisés en changement d'échelle.

Bien que ce problème ne concerne pas des milieux poreux, il peut être traité au travers de la prise de moyenne volumique. Soit *h(x,t)* la hauteur d'eau locale et *H* une hauteur constante de référence telle que *h*<<*H*. On note γ_h l'indicatrice de phase (qui vaut 1 pour $z \in [0,h]$). On définit ensuite au sens des distributions les grandeurs moyennées suivantes :

$$\bar{\rho}(x) = \frac{1}{h}\int_H \rho\, dz = \frac{1}{h}\int_h \rho\, dz \tag{13}$$

$$\bar{\mathbf{v}}(x) = \frac{1}{h}\int_H \mathbf{v}\, dz = \frac{1}{h}\int_h \mathbf{v}\, dz \tag{14}$$

où $\mathbf{v} = u\mathbf{e}_x + v\mathbf{e}_z$ représente le vecteur vitesse de l'écoulement. L'opérateur de moyenne < > s'écrit alors sous la forme :

$$\langle \Psi \rangle = \frac{1}{H}\int_H \Psi\, dz = \frac{h}{H}\bar{\Psi} \tag{15}$$

où Ψ est une fonction quelconque. En appliquant maintenant cet opérateur aux équations de Navier-Stokes et de conservation de la masse, en combinant les théorèmes de prise de moyenne avec les conditions aux limites adéquates (condition de surface libre en *z=h* et de fond imperméable en *z=0*) et en négligeant les termes de déviations (approximation à l'ordre 1), on récupère alors le système d'équations de Saint Venant :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial h\bar{u}}{\partial x} = 0 \tag{16}$$

$$\frac{\partial h\bar{u}}{\partial t} + \frac{\partial h\bar{u}^2}{\partial x} + gh\frac{\partial h}{\partial x} = 0 \tag{17}$$

La solution est similaire à celle obtenue classiquement mais la prise de moyenne volumique permet une résolution plus élégante (il n'y a pas besoin d'hypothèse supplémentaire sur la

condition limite de surface libre par exemple) et elle fait apparaître de manière plus explicite l'expression des flux aux interfaces. Ce dernier point représente un atout non négligeable si l'on s'intéresse à des écoulements à surface libre plus complexes tels que les écoulements gravitaires sous-marins. Sous l'action de la tectonique, un déséquilibre peut se produire déclenchant le déplacement gravitaire (avalanche, coulée plus ou moins fluide) d'une grande quantité de sédiments qui viennent se déposer sur les fonds océaniques. La compréhension des mécanismes qui contrôlent ces courants gravitaires marins est une problématique importante d'un point de vue des ressources naturelles (eau, huile, gaz), le type de dépôts sédimentaires qu'ils induisent étant propice à la naissance de réservoirs de grande qualité (forte porosité, géométrie des corps sédimentaire favorable à une grande extension latérale). La modélisation de tels phénomènes reste toutefois encore mal maîtrisée et très coûteuse à mettre en œuvre du point de vue du temps de calcul. Bien que la rhéologie des fluides puisse parfois être très complexes (comportement non newtonien), nous nous sommes focalisés sur le cas d'écoulements newtoniens moyennement chargés pour lesquels les effets de turbulence peuvent être négligés. Le comportement de la coulée est alors régi par les équations de Navier-Stokes (avec masse volumique variable) couplées à une équation de transport de sédiment. Afin de tenir compte de la stratification de l'écoulement et de la variabilité des propriétés du fluide dans le sens de la pente, nous avons développé un modèle de Saint-Venant multi-couches à masse volumique variable.

En partant des équations d'écoulement et de transport pour un fluide à masse volumique variable, on définit alors des moyennes par couche, tel que pour la propriété physique Ψ $\left(\Psi = u, c, \rho\right)$ on ait pour la couche i :

$$\bar{\Psi}_i = \frac{1}{h_i} \int_{h_i} \bar{\Psi}_i \, dz \tag{18}$$

Où $\sum_1^n h_i = h$ représente la hauteur de l'écoulement. On suppose en outre que la variation de ρ par couche est faible selon la hauteur. En d'autres termes, on a :

$$\rho_i\left(x,z,t\right) = \rho_i\left(x,t\right) = \bar{\rho}_i\left(x,t\right) \tag{19}$$

de sorte que la pression hydrostatique locale P_i peut s'écrire sous la forme :

$$P_i\left(x,z\right) = \sum_{k=i+1}^{n} \bar{\rho}_k g h_k - \bar{\rho}_i g \left(z - \sum_{k=1}^{i} h_k \right) \tag{20}$$

Les termes de flux interfaciaux caractérisant les échanges de masse et de quantité de mouvement entre les couches, exhibés par le changement d'échelle, ont été approximés par une relation linéaire d'ordre 1, telle que :

$$\int_{\partial h^+ \cup \partial h^-} \rho_i\left(\mathbf{v}_i - \mathbf{w}\right) \cdot \mathbf{n} \, d\partial h = \alpha_i\left(\bar{\rho}_{i+1} - \bar{\rho}_i\right) - \alpha_{i-1}\left(\bar{\rho}_{i-1} - \bar{\rho}_i\right) \tag{21}$$

où α_i et α_{i-1} représentent les coefficients d'échange interfaciaux avec la couche inférieure ou supérieure (échange vertical), **w** est la vitesse de déplacement de la couche d'eau i et $\partial h^+ \cup \partial h^-$ les frontières supérieures et inférieures de la couche. Les coefficients d'échange sont pris en première approximation constants et identiques pour toutes les couches mais l'utilisation de formulations plus complexes permettant de capturer la physique des processus est envisagée.

Après calcul, nous obtenons finalement le système macroscopique suivant en utilisant l'opérateur de prise de moyenne volumique :

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial t}\left(\bar{\rho}_i h_i\right)+\frac{\partial}{\partial x}\left(\bar{\rho}_i \bar{u}_i h_i\right)=\alpha_i\left(\bar{\rho}_{i+1}-\bar{\rho}_i\right)-\alpha_{i-1}\left(\bar{\rho}_i-\bar{\rho}_{i-1}\right) \\ \frac{\partial}{\partial t}\left(\bar{\rho}_i \bar{u}_i h_i\right)+\frac{\partial}{\partial x}\left(\bar{\rho}_i \bar{u}_i^2 h_i+\bar{\rho}_i \frac{g}{2} h_i^2\right)+h_i \sum_{k=i+1}^{N} \frac{\partial}{\partial x}\left(\bar{\rho}_k g h_k\right)+h_i \sum_{k=1}^{i-1} \frac{\partial}{\partial x}\left(\bar{\rho}_i g h_k\right) \\ =\alpha_i\left(\bar{u}_{i+1}\bar{\rho}_{i+1}-\bar{u}_i\bar{\rho}_i\right)-\alpha_{i-1}\left(\bar{u}_i\bar{\rho}_i-\bar{u}_{i-1}\bar{\rho}_{i-1}\right) \\ \frac{\partial}{\partial t}\left(\bar{\rho}_i \bar{c}_i h_i\right)+\frac{\partial}{\partial x}\left(\bar{\rho}_i \bar{u}_i h_i \bar{c}_i\right)=D\frac{\partial^2}{\partial x^2}\left(\bar{\rho}_i h_i \bar{c}_i\right)+\alpha_i\left(\bar{c}_{i+1}\bar{\rho}_{i+1}-\bar{c}_i\bar{\rho}_i\right)-\alpha_{i-1}\left(\bar{c}_i\bar{\rho}_i-\bar{c}_{i-1}\bar{\rho}_{i-1}\right) \end{cases} \tag{22}$$

où i représente la couche d'eau considérée. Au niveau des couches inférieures et supérieures de l'écoulement (i=1,n), les conditions limites appropriées sont à prendre en compte (par exemple une condition d'imperméabilité ou de glissement en i=1 et de surface libre en i=n). La formulation théorique ainsi obtenu est similaire à celle développée par Audusse *et al.* (2011) à l'exception des termes d'échange. Afin de s'affranchir de l'hypothèse de faible pente de l'approximation de Saint-Venant, une version du modèle a aussi été développée par rapport au repère local (modèle de Savage-Hutter).

Une des difficultés soulevée par la résolution d'un tel système d'équations est liée à la nécessité de calculer proprement les flux aux mailles afin de capturer les chocs. Nous avons adopté ici un schéma cinétique qui est particulièrement bien adapté à ce type de problème car il présente un bon compromis entre stabilité et précision (cf. Audusse et *al.*, 2000 pour l'application de ce type de schéma aux équations de Saint-Venant).

En pratique, cela revient à définir pour chaque couche i, une fonction de distribution de particules fictives $M_i\left(x,t,\xi\right)$ avec une vitesse microscopique ξ afin d'obtenir un système d'équations cinétiques linéaires équivalent au modèle macroscopique que l'on souhaite résoudre. On construit ainsi une densité de particules $M_i\left(x,t,\xi\right)$ définie par un équilibre de Gibbs de la forme :

$$M_i\left(x,t,\xi\right)=\frac{\bar{\rho}_i\,\bar{h}_i\left(x,t\right)}{c_i}\chi\left(\frac{\xi-\bar{u}_i\left(x,t\right)}{c_i}\right) \tag{23}$$

où c_i est la vitesse d'onde et χ une fonction qui vérifie certaines propriétés mathématiques. On peut alors montrer que si (h,u,c) est solution forte du systèmes d'équations (22), alors $\left\{M_i\left(x,t,\xi\right),M_i\left(x,t,\xi\right)\overline{c}_i\right\}_{i=1}^{n}$ vérifie un système d'équations cinétiques équivalent.

On peut voir sur la figure ci-dessous une illustration des capacités de ce modèle dans le cas d'une description à 2 couches (coulée sédimentaire et eau salée environnante) avec un rapport de densité de 0.8 entre les deux masses volumiques [CSA27].

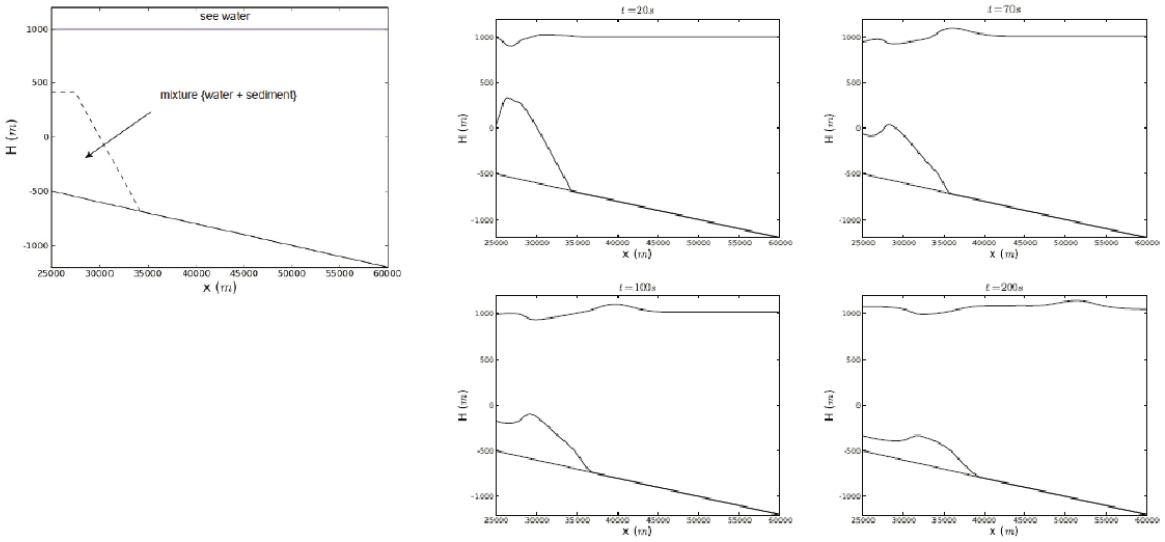


Figure 2. Simulation à 2 couches de l'écoulement sous marin d'un dépôt sédimentaire pour un rapport de densité de 0.8

CHAPITRE 2

INFLUENCE DES HÉTÉROGÉNÉITÉS SUR LES PROCESSUS DE TRANSFERT

La caractérisation des mécanismes de transport à grande échelle ne peut être envisagée sans tenir compte des hétérogénéités inhérentes à tout milieu géologique. Celles-ci peuvent être liées à la variabilité des propriétés physiques des fluides en présence (variation spatio-temporelle de masse volumique ou de viscosité) ou de la structure du milieu lui-même (hétérogénéité spatiale de perméabilité et de porosité) et jouent un rôle crucial dans la propagation du panache d'un soluté (polluant ou non).

I. HÉTÉROGÉNÉITÉS DU MILIEU ET INFLUENCE SUR LES CONDITIONS DE NON-ÉQUILIBRE LOCAL

L'étude des transports miscibles dans un aquifère est un problème important dans le contexte environnemental compte tenu de l'importance croissante des scénarios de pollution. Or, la modélisation à l'échelle du terrain ne permet généralement pas de rendre compte des hétérogénéités spatiales de par les limites imposées sur la taille du maillage. Celles-ci conduisent pourtant à des structures d'écoulement bien particulières avec des effets de chenalisation dont les conséquences sur les propriétés de transport sont significatives (*e.g.*, Le Borgne *et al.*, 2007 ; de Dreuzy *et al.*, 2007) . Ce comportement multi-échelle nécessite d'être intégré à travers le développement de modèles macroscopiques par des méthodes mathématiques du type prise de moyenne volumique ou homogénéisation (cf. Chapitre 1). Si l'on considère par exemple le cas d'un milieu à 2 régions notées ω et η (inclusions peu perméables au sein d'une matrice poreuse homogène), des temps caractéristiques liés aux différents processus de transport (dispersion, convection) peuvent être associés à chacune des régions. Si ces temps sont suffisamment faibles (*i.e.*, que le rapport de perméabilité κ est suffisamment faible), on peut supposer que les concentrations moyennées par région restent proches et un *modèle d'équilibre de masse local* peut être développé pour décrire le transport à grande échelle.

Modèle d'équilibre de masse local à une équation

$$\varepsilon^* \frac{\partial c_{eq}^*}{\partial t} + \varepsilon^* \mathbf{v}^* \cdot \nabla c_{eq}^* = \nabla \cdot \left[\varepsilon^* \mathbf{D}_{eq}^{**} \cdot \nabla c_{eq}^* \right] \tag{24}$$

où ε^* représente la porosité totale, c_{eq}^* la concentration moyenne à l'équilibre, $\mathbf{v}^*$ la vitesse interstitielle moyenne et $\mathbf{D}_{eq}^{**}$ le tenseur de dispersion à l'équilibre. À l'inverse, si les concentrations moyennées associées aux régions de perméabilités distinctes sont sensiblement différentes, définir une concentration unique moyenne sur le domaine n'a plus de sens d'un point de vue physique. L'influence des effets de non-équilibre est alors fondamentale dans ce contexte et la conséquence la plus notable est l'apparition d'effet de traînée dans les courbes de percée qui ne peuvent plus être modélisées par une équation classique de convection-dispersion. Une des approches généralement proposée est d'utiliser un modèle à 2 équations ou modèle double-milieu (*e.g.*, Ahmadi *et al.*, 1998) tel que :

Modèle à 2 équations

Transport dans la matrice (milieu η):

$$\begin{aligned} \varphi_\eta \varepsilon_\eta \frac{\partial \langle c_\eta \rangle^\eta}{\partial t} + \varphi_\eta \varepsilon_\eta \langle \mathbf{v}_\eta \rangle^\eta \nabla \cdot \langle c_\eta \rangle^\eta &= \nabla \cdot \left[\varphi_\eta \varepsilon_\eta \mathbf{D}_{\eta\eta}^{**} \cdot \nabla \langle c_\eta \rangle^\eta \right] \\ &\quad - \alpha^* \left(\langle c_\eta \rangle^\eta - \langle c_\omega \rangle^\omega \right) + \Omega_\eta \end{aligned} \tag{25}$$

Transport dans les inclusions (milieu ω):

$$\begin{aligned} \varphi_\omega \varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_\omega \rangle^\omega}{\partial t} + \varphi_\omega \varepsilon_\omega \langle \mathbf{v}_\omega \rangle^\omega \cdot \nabla \langle c_\omega \rangle^\omega &= \nabla \cdot \left[\varphi_\omega \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{\omega\omega}^{**} \cdot \nabla \langle c_\omega \rangle^\omega \right] \\ &\quad - \alpha^* \left(\langle c_\omega \rangle^\omega - \langle c_\eta \rangle^\eta \right) + \Omega_\omega \end{aligned} \tag{26}$$

Ici, une équation de transport macroscopique est définie pour chaque région, le transfert de masse interfacial étant généralement décrit par une cinétique du premier ordre. φ_ω, φ_η, ε_ω et ε_η représentent les fraction volumique et les porosités de chacune des régions, $\langle c_\omega \rangle^\omega$ et $\langle c_\eta \rangle^\eta$ les concentrations moyennées par région, $\mathbf{D}_{\omega\omega}^{**}$ et $\mathbf{D}_{\eta\eta}^{**}$ les tenseurs de dispersion par région et α^* le coefficient de transfert de masse (Ω_ω et Ω_η regroupent des termes de flux croisées issus du changement d'échelle). On distingue dans la littérature les modèles « mobile-immobile » si la variance du champ de perméabilité est suffisamment forte, des modèles « mobile-mobile » lorsque les effets convectifs au sein des inclusions ne sont plus négligeables. Toutefois, lorsque le domaine d'étude est suffisamment important (milieu semi-infini), un comportement fickien asymptotique est récupéré et un modèle de non-équilibre à une équation *(e.g.*, Moyne *et al.*, 1999 ; Quintard *et al.*, 2001) peut être dérivé :

Modèle asymptotique à une équation

$$\varepsilon^* \frac{\partial c^*}{\partial t} + \varepsilon^* \mathbf{v}^* \cdot \nabla c^* = \nabla \cdot \left[\varepsilon^* \mathbf{D}_\infty^{**} \cdot \nabla c^* \right] \tag{27}$$

où c^* correspond à une concentration moyenne pondérée par la porosité et $\mathbf{D}_\infty^{**}$ un tenseur de dispersion asymptotique (généralement différent de $\mathbf{D}_{eq}^{**}$). Ce formalisme peut être comparé aux résultats obtenus sur la macro-dispersion asymptotique dans le cadre de l'approche stochastique (Dagan et Lessof, 2001; Dagan et Fiori, 2003). La Figure 3 illustre la similitude de ces deux approches au travers d'une étude expérimentale menée sur un milieu bimodal présentant des inclusions ellipsoïdales [ACL18]. Compte tenu de l'hypothèse émise au niveau de la solution de Dagan et Lessof ($\kappa \approx 1$ au lieu de 0.134), les deux théories concordent bien.

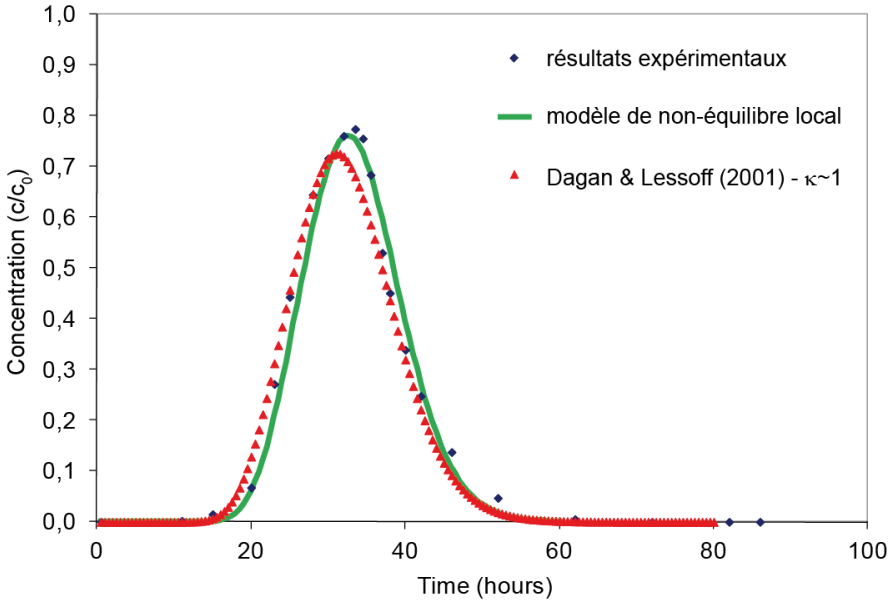


Figure 3. Courbe expérimentale de percée dans le cas d'un milieu bimodal nodulaire de ratio de perméabilité κ=0.134 – comparaison avec la solution obtenue par la méthode de prise de moyenne volumique et celle prédite par l'approche stochastique pour les valeurs limites de κ

L'intérêt, ici, des méthodes de changement d'échelle telle que la méthode de prise de moyenne volumique est de proposer un cadre théorique formalisé permettant de caractériser avec exactitude les coefficients effectifs intervenant dans ces équations macroscopiques. Une des difficultés est de réussir à cerner avec précision les domaines de validité de ces différentes approches. À titre d'illustration, nous pouvons voir sur la Figure 4 le passage d'un régime non-fickien à un comportement fickien à travers l'analyse des courbes de percée réalisées à différentes sections d'un milieu nodulaire. On peut distinguer classiquement trois régimes de transport, comme illustré Figure 4 :

i. $x < \mathrm{L}_1$: le système n'est pas homogénéisable (Figure 4a). La contrainte de séparation des échelles n'est plus respectée, *i.e.* $\ell_\omega, \ell_\eta \approx L_0$, et les coefficients effectifs peuvent être identifiés comme *non-local*. En d'autres termes, ils dépendent des coordonnées spatiales (x) et temporelle (t) où x est la coordonnée à petite échelle. Dans de telles

conditions, aucun des modèles macroscopiques ne peut réussir à reproduire la courbe de percée. Une simulation directe est requise pour capturer un tel comportement.

ii. $L_1 < x < L_2$: un comportement préasymptotique est obtenu. Le modèle à deux-équations capture parfaitement la courbe d'élution mais les modèles à une équation échouent à reproduire ce comportement. Ces résultats sont caractéristiques d'un régime non-fickien (Figure 4b).

iii. $x > L_2$: Les différents modèles hors équilibre, aussi bien à une qu'à deux équations, reproduisent parfaitement les différents processus mis en jeu. Le comportement asymptotique ou fickien est atteint mais celui-ci reste différent de l'état d'équilibre (tel que caractérisé par le modèle d'équilibre local) même suffisamment loin des conditions d'entrée (Figure 4c).

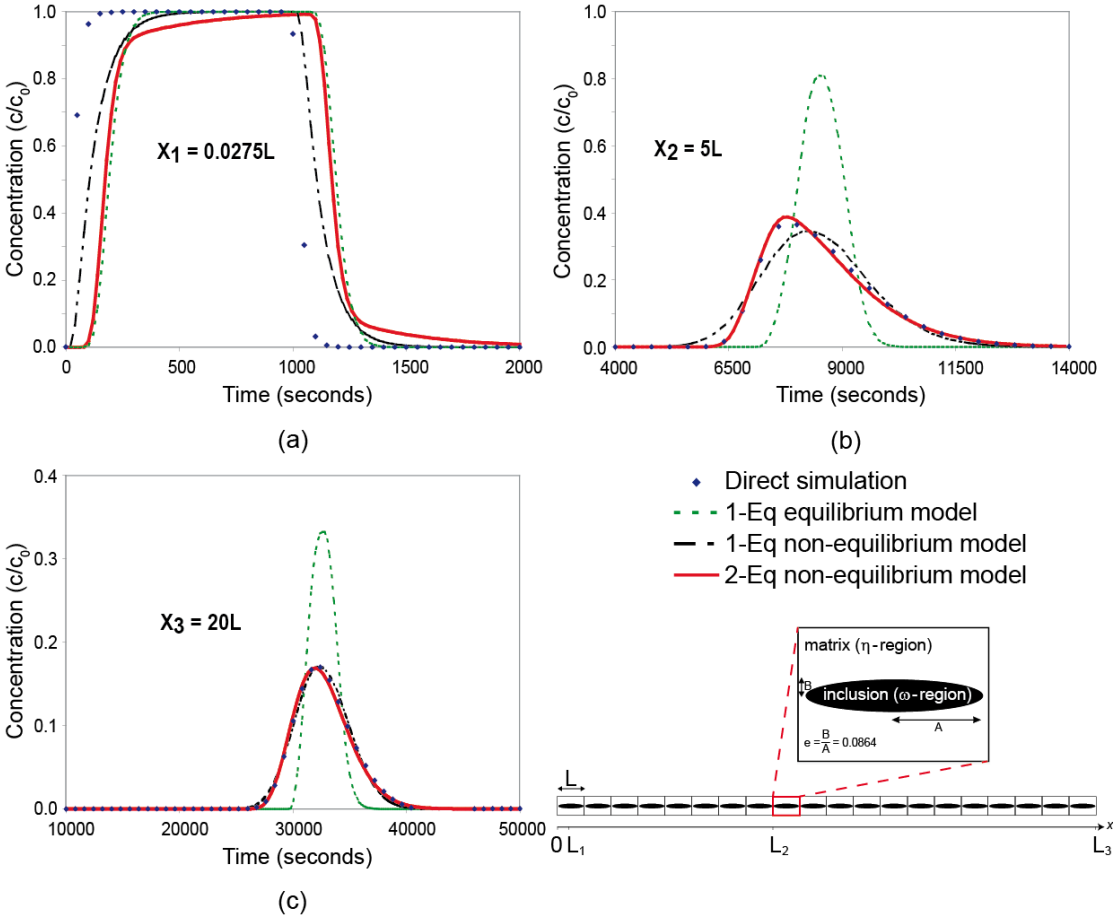


Figure 4. Comparaison des courbes de percée issues de simulations directes et macroscopiques sur un milieu nodulaire pour 3 sections d'observation différentes : (a) L_1 - milieu non homogénéisable ; (b) L_2 - comportement mobile –immobile ; L_3 - comportement asymptotique.

L'intérêt pour les modèles double-milieu suggère une analyse plus poussée du coefficient d'échange et de la prédiction obtenue en utilisant la méthode de prise de moyenne volumique avec un problème de fermeture stationnaire. Différentes méthodes (*e.g.*, Rao *et al.*, 1980 ; Haggerty et Gorelick, 1995) existent en effet pour estimer la valeur du coefficient de transfert de masse lorsque la diffusion prédomine au sein des régions de faible conductivité et que ces

dernières présentent une géométrie simplifiée (sphérique, ellipsoïdal,...). Toutefois, relativement peu d'approches ont été développées pouvant être appliquées aux cas où la géométrie est plus ou moins complexe et où une convection non négligeable intervient au sein des inclusions. Or le formalisme décrit ici s'applique à ces conditions plus générales et permet de calculer le coefficient d'échange interfacial sur la base des propriétés physiques et de la géométrie du milieu à l'échelle microscopique.

Nos résultats indiquent que l'approche de prise de moyenne représente relativement bien le processus de transfert de masse appliqué à l'échelle macroscopique. Cependant, l'existence d'une méthode formelle pour prédire le coefficient de transfert de masse ne doit pas faire oublier les simplifications introduites par un modèle de transfert de masse du 1er ordre. Ces défauts ont été longuement discutés dans la littérature (Haggerty et Gorelick, 1995 ; Griffoen, 1998 ; Haggerty *et al.*, 2000), et incluent (i) une arrivée précoce du front de soluté et (ii) des concentrations plus fortes dans la queue de la courbe de percée. Un tel comportement peut être observé sur la Figure 5 où nous avons comparé dans le cas d'un milieu 2D bimodal fortement hétérogène (rapport de perméabilité autour de 300), les résultats théoriques sur le transfert de masse entre deux régions issus de la théorie de prise de moyenne volumique (modèle à 2 équations) avec des résultats expérimentaux de la littérature (Zinn *et al.*, 2004).

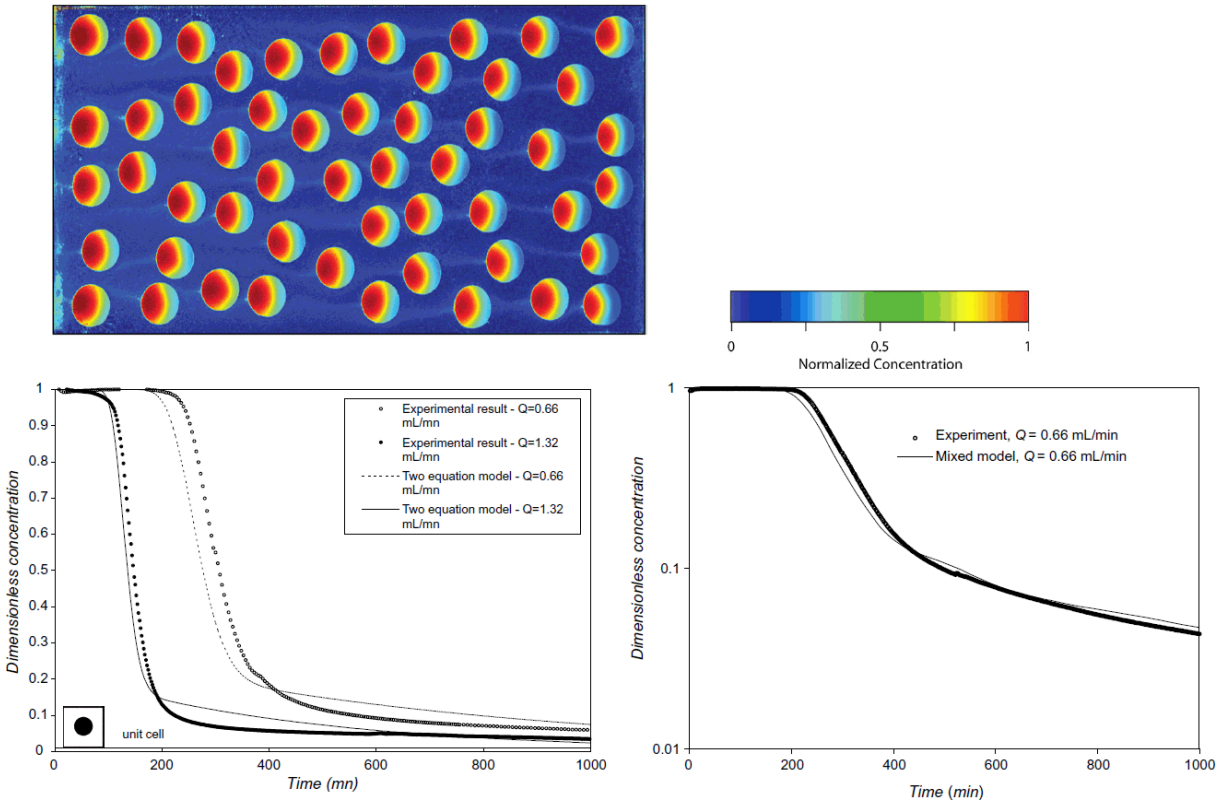


Figure 5. Milieu bimodal et champ de concentration expérimental à Q=0.66 mL/min (Zinn *et al.*, 2004) - Comparaison des courbes de percée expérimentales avec celles prédites par (1) le modèle à 2 équations et (2) par le modèle mixte.

Toutefois, en dépit des erreurs éventuelles générées par l'utilisation d'un coefficient de transfert de masse constant, la valeur prédite par le changement d'échelle peut être vue comme une valeur optimale dans le sens qu'elle conserve les moments temporels de la courbe

de percée d'ordre 0, 1 et 2 (Harvey et Gorelick, 1995). L'écart observé vient des moments d'ordres supérieurs qui ne sont pas respectés. Dans le cas où la convection peut être négligée dans les inclusions faiblement perméables, nous avons démontré que le coefficient de transfert prédit par le problème de fermeture stationnaire pouvait être représenté en termes d'une expansion en valeurs propres d'une fonction de Green et était égal à la moyenne harmonique des valeurs propres associées au problème. Pour des inclusions sphériques ou cylindriques, ce résultats est en accord avec de précédents travaux (Haggerty et Gorelick, 1995 ; Landereau *et al.*, 2001) et conduit à la solution classique $\alpha = \beta\phi_\omega\varepsilon_\omega D_\omega^* / a^2$ où ϕ_ω représente la fraction volumique des inclusions, a est leur rayon et β est un paramètre qui dépend de la géométrie du système.

Dans les cas où l'utilisation d'un coefficient de transfert de masse constant tel que le prédit la résolution du problème de fermeture stationnaire ne permettait pas de décrire avec précision le comportement de la courbe de percée lorsque l'influence des hétérogénéités devenait significative, des approches alternatives, plus précises mais aussi plus coûteuses, peuvent être proposées : modèle de fermeture transitoire (Moyne, 1996 ; Chastanet et Wood, 2008), modèle multi-rate (Haggerty *et al.*, 2000) … Dans le cas du milieu bimodal présenté Figure 3, nous avons testé une troisième possibilité pour pallier cette situation : une formulation mixte ou hybride. Dans ce type de modèle, la description macroscopique du transport d'espèces est maintenue pour la matrice (*i.e.*, la phase η) mais le transfert de masse au niveau des inclusions (*i.e.*, la phase ω) est modélisé à l'échelle microscopique. L'idée de ces modèles mixtes a été introduite pour la première fois dans le cas de l'écoulement de fluide faiblement compressible pour des systèmes doubles-milieux (voir une discussion sur l'introduction de cette idée dans Chen, 1989) avant d'être appliquée à des problèmes de dispersion (Rao *et al.*, 1980 ; Bibby, 1981). Nous avons exploré cette piste dans l'esprit des travaux de ces derniers auteurs mais reformulée dans le cadre de la méthode de prise de moyenne volumique. De par la description microscopique conservée à l'échelle des inclusions, le modèle mixte maintient les valeurs propres associées avec le problème de diffusion. Néanmoins, il nécessite des hypothèses simplificatrices supplémentaires afin de contraindre les conditions limites à l'interface entre les deux régions. De manière implicite, ce modèle suppose que la convection dans la phase ω est négligeable (*« comportement mobile-immobile »*) et cette hypothèse est vérifiée pour des valeurs importantes du rapport de conductivité κ. En outre, la perturbation en concentration au sein de la phase fluide $\tilde{c}_\eta$ est négligée à l'interface $A_{\eta\omega}$ afin de forcer le découplage des solutions. Le modèle prend ainsi la forme :

Modèle mixte

région η (matrice):

$$\underbrace{\frac{\partial\langle c_\eta\rangle^\eta}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} = \underbrace{\nabla\cdot\left[\mathbf{D}^*_{\eta\eta,mixed}\cdot\nabla\langle c_\eta\rangle^\eta\right]}_{\text{Dispersion}} - \underbrace{\langle\mathbf{v}_\eta\rangle^\eta\cdot\nabla\langle c_\eta\rangle^\eta}_{\text{Convection}} + \underbrace{\frac{\varepsilon_\eta^{-1}\varphi_\eta^{-1}}{V_\eta}\int_{A_{\omega\eta}}\mathbf{n}_{\eta\omega}\cdot\left(\varepsilon_\eta\mathbf{D}^*_\eta\nabla c_\eta\right)dA}_{\text{Flux interfacial}} \quad (28)$$

région ω (inclusion):

$$\varepsilon_\omega \frac{\partial c_\omega}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\varepsilon_\omega \mathbf{D}^*_\omega \cdot \nabla c_\omega \right] \tag{29}$$

et les conditions limites qui ferment le problème sont spécifiés comme suit

Condition limite 1 (*égalité des concentrations*)

$$c_\omega = \langle c_\eta \rangle^\eta \quad \text{sur } A_{\eta\omega} \tag{30}$$

Condition limite 2 (*égalité des flux*)

$$\mathbf{n}_{\eta\omega} \cdot \left(\varepsilon_\eta \mathbf{D}^*_\eta \cdot \nabla c_\eta \right) = \mathbf{n}_{\eta\omega} \cdot \left(\varepsilon_\omega \mathbf{D}^*_\omega \cdot \nabla c_\omega \right) \quad \text{sur } A_{\eta\omega} \tag{31}$$

Condition initiale

$$c_\eta = c_{\eta 0}, \quad c_\omega = c_{\omega 0} \quad \text{sur } t = 0 \tag{32}$$

L'expression du tenseur de dispersion $\mathbf{D}^*_{\eta\eta,mixed}$ qui apparaît dans l'Eq. (28) est dérivée en suivant le même développement que pour le modèle à deux équations. Le problème de fermeture associé à ce terme dispersif (cf. [ACL18] pour le détail du problème mathématique), compte tenu des hypothèses émises précédemment (forçage de la concentration macroscopique à l'interface), conduit à une solution similaire (du point de vue dispersif uniquement) à celle obtenue pour un milieu poreux dont les inclusions seraient imperméables. Cette hypothèse reste toutefois valable sous réserve, là encore, d'un rapport important des conductivités hydrauliques.

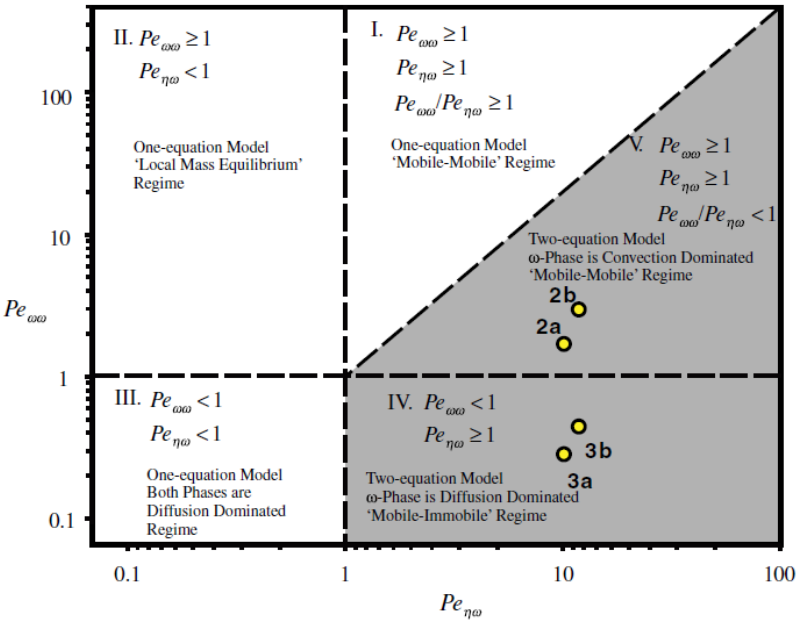


Figure 6. Classification des différents régimes de transport en fonction des nombres de Péclet : $Pe_{\omega\omega}$ et $Pe_{\eta\omega}$

Précisons que le problème spécifié ci-dessus requiert en principe que l'interface entre les deux régions soit explicitement connue. Cette condition implique que le problème mathématique décrit par les Eqs. (28) - (32) serait pratiquement aussi complexe que le système décrit à l'échelle de Darcy. Néanmoins, si l'on suppose que l'influence des inclusions sont indépendantes l'une de l'autre (faible longueur de corrélation du milieu) et que la géométrie de ces régions est relativement identique, il est possible de représenter l'influence macroscopique de ces inclusions en considérant une représentation géométriquement simplifiée du système. En d'autres termes, la complexité du milieu poreux est réduite à une ou plusieurs cellules unitaires représentatives. De cette manière, nous conservons les informations transitoires primordiales (représentant l'influence des valeurs propres particulières de la solution) tout en diminuant significativement la complexité du système. Dans le cas de l'exemple évoqué précédemment (cf. Figure 5), dix inclusions indépendantes ont été utilisées pour décrire le domaine compte tenu de sa géométrie et de la taille des régions. La distribution unidimensionnelle de la concentration dans la phase η, régie par l'Eq. (28), est résolu de manière couplée avec la description fine du problème microscopique 2D dans la région ω. Le transfert d'information entre les deux régions est effectué à travers le flux interfacial, Eq. (28) et la condition limite, Eq. (30). Le gain de précision obtenu par rapport au modèle à deux équations classique est illustré Figure 5. Sur la base de ces analyses, un diagramme (Figure 6), rassemblant les différents régimes de transport pour de tels systèmes bimodaux, a ainsi pu être proposé [ACL9]. Celui-ci a été établi sur la base des deux nombres de Péclet qui caractérisent les processus impliqués :

$$\begin{aligned} Pe_{\omega\omega} &= \langle v_\omega \rangle^\omega a \big/ D_{eff,\omega} \\ Pe_{\eta\omega} &= \langle v_\eta \rangle^\eta a^2 \big/ D_{eff,\omega} L \end{aligned} \tag{33}$$

où a représente la longueur caractéristique des inclusions, L la longueur caractéristique associée à la matrice environnante et $D_{eff,\omega}$ la dispersion effective au sein des inclusions.

Plus récemment, nous avons aussi étudié l'influence des conditions limites dans le cas d'une injection pulsée sur l'établissement du comportement asymptotique du transport du soluté [ACL18]. Il a été clairement mis en évidence que celui-ci est d'autant plus lent à s'établir que la largeur du créneau de concentration injecté est réduite. Ce point est crucial afin d'établir les conditions d'utilisation du modèle à 2 équations et du modèle asymptotique. Afin d'illustrer ce propos, nous considérons le même milieu nodulaire que précédemment et l'accroissement de l'écart entre ces deux modèles est évalué à une distance fixe de l'entrée du domaine pour différents temps de pulse δt (Figure 7). On observe ainsi qu'à δt = 10000 s, le système a pratiquement atteint un comportement fickien alors que pour δt = 100 s, les conditions de transport sont encore clairement pré-asymptotiques à la même section d'observation.

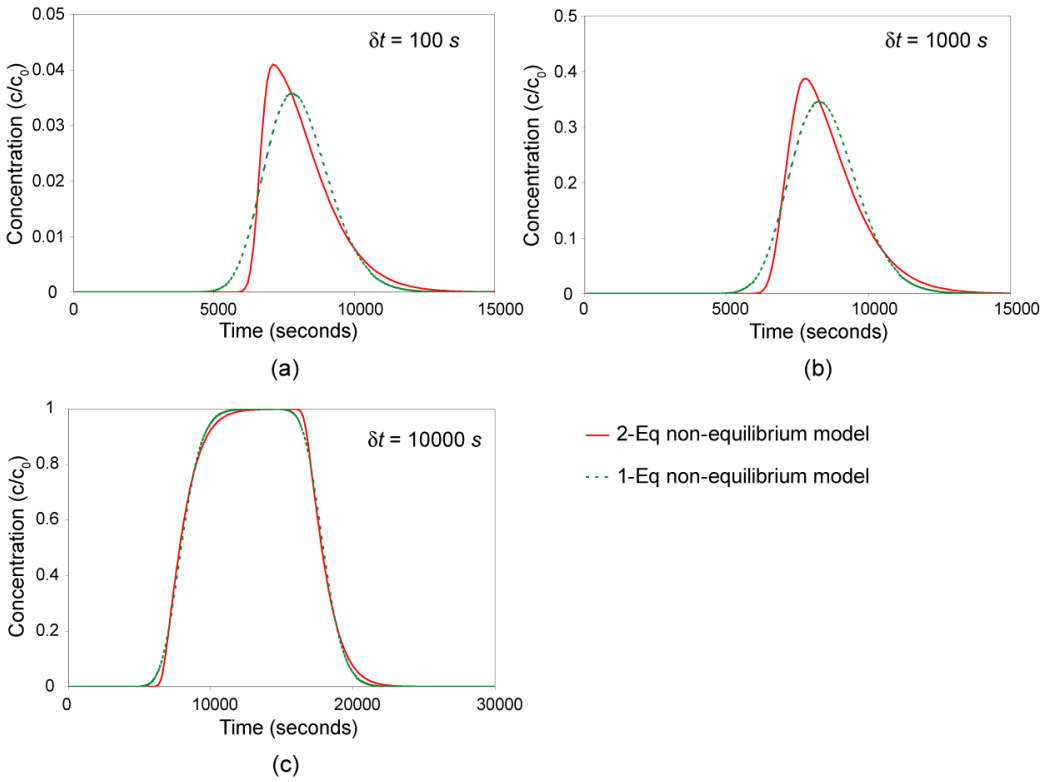


Figure 7. Influence du temps de pulse injecté (100, 1000 et 10000 s) sur l'établissement du régime fickien

À l'inverse, les milieux poreux caractérisés par des inclusions très fortement perméables présentent un comportement notablement différent (Moctezuma-Berthier et al., 2004). En particulier, si les inclusions sont totalement fluides (*e.g.*, les roches vacuolaires ou les milieux fracturés si les inclusions sont connectées), une des difficulté est de relier le régime d'écoulement darcéen (présent dans la matrice poreuse) à un régime de Stokes classique. D'un point de vue mathématique, ceci conduit en effet à un problème dans l'écriture de conditions limites appropriées pour relier les deux modèles à moins d'accepter des discontinuités dans la vitesse tangentielle à l'interface. Ceci équivaut à réduire la couche limite à une surface d'épaisseur nulle sur laquelle la singularité en vitesse et/ou en contrainte est concentrée. C'est la solution proposée par Beavers et Joseph (1967) qui introduisit de manière empirique une condition limite de glissement à l'interface fluide/milieu poreux. Une autre alternative, basée sur l'équation de Darcy-Brinkman (1947), consiste à prendre en compte au travers du terme $\tilde{\mu}\nabla^2\mathbf{v}$ (où $\tilde{\mu}$ représente une viscosité effective correspondant à μ/ε d'après la méthode de prise de moyenne volumique ; cf. Whitaker, 1986) le comportement de la couche limite dans la région poreuse au voisinage de l'interface. Cette équation est d'ailleurs fréquemment utilisée en étendant son domaine d'application à la zone fluide au travers de la valeur adoptée pour la perméabilité K (cf. [ACL1] pour un tel exemple d'application). Cette formulation, dite à un domaine, est équivalente d'un point de vue mathématique à la formulation classique à deux domaines (Hirata *et al.*, 2009 ; Jamet *et al.*, 2009). Plus récemment, Ochoa Tapia et Whitaker (1995) ont revisité le problème au travers de la méthode de prise de moyenne volumique et proposé d'utiliser l'équation classique de Darcy-Brinkman dans la zone poreuse. L'excès de contrainte lié à cette approximation au

niveau de l'interface est compensé par une condition limite de saut au niveau du contact fluide/ milieu poreux (cf. aussi Goyeau *et al.*, 2003 ; Valdes-Parada *et al.*, 2007).

Toutefois, si de nombreux travaux ont été consacrés au développement de conditions limites au niveau de l'interface entre les deux régions, peu se sont intéressés à la modélisation de ce type d'écoulement à l'échelle macroscopique. Nous avons ainsi récemment montré qu'à l'échelle du milieu poreux homogène équivalent, on récupérait dans le cas d'une description de type Darcy-Brinkman un modèle de Darcy macroscopique dont le tenseur de perméabilité pouvait être déterminé explicitement (un résultat similaire peut être obtenu pour l'approche de Ochoa-Tapia et Whitaker qui peut être vu comme une généralisation du modèle de Darcy-Brinkman). Arbogast et Lehr [2006] ont dérivé de manière similaire une loi de Darcy pour le cas de Beavers et Joseph (1967) mais cette fois ci par homogénéisation.

L'évolution de la perméabilité effective d'un milieu stratifié prédite par l'équation de Darcy-Brinkman a ainsi été comparée à celle estimée par le modèle d'Arbogast et Lehr [AE2]. La Figure 8 illustre la validité de notre solution théorique dans le cas d'une roche vacuolaire idéale (vacuole circulaire périodique) pour lequel une solution analytique - valable pour de faible fraction volumique ϕ_ω de vacuole et une matrice peu perméable - a été proposée par Markov *et al.* (2010). On constate le bon accord entre notre théorie et la solution analytique lorsque les conditions de validité de l'approximation du milieu effectif sont vérifiées.

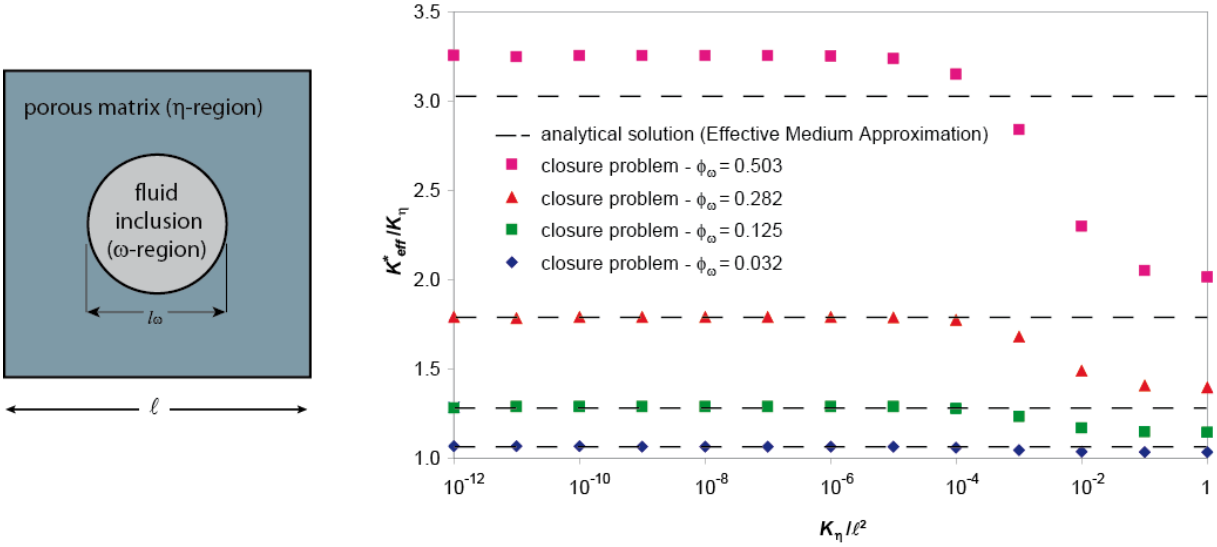


Figure 8. Comparaison de la perméabilité effective prédite par la prise de moyenne volumique et celle obtenue analytiquement dans le cas d'un milieu vacuolaire 2D périodique.

II. VARIABILITÉ DES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES DU FLUIDE ET DÉCLENCHEMENT D'INSTABILITÉ

L'influence des hétérogénéités des propriétés physiques des fluides constitue le second volet de ce chapitre. En effet, lors d'une contamination naturelle ou accidentelle d'une formation aquifère, la variation de la concentration peut affecter la masse volumique et/ou la viscosité dynamique des fluides mis en contact. Ces propriétés physiques peuvent, à leur tour, modifier les paramètres hydrodynamiques de l'aquifère (conductivité hydraulique, dispersivité, …)

avec des conséquences plus ou moins notables aussi bien sur la dispersion hydrodynamique, facteur moteur dans le développement et la propagation spatiale de la zone de mélange, que sur la stabilité du panache. L'intrusion de l'eau de mer dans des formations aquifères côtières, l'infiltration de lixiviat issue de l'enfouissement de déchets ou celle de xénobiotiques provenant des activités agricoles en sont quelques exemples d'application. Ces processus sont aussi non négligeables dans le cadre des écoulements en fracture qui jouent un rôle clé dans la vulnérabilité des aquifères vis-à-vis d'une pollution accidentelle. Sous l'effet de la compétition entre les forces visqueuses et gravitaires, la propagation du panache conduit au développement d'instabilités ou digitations gravitaires, constituant ainsi de multiples sources supplémentaires de contamination des eaux souterraines (*e.g.* : Shikaze *et al.*, 1998). Si beaucoup de travaux (*e.g.*, Delay et Bodin, 2001 ; de Dreuzy *et al.*, 2002 ; Bodin *et al.*, 2003) se sont penchés sur la caractérisation du comportement hydrodynamique en fracture depuis les résultats pionniers de Taylor (1953) et Aris (1956) et l'application de l'équation de Reynolds aux écoulements en fracture (*e.g.:* Bear, 1972), peu d'entre eux toutefois ont tenu compte des effets de variation de la masse volumique du polluant. On peut citer par exemple le récent travail de Bouquain *et al.* (2011) qui a analysé dans le cadre de l'approximation de Boussinesq l'impact de la gravité sur la dispersion de Taylor-Aris dans une fracture horizontale d'ouverture constante. Concernant le devenir d'une digitation gravitaire isolée, Nicholl et Glass (2005) ont étudié ces aspects mais en conditions non-saturées tandis que Oltéan *et al.* (2004) ont analysé le processus de formation des digitations à la fois expérimentalement et numériquement. Ils ont aussi obtenu par homogénéisation asymptotique l'expression d'un tenseur de dispersion généralisée en fracture, similaire à celui de Taylor-Aris mais incluant les effets gravitaires (Felder *et al.*, 2004 ; Oltéan *et al.,* 2004).

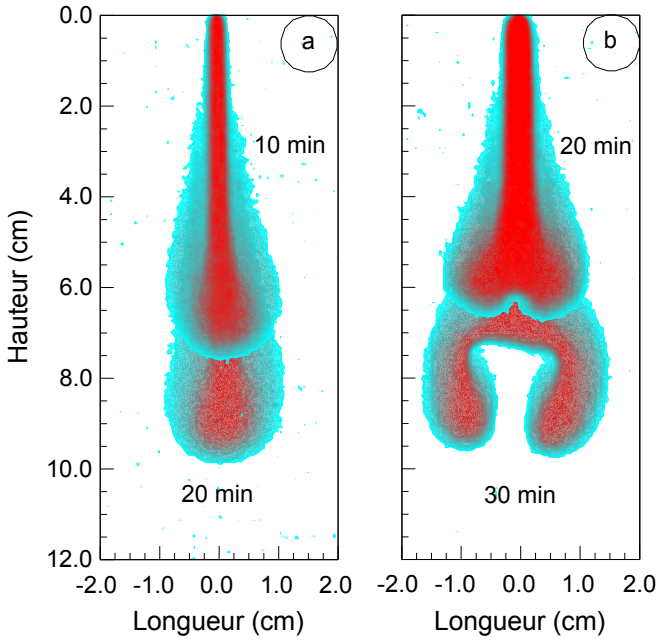


Figure 9. Configurations observées expérimentalement : (a) panache "sans digitations"; (b) panache "avec digitations".

Afin d'analyser plus précisément l'influence de ces propriétés physiques sur la propagation du panache et son comportement dispersif, il est apparu pertinent de réaliser en laboratoire un

système expérimental du type cellule Hele-Shaw. Ce système, analogue à une fracture modèle a été choisi afin d'utiliser des techniques de mesures non perturbatrices (appareil photo haute définition, LIF - *Laser Induced Fluorescence* et PIV - *Particle Image Velocimetry*) permettant de visualiser et de quantifier les champs de concentration et de vitesse. La situation type considérée correspond à l'infiltration d'un polluant (représenté par une solution saline) depuis une source ponctuelle. Compte tenu de la nécessité d'éclairer la cellule d'écoulement de manière défocalisée, l'intensité lumineuse présentait initialement des variations à la fois spatiale et temporelle. Celles-ci ont été compensées par (i) une calibration pixel par pixel couplée à (ii) l'utilisation d'image moyennée afin de lisser les fluctuations au cours du temps [ACL8].

Les expériences, réalisées à des concentrations et des débits volumiques variables, ont mis en évidence l'existence de deux régimes distincts de propagation du polluant pour une section donnée d'observation :

i. panache "sans digitations", caractérisé par une distribution spatiale sous la forme d'une "poire" allongée qui reste symétrique par rapport à l'axe vertical d'injection durant toute la durée de l'injection (Figure 9a). Son comportement semble être similaire à celui obtenu expérimentalement par Trinh Thieu (1974) ou numériquement par Oltéan & Buès (2002). En fait, on pourrait supposer que la zone centrale (zone rouge) correspond à un "noyau" caractérisé par un régime permanent.

ii. panache "avec digitations" présentant vers la fin de l'expérience, deux lobes symétriques, localisés de part et d'autre de l'axe vertical d'injection (Figure 9b).

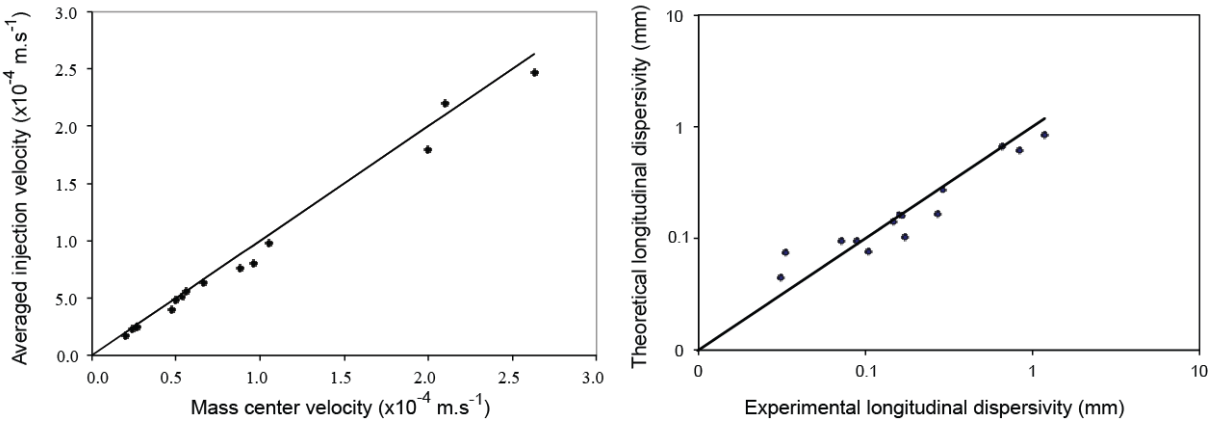


Figure 10. Comparaison entre (a) la vitesse de centre de masse et la vitesse radiale d'injection et (b) les valeurs expérimentales et numériques de la dispersivité longitudinale.

Ces résultats ont présenté un accord satisfaisant avec les simulations numériques et ont permis de reformuler les conditions théoriques issues de l'homogénéisation - initialement trop restrictives - permettant de caractériser la dispersion apparente au sein de la fracture [ACL10, ACL12]. Toutefois, cette comparaison a révélé aussi deux différences significatives [ACL10] :

- Une largeur de doigt sous-estimée par les prédictions numériques, due, peut être, à l'imprécision de mesure sur la cellule (0.5±0.05 mm),

- un processus de digitation retardé au niveau des simulations.

Une analyse plus poussée des expériences a été réalisée à travers des méthodes statistiques, *i.e.* la méthode des moments spatiaux et temporels. Tout d'abord, la comparaison donnée Figure 10a entre la vitesse de déplacement du centre de masse et la vitesse radiale d'injection $Q/\pi L_d$ (où L_d est l'épaisseur mesurée du doigt) a confirmé nos hypothèses concernant la formation de la digitation et de l'existence d'une vitesse constante axiale au sein du panache. La vitesse d'injection diminue radialement à partir de la source ponctuelle et la première digitation apparaît (à une distance $L_d/2$ de la source) lorsque la vitesse gravitaire, pratiquement constante, devient prédominante. Deuxièmement, le calcul du coefficient de variation (cf. Figure 11) et de la variance du champ de concentration ont souligné un même étalement longitudinal de la plume, quelles que soient les conditions et/ou le type de faciès (à un ou deux doigts). Enfin l'analyse des moments temporels et spatiaux d'ordre deux a conduit à une estimation des valeurs asymptotiques des dispersivités longitudinales (voir Figure 10b) et transverses en accord avec la théorie. En conclusion, ces résultats nous ont révélé que : (i) le phénomène de dispersion dans la cellule de Hele-Shaw était correctement décrit aux temps longs par le tenseur de dispersion issu de l'approche théorique et (ii) les configurations du type panache avec "digitations" dépendaient fortement du comportement pré-asymptotique de ce même tenseur de dispersion (non prise en compte par la théorie et donc aussi par les simulations) [AE4].

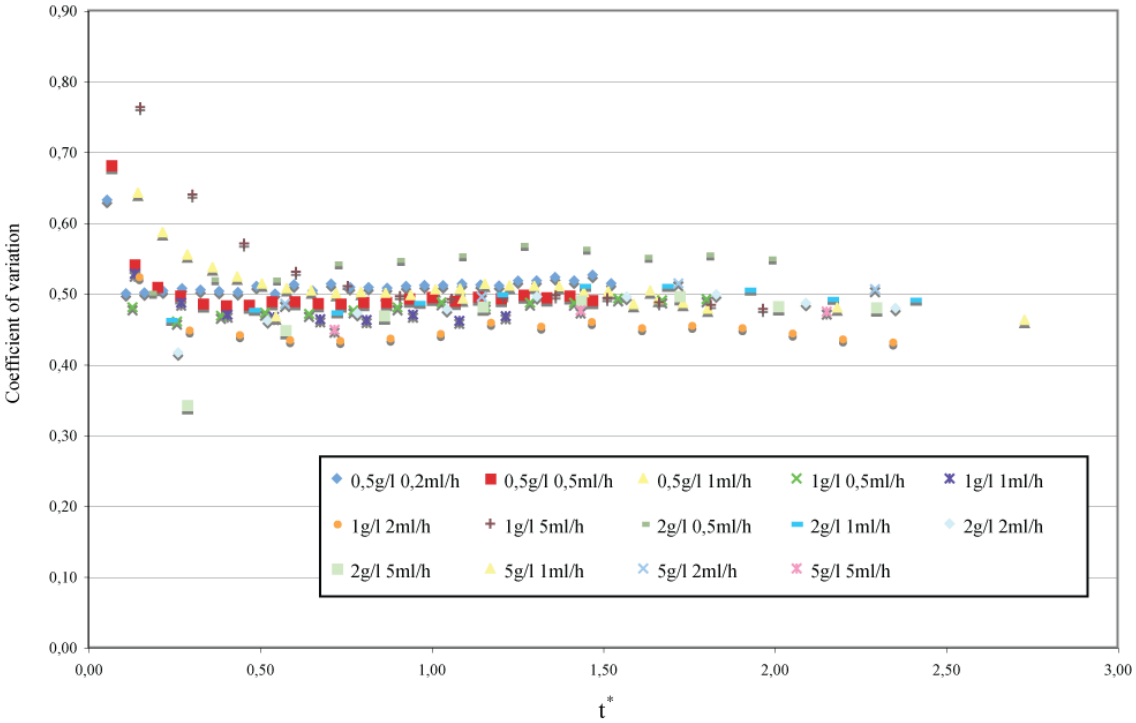


Figure 11. Évolution du coefficient de variation du champ de concentration du panache en fonction du temps adimensionnel

Dans le futur, le rajout de mécanismes réactifs ou d'adsorption aurait des perspectives très intéressantes tant d'un point de vue fondamental que pour les applications concernées. Nous

regarderons dans le chapitre suivant comment ces hétérogénéités peuvent impacter sur les processus réactifs.

.

CHAPITRE 3

PRISE EN COMPTE DES EFFETS DE COUPLAGE EN TRANSPORT RÉACTIF

La prise en compte des processus réactifs induits par les mécanismes physico-chimiques intervenant à l'interface fluide/roche est une problématique cruciale pour de nombreuses applications dans le domaine des géosciences : stockage géologique de CO_2, transport de fluide minéralisateur, dissolution des NAPL, formation des systèmes karstiques ou encore méthode de stimulation acide en génie pétrolier... Sous l'action des mécanismes réactifs qui peuvent générer une modification de la matrice rocheuse (par dissolution ou précipitation) et des effets de couplage avec les processus hydrodynamiques à petite échelle (diffusion limitante, écoulements préférentiels), les propriétés hydrodynamiques et réactives à l'échelle d'observation (*e.g.*, perméabilité, tenseur de dispersion, cinétique apparente, ….) s'en trouvent modifiées. Les cinétiques apparentes mesurées à l'échelle du terrain sont par exemple généralement beaucoup plus lentes que celles obtenues en laboratoire conduisant ainsi à une forte incertitude dans les simulations numériques à grande échelle. Dans le cas des processus de dissolution/précipitation, ces couplages génèrent des chemins d'écoulements préférentiels dont l'étude de "l'effet d'historicité" (variation temporelle de la géométrie du milieu à petite échelle) sur le comportement macroscopique constitue un de mes sujets de recherche.

I. DISSOLUTION EN MILIEU POREUX : PRISE EN COMPTE DES EFFETS D'HISTORICITÉ

La dissolution en milieu poreux est un mécanisme instable caractérisé par la formation de canaux d'écoulement fortement conductifs 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, …), les paramètres opératoires (débit d'injection, concentration de l'acide, …) et les conditions

thermodynamiques sont autant de facteurs jouant un rôle dans la mise en place de ces canaux dont le développement dynamique nécessite d'être étudié. Leur analyse devrait permettre une meilleure compréhension de ces processus *in situ* aussi bien dans la formation des milieux naturels (karstogénèse) qu'en vue de leur utilisation en ingénierie (*e.g.*, optimisation des techniques de stimulation acide de réservoir). Nous avons ainsi montré la capacité d'un modèle macroscopique à représenter la dissolution d'un milieu poreux et à reproduire aussi bien qualitativement que quantitativement des comportements macroscopiques observés. Cette approche a été envisagée à différentes échelles en se basant sur la méthode de prise de moyenne volumique : celle de Darcy tout d'abord, puis, compte tenu des résultats obtenus, à une échelle supérieure mais intermédiaire à celle du terrain ou du réservoir. De ce point de vue, plusieurs problèmes spécifiques ont dû être surmontés :

- **Écoulement Fluide/Poreux** : la présence de cavités fluides totalement dissoutes au contact de zones rocheuses encore intactes (voire partiellement dissoutes) nécessite de tenir compte aussi bien d'un écoulement darcéen que d'un écoulement de Stokes pur et de réussir à relier mathématiquement ces deux modèles (cf. Chapitre 2, Hétérogénéités du milieu).
- **Condition d'équilibre local / non–équilibre local** : en fonction des conditions d'injection, l'évolution de la matrice poreuse peut être décrite à l'échelle macroscopique par l'un ou l'autre de ces deux régimes. En d'autres termes, la dissolution peut être caractérisée soit par un front raide à l'interface entre la région fluide et le milieu poreux (équilibre local) soit par un front diffus associée à une zone poreuse intermédiaire présentant un gradient de porosité (cas général du modèle de non-équilibre local). Le modèle développé doit donc réussir à capturer ces deux types de faciès.
- **Historicité de la dissolution** : L'interface fluide/roche varie au cours de la dissolution progressive du milieu poreux ce qui conduit d'un point de vue macroscopique à une évolution de l'indicatrice de phase et donc de la porosité. Or, une modélisation macroscopique du système dont les coefficients effectifs sont solution de problèmes à petite échelle nécessite de pouvoir suivre l'évolution au cours du temps de la géométrie des pores. En d'autres termes, les grandeurs macroscopiques qui régissent le modèle sont directement dépendantes du temps (cf. Bekri *et al.*, 1995). Une solution pour s'affranchir de cette dépendance historique est d'approximer ce comportement au travers de corrélations ou lois d'état reliant directement les coefficients effectifs entre eux, *e.g.* $K = f(\varepsilon)$ ou $\mathbf{D}^* = f(\varepsilon, Pe_{pore})$. Je reviendrai plus longuement sur ce point par la suite.

Comparé aux modèles de dissolution classiques (modèle du tube capillaire, modèle réseau), l'originalité du modèle développé reposait sur une description de type Darcy-Brinkman pour la partie écoulement avec un modèle de dissolution de non-équilibre local :

Équation d'écoulement

$$\nabla p + \frac{\mu}{K}\mathbf{v} - \frac{\mu}{\varepsilon}\Delta\mathbf{v} = 0 \tag{34}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \tag{35}$$

Équation de transport et de conservation de la masse

$$\varepsilon \frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}c) = \nabla \cdot \left(\mathbf{D}^* \cdot \nabla c\right) - \alpha c \tag{36}$$

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = \frac{\beta}{\rho_\sigma}\alpha c \tag{37}$$

où ε représente la porosité, K la perméabilité, $\mathbf{D}^*$ le tenseur de dispersion, β le coefficient stœchiométrique et ρ_σ la masse volumique de la roche. Le paramètre clé est ici le coefficient d'échange de masse α . On peut noter 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 $c = 0$. Le modèle peut par conséquent être utilisé pour modéliser aussi bien des conditions d'équilibre local que de non équilibre local.

À ce stade, il reste à fixer les valeurs des coefficients effectifs et de déterminer leur évolution. Comme nous l'avons évoqué précédemment, il est classiquement admis qu'une relation directe existe entre ces différentes grandeurs pour un milieu poreux et un régime de dissolution donné. Par exemple, la perméabilité et la porosité sont reliées de sorte que nous ayons $\mathbf{K}(\varepsilon)$ au lieu de $\mathbf{K}(t)$ et $\varepsilon(t)$. De telles corrélations sont habituellement développées soit de manière heuristique (*e.g.*, la relation classique de Kozeny-Carman pour la corrélation de perméabilité-porosité) ou directement à partir de mesures expérimentales sur des échantillons de carottes (Luquot et Gouze, 2009 ; Gouze et Luquot, 2011). Néanmoins, il faut souligner deux points. Tout d'abord, les corrélations heuristiques sont généralement limités à des modèles géométriquement simples de milieux poreux homogènes (*e.g.*, des lits de billes tassés) et leur extrapolation à des milieux réels est souvent délicate. D'autre part, il doit être souligné que l'estimation expérimentale conduit généralement à une valeur moyennée des grandeurs macroscopiques sur toute la longueur de l'échantillon bien que celles-ci puissent varier localement et ces analyses sont souvent limitées à la caractérisation de la perméabilité et de la porosité.

Si dans notre cas, la relation de Kozeny-Carman est utilisée pour exprimer l'évolution de la perméabilité en fonction de la porosité, les autres propriétés macroscopiques sont déterminées explicitement à l'aide de la méthode de prise de moyenne volumique. Le calcul théorique de ces propriétés effectives est obtenu par l'intermédiaire de problèmes locaux et le couplage avec les processus à l'échelle inférieure est ainsi conservé. Néanmoins, même dans ce cas, ces calculs requièrent des hypothèses sur l'évolution temporelle de la structure microscopique du système. Cette dépendance historique a été partiellement surmontée en supposant une évolution uniforme de l'interface. Ainsi, la porosité peut directement être reliée à la géométrie des pores et la valeur des coefficients effectifs est calculée pour une géométrie fixée de manière indépendante du champ de concentration macroscopique. Cette hypothèse, forte,

n'est toutefois pas sans conséquence sur la solution à l'échelle de Darcy. Une autre alternative que l'on pourrait appeler *downscaling* proposé par Golfier *et al.* [ACL1] et Quintard et Whitaker (1999b) est d'utiliser les champs de concentration macroscopiques pour déterminer l'évolution à chaque pas de temps de la géométrie à petite échelle. Les problèmes de fermeture et le modèle de Darcy sont alors résolus de manière couplés ce qui permet de prendre en compte toute la complexité de l'historique du processus de dissolution. Une dernière solution, assez similaire dans l'esprit, correspond au modèle *mixte* ou *hybride* (cf. Chapitre 2 pour l'application aux conditions non-réactives) et revient à coupler la solution macroscopique loin de la zone de dissolution à une description à l'échelle du pore au niveau du front (Tartakovski *et al.*, 2008). Ces deux dernières approches sont bien sur beaucoup plus délicates que la précédente, et il est d'une grande importance en termes de temps de calcul de déterminer dans quelles conditions il est nécessaire de maintenir une telle complexité.

A partir de ce modèle, des simulations ont été conduites à l'échelle de Darcy sur des configurations 2D et 3D aussi bien pour des systèmes homogènes qu'hétérogènes. Il a été montré que le modèle reproduit correctement les différentes figures de dissolution, illustrées sur la Figure 12, et met en évidence un régime optimum d'injection [ACL1] déjà observé expérimentalement.

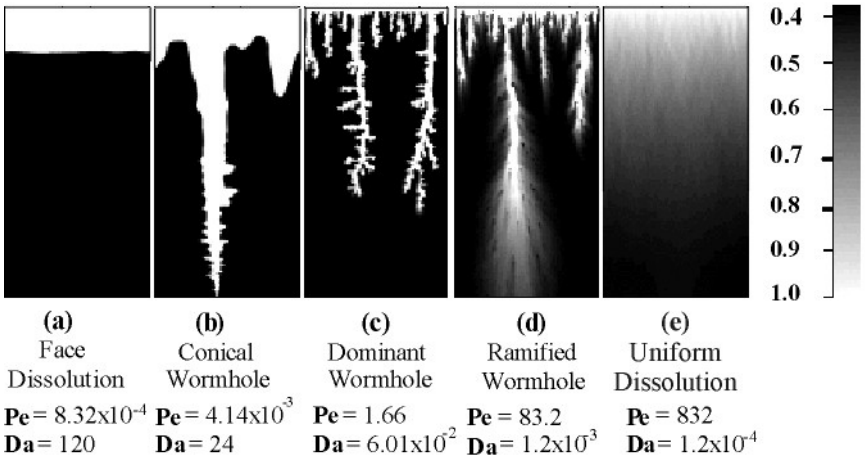


Figure 12. Champs de porosité obtenus numériquement représentatifs des régimes de dissolution et caractérisés par les valeurs des nombres adimensionnels de Péclet et Damköhler

Ce type de problème reste toutefois marqué par l'influence de l'historique et le couplage de l'évolution de l'interface microscopique avec le modèle macroscopique qui sont difficiles à modéliser. De nombreuses hypothèses simplificatrices sont généralement nécessaires (dissolution homogène de l'interface par exemple) pour s'affranchir de ces phénomènes dont l'influence sur la solution macroscopique mérite d'être plus amplement analysée. Notons qu'on retrouve de manière accrue ce problème dans le cadre de processus biologiques où l'on doit tenir compte de la croissance bactérienne (cf. Chapitre 4). A ce stade, la question de savoir si l'utilisation de telles corrélations est pertinente pour n'importe quelle situation mérite d'être posée. En effet, il a été montré que ceci peut être la source d'erreurs entre les résultats observés et leurs prédictions [ACL3]. Afin d'analyser de manière plus approfondie

ces effets d'historicité et la capacité d'un tel modèle macroscopique à capturer la cinétique effective de réaction, nous avons étudié la dissolution d'une fracture de longueur L et d'épaisseur constante ℓ – le milieu le plus simple en terme de géométrie. L'évolution du transfert de masse (ou de chaleur) dans un tube aux parois réactives (Berkowitz et Zhou, 1996) est un problème fréquemment traité dans la littérature depuis la caractérisation par Graetz de la valeur asymptotique du nombre de Nusselt (resp. Sherwood) dans le cas de parois à température (resp. concentration) constante. Il présente l'avantage de posséder des solutions semi-analytiques pour de nombreuses configurations permettant ainsi de valider les développements issus des méthodes d'homogénéisation (voir en particulier les travaux de Mikelic *et al.*, 2006 ou Mikelic et Rosier, 2007 et plus récemment les résultats de Kumar *et al.*, 2011 sur un cas similaire au notre) ou de prise de moyenne volumique (e.g. [ACL2] sur le problème de Graetz). Le problème aux limites peut alors s'écrire de manière adimensionnelle comme suit (en considérant une approche quasi-stationnaire) :

Équation d'écoulement

$$\nabla p = \mu \Delta \mathbf{v} \quad \text{dans la phase } \beta \tag{38}$$

C.L.1

$$\mathbf{v} = 0 \text{ sur } A_{\beta\sigma} \tag{39}$$

Équation de transport et de conservation de la masse

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad \text{dans la phase } \beta \tag{40}$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v} c) = \nabla \cdot (D \nabla c) \quad \text{dans la phase } \beta \tag{41}$$

C.L.2

$$\mathbf{n} \cdot D \nabla c = kc \text{ sur } A_{\beta\sigma} \tag{42}$$

C.L.3

$$\mathbf{w} \cdot \mathbf{n} = \Gamma kc \text{ sur } A_{\beta\sigma} \tag{43}$$

de sorte que deux nombres adimensionnels contrôlent la dissolution du milieu, le nombre de Péclet et le nombre de Damköhler. Afin de modéliser proprement l'évolution des parois de la fracture sous l'effet de la dissolution, une méthode ALE (*Adaptive Eulerian Lagragian*) a été privilégiée (cf. Kumar *et al.*, 2011 pour l'application de cette méthode au problème de dissolution). A la différence des méthode d'interface diffuse (similaire à celle utilisée dans Zu and Meakin, 2008 ou Luo *et al.*, 2011) ou autres approches du type Level Set ou Volume of Fluid (VOF), ce suivi de la déformation du maillage permet de récupérer de manière exacte les valeurs des flux aux interfaces. Les simulations ont été réalisées à l'aide de COMSOL Multiphysics. On obtient classiquement deux régimes de dissolution distincts (cf. Mourzenko *et al.*, 1996 ; Bekri *et al.*, 1997) :

- **Dissolution uniforme ou dominée par la convection** (Pe>>Da) : La fracture s'élargit graduellement mais de manière homogène. La concentration est constante au sein de la fracture de sorte que la dissolution est uniforme sur toute la longueur du domaine.

- **Dissolution dominée par la cinétique** (Pe<<Da) : la solution acide est consommée beaucoup plus rapidement qu'elle n'est transportée le long de la fracture et le champ de concentration est caractérisé par un fort gradient. Sous l'effet de la réaction aux parois, la fracture s'évase plus fortement à l'entrée qu'en sortie du domaine au cours du temps.

Notons que la limite entre ces deux régimes reste dépendante de la longueur de la fracture, ou en termes de nombre adimensionnel, du facteur de forme $F = \frac{L}{\ell}$ du problème. Sur la base des différentes simulations réalisées, l'expression des coefficients effectifs en fonction du temps a été obtenue par intégration spatiale en différentes sections de la fracture et nous avons ainsi pu analyser l'existence éventuelle de lois d'état reliant ces différentes grandeurs macroscopiques entre elles.

Si l'on considère tout d'abord le premier régime, l'évolution spatiale de ces différents coefficients pour un temps donné indique clairement l'existence de deux zones en fonction de la position par rapport à l'entrée du tube:

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 inférieure aux valeurs obtenues dans la zone d'établissement.

L'analyse de ces résultats à différents temps met en évidence l'existence de corrélations entre les différentes valeurs asymptotiques de ces paramètres telles que $K = f(\varepsilon)$, $\mathbf{D}^* = f(\varepsilon, Da, Pe_{pore})$ et $\alpha^* = f(\varepsilon, Da, Pe_{pore})$. En effet, la géométrie étant connue dans ce cas à chaque instant (parois parallèles), on peut directement relier l'évolution temporelle de la fracture à la porosité. Or, pour un temps donné, d'un point de vue quasi-stationnaire, le problème se ramène au cas simplifié du transfert de masse entre deux plaques. Pour de telles conditions, les propriétés effectives peuvent être déterminées analytiquement et corroborent les calculs issus des simulations directes. La perméabilité est directement reliée à la largeur de la fracture $K = b^2/12 = \varepsilon^2 h^2/12$ la dispersion axiale correspond à une dispersion de Taylor modifiée (de par le terme réactif aux parois) et, enfin, l'expression du terme de réaction est donnée par la solution semi-analytique de Graetz (cf. Jakob, 1949 pour le cas d'une cinétique instantanée).

D'autre part, compte tenu de l'existence de solutions analytiques exactes pour ce problème, il serait intéressant de vérifier si le calcul théorique issu de la méthode de prise de moyenne volumique permet de retrouver ces expressions. Il est bon de rappeler ici que l'écriture donnée des problèmes de fermeture qui contrôlent le champ de déviation suppose que la région représentative soit une cellule unitaire dans un milieu spatialement périodique. Autrement dit, ceci implique que l'on néglige les effets de forts gradients. Ce faisant, les effets de la zone d'établissement sont négligés, et l'on s'attend à récupérer la solution asymptotique. Dans le

cas d'une dissolution parallèle des parois, ces problèmes de fermeture peuvent être résolus de manière analytique et l'on a ainsi démontré dans le cas d'une cinétique instantanée dans un tube (Zanotti & Carbonell 1984c, Mahinpey et al. 2001) que l'expression du Sherwood donnée par la théorie convergeait vers 3.8 [ACL2] soit moins de 4% d'erreur par rapport à la solution exacte ($Sh_{tube} = \alpha r^2 / D = 3.66$ où r est le rayon du tube). La solution a ensuite été généralisée au cas d'une cinétique lente (valeur de Da finie) pour une fracture plane [TH2] conduisant aux expressions adimensionnelles suivantes pour les grandeurs macroscopiques :

$$Sh = \frac{3Da}{Da+3} \tag{44}$$

$$D_{eff}^{*} = D_{mol} + \frac{6Pe^2}{35(3+Da)^2} + \frac{3Da\,Pe^2}{25(3+Da)^2} + \frac{2Da^2 Pe^2}{175(3+Da)^2} \tag{45}$$

$$V_{eff} = \left(1 + \frac{Da(42+19Da)}{35(3+Da)^2}\right) Pe \tag{46}$$

tel que

$$\frac{\partial C}{\partial t} + V_{eff}\frac{\partial C}{\partial x} = D_{eff}^{*}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - Sh\,C \tag{47}$$

Pour $Da \to 0$, on peut noter que la dispersion converge bien vers la solution de Taylor (les nombres adimensionnels de Péclet et Damköhler sont définis ici par rapport à la demi-largeur de fracture) tandis que la solution théorique du coefficient d'échange a été vérifiée être en accord avec les simulations numériques directes.

En revanche, pour le second régime, on constate que l'on ne peut pas s'affranchir des effets d'historicité et que les lois d'état dépendent de manière non-locale de l'évolution de la fracture. Même pour la corrélation $K = f(\varepsilon)$, la plus simple, on récupère un relation du type $K = \varepsilon^n$, en accord avec d'autres travaux issus de la littérature (Civan, 2001 ; Noiriel et al., 2004 ; Luquot et Gouze, 2009 ; Gouze and Luquot, 2011) si ce n'est que cet exposant n varie en fonction du temps. Comme nous l'avons souligné précédemment, la caractérisation expérimentale de tels corrélations est implicitement biaisée par un effet de taille de l'échantillon ce qui conduit à une corrélation apparente où les effets non-locaux sont lissés par la moyenne sur la longueur de la carotte. On peut noter que l'influence de ces effets non-locaux sur la détermination des propriétés macroscopiques de transport a été notamment étudiée par Cushman et al. (Cushman & Moroni 2001a, Cushman & Moroni 2001b) dans le cadre de la dispersion anormale en milieux poreux hétérogènes. Intégrer ces comportements au niveau du changement d'échelle nécessiterait de fortement modifier l'écriture du problème de fermeture. Les conditions de périodicité devraient être éliminées afin de tenir compte de la région d'entrée et les variables de fermeture seraient aussi fonctions de la distance x par rapport à l'injection ce qui conduirait à un problème de fermeture évolutif. Compte tenu de la complexité de cette approche, il peut être plus simple de conserver dans cette zone une modélisation directe du processus.

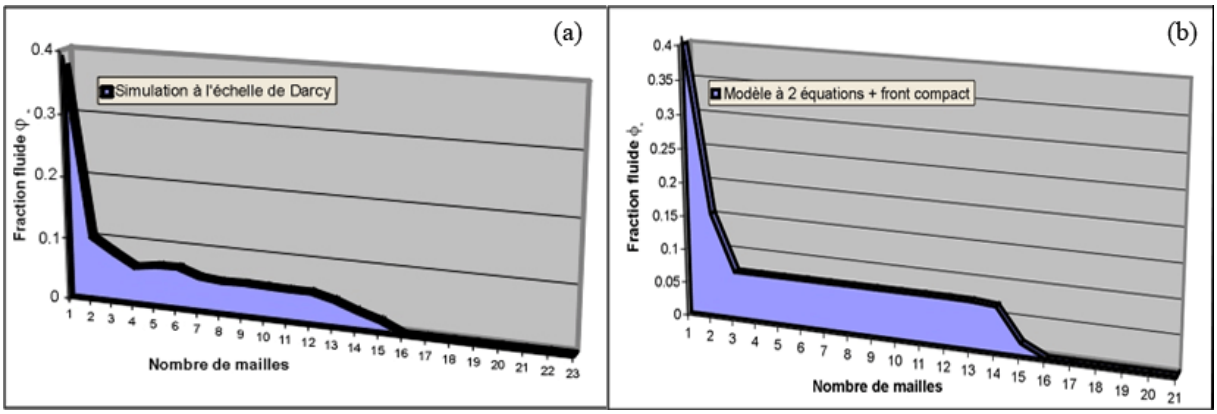


Figure 13. Comparaison de la fraction fluide prédite par la simulation et le modèle macroscopique à deux équations

En se basant sur les résultats 2D du modèle de dissolution, la possibilité d'une description du phénomène à l'échelle de la carotte, c'est-à-dire en effectuant des moyennes sur des sections du domaine, a été explorée [ACL3, ACL6]. Plusieurs approches ont ainsi été envisagées en fonction de l'existence ou non de la condition d'équilibre de masse local à grande échelle. Il est ressorti de cette analyse qu'un modèle à deux équations était le plus à même de capturer la physique du problème. Afin de simuler le comportement au niveau de la section d'entrée discutée précédemment, une expression transitoire pour le coefficient d'échange a été dérivée de manière empirique telle que :

$$\begin{aligned} \alpha &= \alpha_0 \quad \text{si } t \le t_0 \\ \alpha &= \alpha_{asymptotique} \quad \text{si } t > t_0 \end{aligned} \tag{48}$$

où α_0 est une constante empirique permettant de simuler le front compact en entrée et $\alpha_{asymptotique}$ la valeur asymptotique du coefficient issue du problème de fermeture ou déterminée à partir des simulations numériques directes.

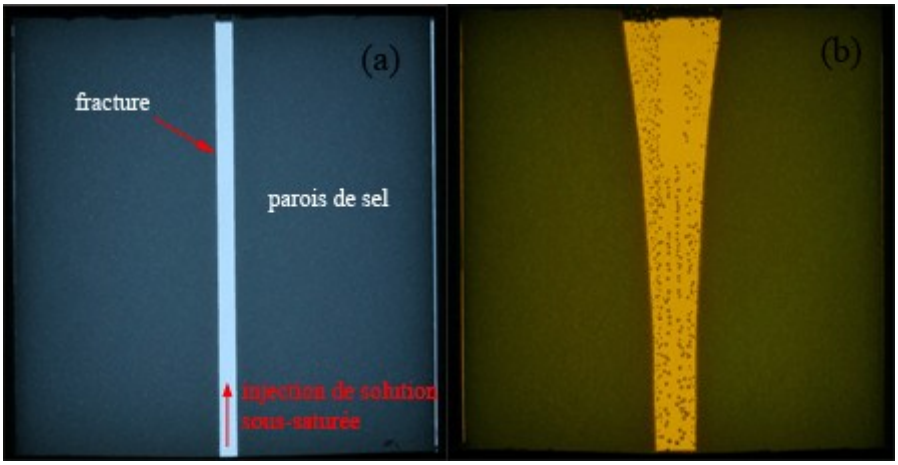


Figure 14. Dissolution expérimentale d'une fracture verticale pour un débit d'injection Q=15 mL.h-1 : (a) état initial et (b) après dissolution.

Néanmoins, aucun de ces modèles ne prend en compte les variations de densité du fluide sous l'effet de la dissolution et sont donc restreints à des conditions opératoires où les concentrations des espèces diffusées dans la phase fluide restent faibles. Or, ces gradients de masse volumique peuvent jouer un rôle très important et conduire soit à stabiliser, soit à favoriser le développement des figures de dissolution en fonction de la configuration étudiée (cf. Chapitre 2 : variabilité des propriétés physiques du fluide).Cette problématique qui fait partie des questions ouvertes soulevées par Berkowitz (2002) dans son état de l'art sur les milieux fracturés reste encore en suspens. En conséquence, nous avons commencé à nous intéresser à ces effets de couplage, toujours au travers de la dissolution des parois d'une fracture isolée [TH2]. Une étude expérimentale a été menée dans un premier temps sur une fracture 2D modèle de 10 cm de longueur. Celle-ci est formée de deux plaques en sel compacté, distantes de 3 mm, disposées verticalement dans une cellule d'écoulement saturée par une solution saline sursaturée. Le phénomène de dissolution est obtenu par l'injection, à différents débits, d'une solution saline sous-saturée dans l'espace entre les deux plaques en sel. L'évolution spatio-temporelle de la fracture est suivie par acquisition d'images à l'aide d'un appareil photographique haute résolution. La cellule est disposée actuellement verticalement et l'injection réalisée par l'extrémité inférieure mais d'autres configurations sont envisagés pour la suite de l'étude (injection et gravité dans la même direction ou perpendiculaires).

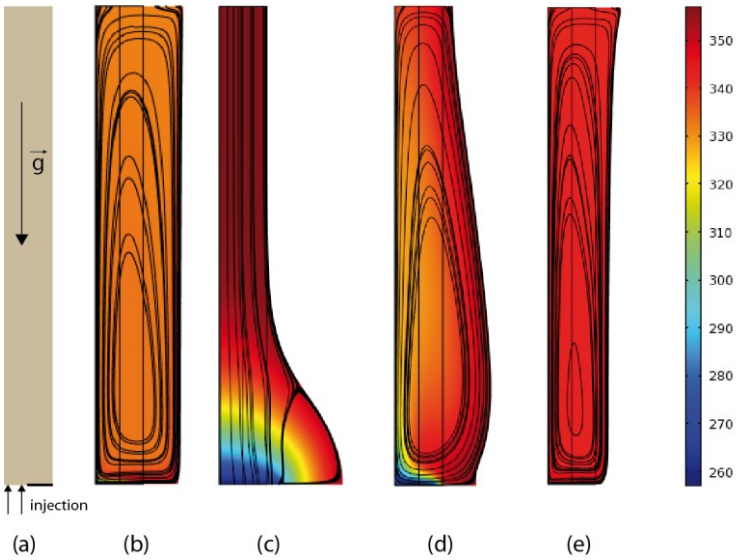


Figure 15. Configuration initiale de la fracture avant dissolution (*a*) et facies de dissolution, champ de concentration et lignes de courant pour Pe=1 Da=0.1 Ri=2x10^7 (*b*) Pe=0.1 Da=10 Ri=2x10^2 (*c*) Pe=0.1 Da=10 Ri=2x10^5 (*d*) et Pe=5 Da=5 Ri=2x10^7 (e)

Les résultats expérimentaux observés ont suggéré un fort couplage entre les processus d'écoulement gravitaire, de transport convectif et de cinétique de réaction ce qui confirme les mesures effectuées en RMN par Dijk et Berkowitz (2000) et Dijk *et al.* (2002) ou les observations de Anderson et Kirkland (1980). Si pour de fortes vitesses (pour une concentration de sel fixée), on récupère comme précédemment une évolution parallèle des parois, en revanche, pour de faibles vitesses d'injection, et contrairement au cas du

« traceur », on observe un phénomène de dissolution qui débute dans la partie supérieure de la cellule (*alors que l'eau pure est injectée par le bas*) et se propage, au fur et à mesure, vers sa partie inférieure. Ce comportement suggère l'apparition et le développement de deux cellules convectives contrarotatives qui transportent le fluide léger (l'eau pure), tout en haut de la fracture où celle-ci dissout les parois.

Afin d'analyser de manière plus rigoureuse ces effets de couplage et leurs influences sur les faciès de dissolution observés, la dissolution de cette fracture verticale a été modélisé. Au niveau de l'écriture des équations, outre les nombres de Péclet et de Damköhler, un nombre adimensionnel supplémentaire apparait ici, le nombre de Richardson définit comme suit :

$$Ri = \frac{\Delta \rho g l}{v_0^2} \tag{49}$$

Comme précédemment, une méthode ALE a été utilisée pour tenir compte de la déformation du maillage [CAI14]. Une étude de sensibilité du maillage a été effectuée afin de correctement capturer les cellules de convection naturelles. Les simulations numériques directes ont été effectuées pour différentes valeurs des nombres adimensionnels caractéristiques des processus. Quelques exemples de la complexité des faciès observés (dissolution prédominante en sortie de la fracture, instabilité) sous l'effet de la compétition entre le nombre de Péclet, de Damköhler et de Richardson sont représentés ci-dessus (cf. Figure 15). On distingue globalement 3 régimes :

- **Un régime dominé par la convection** où les parois restent parallèles tout le long de la simulation (Figure 15b).
- **Un régime dominé par la cinétique** où la dissolution s'effectue préférentiellement en entrée du domaine (Figure 15c).
- **Un régime dominé par les effets gravitaires**, enfin, où la dissolution est principalement localisée en sortie du domaine (Figure 15e).

A ces trois régimes principaux, viennent se rajouter des zones de transition où le processus de dissolution évolue de manière complexe sous l'effet combiné des différents mécanismes physiques (e.g., Figure 15d). Nous avons ainsi pu proposer un premier diagramme de régime expliquant ces comportements.

II. GAZÉIFICATION DU CHARBON : TRANSPORT COUPLÉ DE MASSE ET DE CHALEUR MULTI-ESPÈCES

Un autre exemple d'application de ces mécanismes réactifs en milieu poreux mais qui sort cette fois-ci du domaine des géosciences concerne la gazéification du charbon dans des réacteurs à lit fixe. De nos jours, en effet, la gazéification du charbon apparaît de plus en plus comme un procédé industriel propre et efficace de production de combustible gazeux. Ce processus consiste à convertir en gaz les particules de « char » (résidu solide obtenu après pyrolyse du bois, plus communément appelé *charbon de bois*) en les chauffant en présence de vapeur d'eau. Cette réaction endothermique se produit à des températures entre 800 et 1000°C et requiert un apport de H_2O et de chaleur au sein du lit. Compte tenu de la complexité du problème et afin de déterminer les hypothèses simplificatrices qui peuvent être émises, une

connaissance détaillée de la gazéification d'une particule de char et de la physique à l'échelle du pore est nécessaire. On se retrouve ici avec un problème à la fois multiphasique, multi-constituants (9 espèces au total), multi-réactionnel (6 réactions), auquel les aspects transfert de chaleur - écoulement compressible viennent rajouter de nouvelles difficultés.

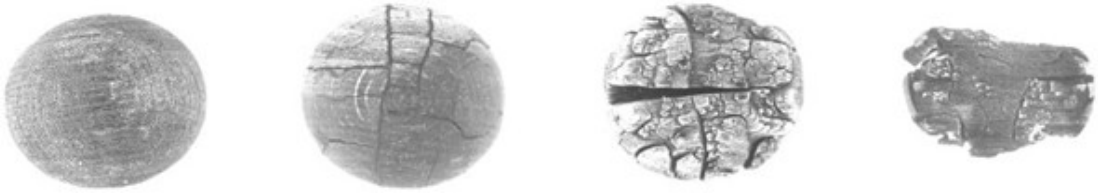


Figure 16. Èvolution du char à différents stades de conversion

Une étude expérimentale a tout d'abord été menée dans le cadre de la thèse de F. Mermoud (2006) afin de caractériser l'influence des conditions de pyrolyse sur les propriétés du charbon résiduel et sur son comportement par la suite au cours de la gazéification. Nous avons ainsi mis en évidence le fort impact de la vitesse de chauffe au cours de la pyrolyse sur la masse volumique finale du char ainsi que sur sa vitesse de gazéification (un rapport de 3 environ a été observé entre les plus fortes et plus faibles vitesses). Ce comportement n'est pas du à un processus de désactivation thermique mais est vraisemblablement relié à un effet combiné de la variation de la surface réactive et de la teneur en cendres dans la particule de bois pyrolysée [ACL5].

J'ai alors développé un modèle numérique pour une particule isolée couplant les différents mécanismes mis en jeu et prenant véritablement en compte l'historique de gazéification (évolution de la géométrie de la particule au cours du temps, interaction des différentes espèces chimiques) afin de déterminer les phénomènes limitants. La géométrie de la particule est supposée rester sphérique tout au long de la réaction de manière à ramener le problème à un comportement 1D radial. Cette hypothèse est toutefois discutable, particulièrement en fin de gazéification (cf. Figure 16). Le système d'équations qui régissent le problème peut alors s'écrire de la manière suivante :

$$\nabla P_\eta = -\mu \mathbf{K}_\eta^{-1} \cdot \mathbf{V}_\eta \tag{50}$$

$$\frac{\partial\left(\varepsilon_\eta \rho_{\beta\eta}\right)}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\rho_{\beta\eta} \mathbf{V}_\eta\right) = \sum_{j=1}^{n} R_{j\eta} \tag{51}$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\eta}{\partial t} = \frac{1}{\rho_{\sigma\eta}} \sum_{j=1}^{n} R_{j\eta} \tag{52}$$

$$\underbrace{\frac{\partial\left(\varepsilon_\eta \rho_{\beta\eta} C_{j\eta}\right)}{\partial t}}_{\text{accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot \left(\rho_{\beta\eta} \mathbf{V}_\eta C_{j\eta}\right)}_{\text{convection}} = \underbrace{\nabla \cdot \left(\rho_{\beta\eta} \mathbf{D}_{j\eta}^{*} \cdot \nabla C_{j\eta}\right)}_{\text{diffusion}} + \underbrace{R_{j\eta}}_{\text{réaction}} \tag{53}$$

$$\underbrace{\left(\rho C_P\right)_\eta \frac{\partial T_\eta}{\partial t}}_{\text{accumulation}} + \underbrace{\left(\rho C_P\right)_{\beta\eta} \mathbf{V}_\eta \cdot \nabla T_\eta}_{\text{convection}} = \underbrace{\nabla \cdot \left(\lambda_\eta^* \nabla T_\eta\right)}_{\text{conduction}} + Q_\eta \tag{54}$$

$$P_\eta = \frac{\rho_{\beta\eta} R T_\eta}{M_{\beta\eta}} \tag{55}$$

Bien que le problème à l'échelle du gazogène soit plus complexe, on se limite ici à 4 espèces : H_2O, CO, H_2 and N_2 (au comportement inerte d'un point de vue réactionnel) et à la réaction prépondérante de gazéification

$$C_f + H_2O \rightleftharpoons CO + H_2 \tag{56}$$

dont la cinétique est décrite ci-dessous par une formulation de type Langmuir-Hinshelwood

$$R_{char} = -\frac{k_1 p_{H_2O} + k_4 p_{H_2O} p_{H_2} + k_5 p_{H_2O}^2}{1 + k_2 p_{H_2} + k_3 p_{H_2O}} \rho_\eta \tag{57}$$

Compte tenu de la non-linéarité du problème et des forts couplages entre les divers processus physico-chimiques (transport / énergie / cinétique de réaction), il a été nécessaire d'introduire des méthodes de résolution itératives performantes et des procédés de séparation des opérateurs afin d'éviter une résolution complètement implicite, coûteuse et peu précise. L'expression des différentes cinétiques de réaction ont été extraites de la littérature et calées par rapport aux mesures expérimentales en laboratoire. Les simulations ont été réalisées pour des particules de « char » de différents diamètres, gazéifiées à des températures différentes, et comparés aux expériences réalisées en four tubulaire (Figure 17). Ces comparaisons ont permis de vérifier que le modèle à l'échelle de la particule reproduisait parfaitement d'un point de vue qualitatif les différents processus physiques mis en jeu et nous a confortés dans l'idée que l'utilisation des hypothèses d'équilibre de masse local n'était pas satisfaisante à l'échelle du réacteur [ACL4]. En revanche, la prise en compte d'une hypothèse d'équilibre thermique local, i.e. que la température moyenne au sein de la particule est du même ordre de grandeur que la température des gaz environnants, est tout à fait pertinente comme illustré sur la Figure 17. J'ai par la suite introduit la fragmentation périphérique basée sur un modèle de percolation ce qui a permis d'améliorer les prédictions du modèle à forts taux de conversion [ACL13].

Sur la base des résultats obtenus, une première modélisation du comportement du réacteur a ensuite été mise en place en utilisant une formulation hybride (cf. Chapitre 2 pour le cas non réactif). Celui-ci associait une représentation macroscopique pour la phase gazeuse (obtenue à partir de méthodes de prise de moyenne volumique) couplée à une description fine à l'échelle de la particule pour la phase poreuse (char).

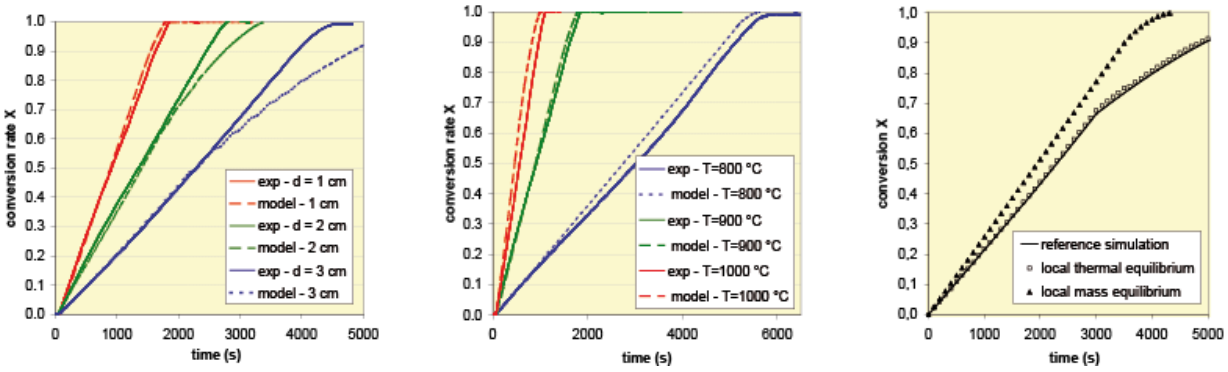


Figure 17. Comparaison de la vitesse de gazéification des particules de char mesurées expérimentalement et simulées numériquement pour différents diamètres de particule et différentes températures. Validité de l'hypothèse d'équilibre de masse local et d'équilibre thermique local dans le cadre du modèle en lit fixe.

CHAPITRE 4

IMPACT DES PROCESSUS BIOLOGIQUES SUR L'HYDRODYNAMIQUE ET LE TRANSPORT

I. INTRODUCTION

1. COMPLEXITÉ ET ENJEUX LIÉS À LA PRISE EN COMPTE DE L'ACTIVITÉ MICROBIENNE EN MILIEU POREUX.

L'ajout de mécanismes biologiques liés à l'activité microbienne introduit un degré de complexité supplémentaire dans la modélisation des écoulements souterrains compte tenu de la spécificité de ces processus (description complexe en terme biologique, croissance des microorganismes). Les eaux souterraines contiennent en effet une forte proportion de la biomasse terrestre sous forme de microorganismes qui participent aux cycles géochimiques nécessaires au maintien de la vie. Les bactéries, qui constituent une large part de ces microorganismes (les problématiques liées à la présence de virus ou protozoaires ne seront pas évoquées ici), présentent une forte variabilité tant en terme de population, de forme (sphériques, hélicoïdales, cylindriques, flagelées), de taille (de 0.2 à 15 µm environ) que de mode de croissance (*e.g.*, aérobie/anaérobie, autotrophe ou hétérotrophe). Elles peuvent se développer sous forme planctonique (bactéries mobiles transportées par l'eau) ou de biofilm (agrégat généralement multi-bactérien leur permettant de survivre aux conditions de stress extérieure) et constituent un système complexe, très hétérogène et en forte interaction (symbiose/compétition, prédation) faisant appel à des processus multiples : chimiotaxie (motilité bactérienne), croissance et mort cellulaire, mécanismes d'attachement/détachement (entre les bactéries planctoniques et les biofilms présents), apoptose, *quorum sensing, …*

De manière simplifiée, le métabolisme bactérien qui est à l'origine de ces processus réactifs nécessite une source de matière (principalement de carbone, mais aussi d'azote, d'oxygène et d'hydrogène), une source d'énergie et un donneur d'électron. Nous nous limiterons par la suite à des biofilms constitués des bactéries chimio-organo-hétérotrophes (les plus courants

dans le cadre de nos applications), *i.e.* : des bactéries utilisant des substances organiques comme source de carbone et comme accepteur d'électron. On considérera uniquement une substance organique fournissant carbone et énergie, appelé par la suite accepteur d'électron ou substrat, et une espèce chimique jouant le rôle de donneur d'électron. Suivant la nature du donneur d'électron (dioxygène ou non), on parlera alors d'espèce bactérienne aérobie ou anaérobie (cette distinction franche doit cependant être relativisée; il existe aussi des bactéries anaérobies facultatives ou aérobies facultatives, aérotolérantes, micro-aérophiles, …). Le bilan en termes d'espèces chimiques du métabolisme bactérien peut ainsi s'écrire schématiquement sous la forme :

$$\mu_{A\mathrm{w}} A + \mu_{\mathrm{Bw}} B \rightarrow \mu_{\mathrm{Cw}} C \tag{58}$$

où A est un composé organique qu'on nomme l'accepteur d'électron ou le substrat, B est le donneur d'électron (classiquement le dioxygène ou le nitrate), C est la biomasse produite par la réaction (qui n'est généralement pas composée que d'une seule espèce chimique) et $\mu_{A\mathrm{w}}$, μ_{Bw} et μ_{Cw} sont les coefficients stœchiométriques associés. Notons qu'un ou plusieurs catalyseurs éventuels peuvent être nécessaires à cette transformation. Le bilan énergétique couplé à cette réaction n'est pas détaillé ici car il implique bien souvent des espèces vectrices supplémentaires présentes dans la bactérie (comme l'ADP et l'ATP par exemple).

Le transport d'espèces chimiques en présence de bactéries est un domaine de recherche qui suscite un intérêt croissant pour ses applications industrielles et environnementales : bioremédiation des sites et sols pollués, compréhension des cycles géochimiques (*e.g.*, implication dans la formation et dissolution de minéraux), influence sur les conditions de stockage souterrain de gaz ou de déchets radioactifs (amélioration de la couverture par biocolmatage, impact des bactéries sulfurogènes sur les containers de déchet), biodégradation pour le confinement des déchets. Avec le nombre croissant de sites à traiter et les difficultés générées par les méthodes classiques de dépollution (méthode lourde et coûteuse, excavation parfois nécessaire, terre pouvant être rendue stérile pour plusieurs années), la bioremédiation par exemple représente une voie économiquement porteuse qui peut répondre à certaines problématiques de pollution. Le biofilm, composé d'une population bactérienne et de substances organiques extracellulaires, se développe généralement sur les parois des pores sous la forme d'un film plus ou moins épais. Les solutés organiques servent de substrat à la population bactérienne, qui les convertit *in fine* en biomasse par le biais de réactions d'oxydo-réduction. Néanmoins, ce phénomène peut être très lent, d'où l'intérêt d'améliorer cette atténuation naturelle dans les sites fortement contaminés, grâce à des techniques d'ingénierie environnementale comme le *biosparging* ou le *bioventing* (injection de dioxygène et/ou de nutriments dans le sol pour favoriser le développement bactérien ; *e.g.* Dybas *et al.*, 1998 ou encore Wu *et al.*, 2006). Une large littérature est consacrée à cette problématique et nous renvoyons le lecteur à ces articles (e.g. National Research Council, 1993 ou encore Löffler et Edwards, 2006 pour une récente revue de l'état de l'art).

2. QU'EST-CE-QU'UN BIOFILM : RÔLE ET DYNAMIQUE

Un des points essentiels dans la description de ces processus biologiques est lié au rôle clé joué par les biofilms dans la biodégradation *in situ*. Ceci nécessite de définir plus précisément en quoi consiste un biofilm : c'est une colonie de micro-organismes (bactéries, mais aussi levures, champignons ou protozoaires, *e.g.* : Block, 1992) se développant au sein d'une matrice de substances polymériques extracellulaires (souvent notées EPS, pour *Extracellular Polymeric Substances*) et fixé à une interface (la plupart du temps solide-liquide mais on peut aussi en trouver sur des interfaces de type solide-gaz, liquide-gaz ou encore liquide-liquide). Dans le cas d'un aquifère, celui-ci se développe généralement sous forme d'une couche adhérente aux parois des pores. Outre la part de biomasse active (*i.e.*, les cellules bactériennes vivantes) et la fraction d'EPS sécrétée par les bactéries (formant en général 75 % à 95 % de la masse totale du biofilm) et principalement composée de polysaccharides hautement hydratés et de protéines, les biofilms peuvent aussi comporter une fraction restante de cellules bactériennes mortes ainsi que des composés solubles issus de l'activité microbienne (ou SMP, pour *Soluble Microbial Products*) voire des matériaux non cellulaires (minéraux, particules argileuses…) (Laspidou et Ritmann, 2002).

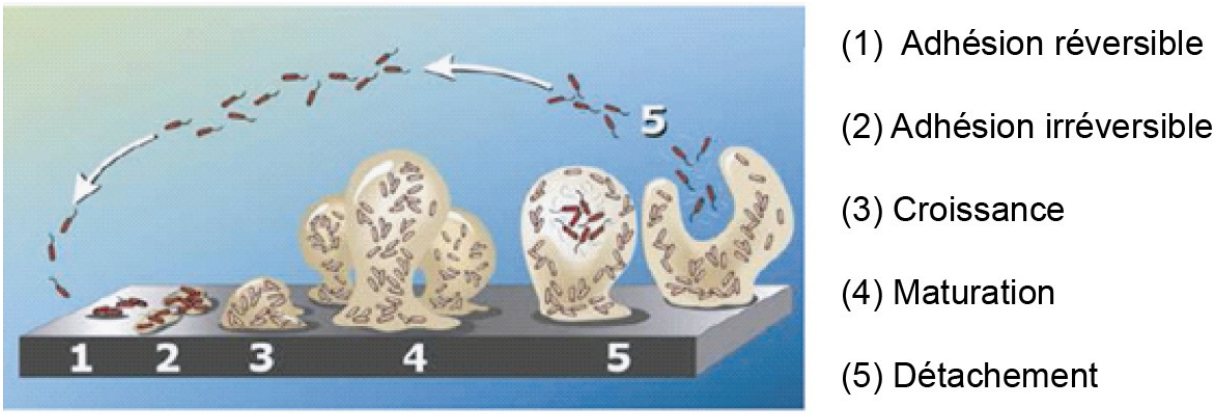
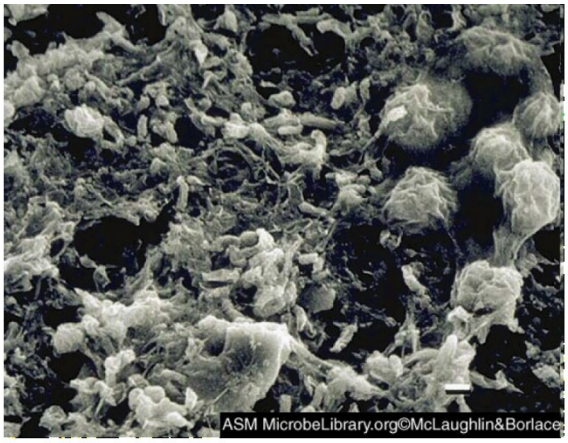


Figure 18. Représentation du cycle de vie d'un biofilm

En général, les biofilms abritent différentes espèces de bactéries, formant ainsi des consortia fonctionnels pouvant être le siège d'interactions complexes entre les différentes communautés de microorganismes (symbiose métabolique, relation de compétition voire de prédation, communication biochimique ou *quorum sensing* ; Davies *et al.*, 1998). Comme tout milieu vivant, ces biofilms évoluent bien entendu au cours du temps, comme illustré Figure 18. Bien qu'une telle représentation reste toutefois très schématique (processus parfois concomitants, transitions diffuses), celle-ci permet d'appréhender le développement d'un biofilm selon un schéma linéaire simple. On peut ainsi diviser le cycle de vie d'un biofilm en 5 phases majeures: (1) **l'adhésion réversible** des bactéries planctoniques à la surface d'attachement (substratum), (2) **l'adhésion irréversible** des bactéries à la surface impliquant entre autre des variations importantes du métabolisme bactérien ainsi que la sécrétion des premières molécules d'EPS, (3) **la phase de croissance** proprement dite avec la multiplication des bactéries et la poursuite de la sécrétion d'EPS, (4) **le stade de maturation** du biofilm où l'état stationnaire de croissance est atteint, et enfin (5) **le détachement** et la remise en suspension de cellules bactériennes ou de flocs bactériens (sous l'effet de l'érosion hydrodynamique ou

de la pénurie de nutriments), susceptibles à leur tour de recommencer un cycle en adhérant à une autre interface solide-fluide.

Les biofilms sont ainsi marqués par une dynamique complexe de par les interactions entre les populations bactériennes qui les composent et de par leur interaction permanente avec leur environnement (influence des propriétés de surface sur l'attachement, impact de la limitation du substrat, variabilité de la porosité du biofilm lors de la croissance sous l'effet du cisaillement). Ces interactions peuvent jouer dans les deux sens puisque le biofilm va perturber à son tour le milieu environnant : modification des conditions biochimiques (pH, force ionique…), modification de la géométrie du réseau de pores et donc de l'hydrodynamique sous l'effet de la croissance (*bioplugging*). Ceci conduit finalement à des structures géométriques tridimensionnelles extrêmement hétérogènes et variables (filamenteuses, corpusculaires, denses, ramifiées, …) fortement dépendantes de leurs compositions et de leur environnement (*e.g.*, Walker et Marsh, 2004 ; cf. aussi les exemples présentés sur la Figure 19), qui vont évoluer aussi bien dans l'espace que dans le temps.



Biofilm se développant sur des lentilles de contact (observé au microscope électronique à balayage)

Biofilm se développant sur une plante (observé au microscope électronique à balayage)

Figure 19. Exemples de biofilms

3. ASPECT MULTI-ÉCHELLE

Une modélisation plus poussée des phénomènes de transport bioréactif permettrait d'optimiser ces procédés biotechnologiques et de manière plus générale apporterait une meilleure compréhension de tout système impliquant une activité microbienne. Une grande part de la difficulté liée à la modélisation de ce type de transport à grande échelle concerne l'aspect multi-échelle du phénomène déjà souligné. La situation type, représentée sur la Figure 1, illustre parfaitement cette complexité : le biofilm est lui-même une sorte de milieu poreux dans lequel les bactéries jouent le rôle d'une phase solide, active à cause des réactions chimiques internes et membranaires, l'eau (dans le cas monophasique) s'écoule et échange par diffusion et convection vers le biofilm, avec les mécanismes de retard induits. Enfin, l'ensemble des écoulements se produit dans un milieu hétérogène. À ces hétérogénéités spatiales, viennent s'ajouter des hétérogénéités de processus et de temps caractéristiques comme illustré Figure 20.

Si l'intérêt porté aux réactions microbiennes en milieu poreux a conduit au développement d'un grand nombre de modèles mathématiques pour décrire le transport de solutés biologiquement réactifs (cf. Weiss and Cozzarelli, 2008, par exemple, pour un aperçu de l'état de l'art), très peu conservent un couplage avec les échelles inférieures, un pré-requis si l'on souhaite correctement paramétriser les modèles. Or, de nombreuses études (Cirpka *et al.*, 1999) soulignent l'importance d'une caractérisation fine de la dispersion dans les méthodes de bioremédiation *in situ* (le développement du biofilm étant lié à l'importance de la zone de mélange) et suggèrent que la surestimation de la biodégradation observée dans la plupart des modèles numériques est due à une mauvaise évaluation de ce coefficient. Le travail entrepris par Wood et al. (Wood and Whitaker, 1998 ; Wood *et al.*, 2002) consistant à décrire les processus de diffusion-réaction à l'échelle du biofilm à partir des données cellulaires en utilisant la méthode de prise de moyenne volumique (autrement dit de transférer les informations de l'échelle I à l'échelle II, Figure 1) représente une première étape dans cette direction.

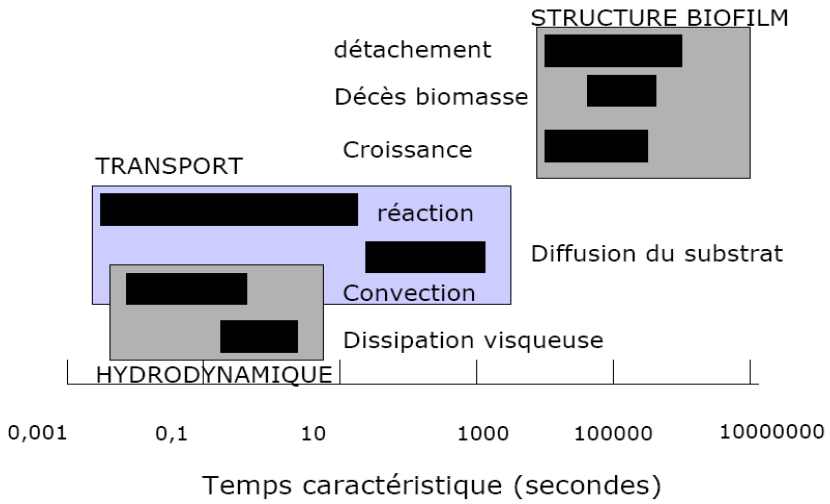


Figure 20. *Échelle de temps caractéristiques des processus hydrodynamique de transport d'espèces et de formation du biofilm*

Dans le cadre de mes activités de recherche, j'ai continué cette approche vers l'échelle du milieu poreux lui-même (échelle II vers échelle III) tout en développant en parallèle une étude expérimentale afin de valider les résultats obtenus. Les résultats de ces travaux ont été obtenus pour partie dans le cadre de la thèse de L. Orgogozo [TH1] et se poursuivent depuis fin 2008, au niveau de la partie expérimentale à travers la thèse de T. Kone [TH3]. Les avancées obtenues dans le cadre de cette thématique seront présentées par la suite selon 3 axes de recherche : modélisation macroscopique du transport de soluté en milieu poreux en présence d'une phase microbienne, caractérisation de la croissance bactérienne et étude expérimentale.

II. DÉVELOPPEMENT THÉORIQUE ET NUMÉRIQUE DES MODÈLES MACROSCOPIQUES DE TRANSPORT

En partant des équations classiques à l'échelle du pore décrivant le transport d'un soluté biodégradable dans un milieu poreux comportant une phase fluide et biofilm, un changement

d'échelle à l'aide de la méthode de prise de moyenne volumique a pu être effectué afin de dériver de manière rigoureuse des modèles macroscopiques de transport. Précisons que le biofilm est considéré ici comme une phase essentiellement immobile dans laquelle les espèces chimiques sont entraînées par diffusion (cf. Aspa *et al.*, 2011 pour la prise en compte de la convection au sein des macroporosités du biofilm). Comme illustré Figure 21, nous noterons par la suite γ la phase fluide, κ la fraction solide du milieu et ω la phase biofilm.

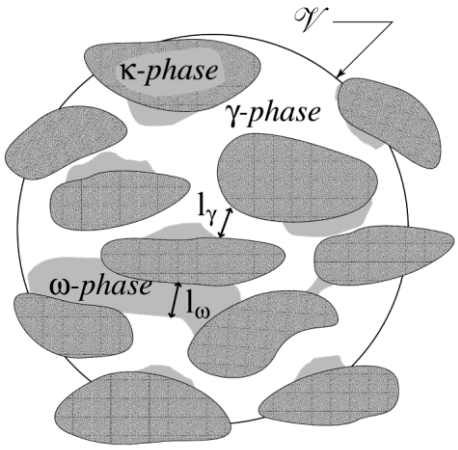


Figure 21. Volume élémentaire représentatif

Dans le cadre de cette analyse, nous nous sommes limités aux systèmes comprenant un seul substrat (à la fois source de carbone et d'énergie) noté *A* et un seul accepteur d'électron (tel que l'oxygène) noté *B*. Une cinétique de Michaelis-Menten à deux substrats a ainsi été adoptée pour décrire le métabolisme bactérien, soit :

$$R_{A\omega} = \mu_{A\omega}\rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega}+K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega}+K_{B\omega}} \tag{59}$$

où $\mu_{A\omega}$, ρ_ω , $K_{i\omega}$, $K_{i,eq}$ représentent respectivement la vitesse de réaction, la densité bactérienne ainsi que la constante de demi-saturation et le coefficient de partage à l'équilibre de l'espèce chimique *i* considérée. La non-linéarité de ce terme cinétique représente un défi supplémentaire d'un point de vue mathématique au niveau du changement d'échelle. Le développement d'un terme réactif moyenné est obtenu au prix d'hypothèse simplificatrices sur la variance du champ de concentration (les concentrations de déviation sont supposés négligeables devant les concentrations moyennes). L'impact de cette hypothèse et l'influence de la limitation des transferts de masse sur la cinétique observée de Michaelis-Menten ont été analysés dans le cas d'un milieu 2D complexe caractérisé par une réaction non linéaire à l'interface (cas d'un biofilm fin), comme illustré Figure 22 [ACL7]. On peut voir ici comment l'augmentation du terme réactif devant les termes de transport (caractérisée par la variance du champ de concentration) accroît l'erreur effectuée au niveau de la solution théorique de la vitesse effective de réaction prédite par le changement d'échelle (la solution n'est exacte que pour les cinétiques limites d'ordre 0 et d'ordre 1).

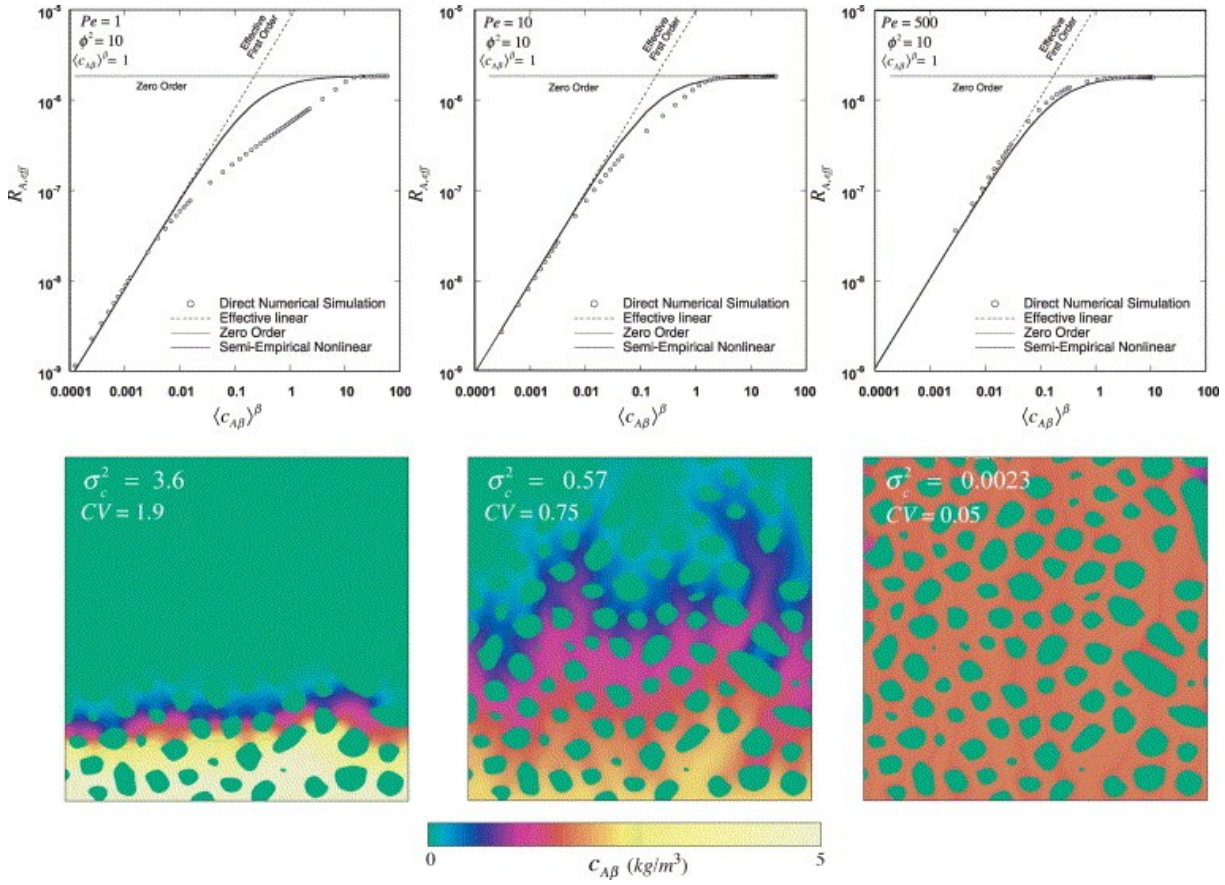


Figure 22. Influence de la variance du champ de concentration sur l'écart observé entre le terme de réaction macroscopique issu des simulations directes et prédit par la théorie.

Pour les cas où la biomasse peut être traitée comme un continuum bien défini (ceci exclut par exemple les développements sous forme de micro-colonies qui nécessitent des étapes de changement d'échelle supplémentaire), on peut identifier 3 régimes potentiellement importants. Pour chacun de ces régimes, nous avons ainsi développé différentes formulations macroscopiques régissant de manière rigoureuse le transport d'un soluté biodégradable dans un milieu poreux en présence de biofilm ; formulations qui peuvent être plus ou moins complexes selon les conditions hydrodynamiques :

i. Lorsque le temps caractéristique pour le transport dans la phase fluide est du même ordre de grandeur que le temps caractéristique de diffusion au sein du biofilm et que le temps caractéristique associé à la cinétique de réaction est grand, un modèle d'équilibre de masse local [ACL13 ; ACL17] peut être proposé (cf. la description par Valocchi, 1985 de l'hypothèse d'équilibre de masse local).

Modèle d'équilibre de masse local (modèle LEA)

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon_\gamma + K_{A,eq}^{-1}\varepsilon_\omega\right)\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma = -\nabla\cdot\left(\varepsilon_\gamma\langle \mathbf{v}_\gamma\rangle^\gamma\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) + \nabla\cdot\left(\mathbf{D}^\star_{A,\,LEA}\cdot\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) - \varepsilon_\omega\mu_{A\omega}\rho_\omega\frac{\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma}{\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma + K_{A,eq}K_{A\omega}}\frac{\langle c_{B\gamma}\rangle^\gamma}{\langle c_{B\gamma}\rangle^\gamma + K_{B,eq}K_{B\omega}}. \quad (60)$$

où $\mathbf{D}^*_{A,LEA}$ représente le tenseur de dispersion. Son formalisme est simple mais en contrepartie, il nécessite des hypothèses de validité très restrictives puisqu'il repose sur l'existence d'une condition d'équilibre entre les concentrations moyennes respectives des phases fluide et biofilm (*i.e.*, gradients faibles à l'interface fluide-biofilm) telle que $\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma} = K_{A,eq}\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega}$.

ii. Pour des conditions hors équilibre où les concentrations de chacune des phases varient de manière distincte, un modèle simplifié à une équation peut encore être dérivé mais uniquement dans certains cas limites. Ceci nécessite des hypothèses supplémentaires sur la cinétique de réaction de sorte que l'expression du flux interfacial qui apparaisse dans l'équation macroscopique de la phase γ puisse être écrite de manière découplée [ACL14 ; ACL16].

- Si la réaction de biodégradation est limitée par le transfert de masse externe, un modèle de transfert de masse limitant peut être développé. Sous cette hypothèse, en effet, la concentration de substrat à l'interface fluide/biofilm $A_{\gamma\omega}$ est pratiquement négligeable et nous avons :

$$c_{A\gamma} \quad = \quad K_{A,eq}c_{A\omega} \quad = \quad 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \tag{61}$$

La concentration de soluté est alors définie uniquement dans la phase fluide et nous obtenons finalement après changement d'échelle le modèle suivant

Modèle macroscopique à une équation de transfert de masse limitant (modèle MTLC)

$$\begin{aligned}&\frac{\partial\left(\varepsilon_\gamma\left\langle c_{A\gamma}\right\rangle^{\gamma}\right)}{\partial t}+\nabla\cdot\left(\varepsilon_\gamma\left\langle \mathbf{v}_\gamma\right\rangle^{\gamma}\left\langle c_{A\gamma}\right\rangle^{\gamma}\right)=\\&\nabla\cdot\left(\mathbf{D}^*_{A,MTLC}\cdot\nabla\left\langle c_{A\gamma}\right\rangle^{\gamma}\right)-\alpha\left\langle c_{A\gamma}\right\rangle^{\gamma}+\nabla\cdot\left(\mathbf{d}^*_\gamma\left\langle c_{A\gamma}\right\rangle^{\gamma}\right)+(\mathbf{u}^*_\gamma-\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\varepsilon_\gamma)\cdot\nabla\left\langle c_{A\gamma}\right\rangle^{\gamma}\end{aligned} \tag{62}$$

Où α représente le coefficient de transfert de masse, $\mathbf{D}^*_{A,MTLC}$ le tenseur de dispersion et $\mathbf{d}^*_\gamma$, $\mathbf{u}^*_\gamma$ des termes non-classiques de convection.

- À l'opposé, si la réaction chimique est limitée par la cinétique ce qui implique des gradients relativement faibles au sein de la phase γ (ceci correspond au cas du gradient de concentration diffus ou *shallow mass transfer gradient*, selon la terminologie de Rittmann et McCarty [43]), un modèle macroscopique de transport hors équilibre à une équation peut aussi être dérivé. Ceci revient à considérer que la déviation en concentration $\tilde{c}_{A\gamma}$ est négligeable par rapport à la concentration moyenne intrinsèque dans la phase γ, *i.e.* $\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma} \ggg \tilde{c}_{A\gamma}$ et la condition limite à l'interface $A_{\gamma\omega}$ peut alors être réécrite sous la forme

$$K_{A,eq} c_{A\omega} = c_{A\gamma} \approx \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \tag{63}$$

Ce type de modèle hors équilibre à une équation qui est couramment employé en génie des procédés (voir par exemple une introduction générale sur cette approche dans Fogler, 1999) est basé sur l'introduction d'un facteur d'efficacité pour relier le taux réel de réaction (généralement difficile à mesurer) au sein du biofilm avec la concentration macroscopique dans la phase fluide. En d'autres termes, nous cherchons à réécrire la formulation de la réaction de Monod sous la forme :

$$\varepsilon_{\omega} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^{\omega}}{\langle c_{B\omega} \rangle^{\omega} + K_{B\omega}} = \eta \varepsilon_{\omega} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma}}{\langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma} + K_{B\omega}} \tag{64}$$

où η est le facteur d'efficacité de la réaction. Ce développement mathématique est accompli par le biais de la méthode de prise de moyenne volumique et conduit finalement à l'expression suivante :

Modèle macroscopique à une équation de cinétique limitante (modèle RRLC)

$$\begin{aligned} \underbrace{\frac{\partial \left(\varepsilon_{\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \right)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot \left(\varepsilon_{\gamma} \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \right)}_{\text{Convection}} &= \underbrace{\nabla \cdot \left(\mathbf{D}^{*}_{A,RRLC} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \right)}_{\text{Dispersion}} \\ &- \underbrace{\eta \varepsilon_{\omega} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} \frac{K_{A,eq}^{-1} \left\langle c_{A\gamma} \right\rangle^{\gamma}}{K_{A,eq}^{-1} \left\langle c_{A\gamma} \right\rangle^{\gamma} + K_{A\omega}} \frac{\left\langle c_{B\gamma} \right\rangle^{\gamma}}{\left\langle c_{B\gamma} \right\rangle^{\gamma} + K_{B\omega}}}_{\text{Flux interfacial}} \end{aligned} \tag{65}$$

Dans le même ordre d'idée, on peut noter le développement d'un modèle à une équation pour les conditions de non-équilibre par Davit *et al.* (2010) – similaire dans l'esprit aux modèles asymptotiques développés par Moyne *et al.* (1999) et Quintard *et al.* (2001) pour le transport en milieu hétérogène. Il est toutefois limité comme ses prédécesseurs à des milieux semi-infinis et à un comportement asymptotique (cf. Chapitre 2).

iii. Enfin, dans le cas le plus général, un modèle à deux équations ou modèle double porosité, impliquant une équation de conservation par phase, a été proposé afin de correctement décrire le transport d'espèces au sein du système [AE1, CAI16]. L'échange de masse entre les deux régions est contrôlé par un processus diffusif et décrite par une cinétique du premier ordre. Le transport dispersif et convectif intervient ainsi dans la région la plus perméable, i.e. la phase fluide tandis que l'eau au sein du biofilm est supposé immobile et échange par diffusion. Notons que ce type de modèle, similaire dans l'esprit aux modèles « mobile-immobile » (*e.g.* Coats and Smith, 1964; Brusseau *et al.*, 1989; Ahmadi *et al.*, 1998) classiquement employés pour décrire les comportements non-fickiens en milieux hétérogènes, a rarement été appliqués à des systèmes biologiques (e.g., Baveye and Valocchi, 1989; Seifert and

Engesgaard, 2007; Chatelier, 2010) et du moins, jamais à partir d'une procédure rigoureuse de changement d'échelle. Nous obtenons au final :

Équation de transport macroscopique pour la phase biofilm (phase ω):

$$\begin{aligned}\varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega}\rangle^\omega}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c^*_{B\omega} \frac{\langle c_{A\omega}\rangle^\omega}{\langle c_{A\omega}\rangle^\omega + K_{A\omega}} &= \nabla.\left(\mathbf{D}^*_{A\omega\omega}.\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^\omega\right) - \alpha^*_A\left(\langle c_{A\omega}\rangle^\omega - \langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) \\ &+ \nabla.\left(\mathbf{D}^*_{A\omega\gamma}.\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) + \nabla.\left(\mathbf{d}^*_{A\omega}\left(\langle c_{A\omega}\rangle^\omega - \langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right)\right) \\ &+ \mathbf{u}^*_{A\omega}.\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^\omega - \left(\mathbf{u}^*_{A\gamma} + \mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\varepsilon_\gamma\right).\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\end{aligned} \tag{66}$$

Équation de transport macroscopique pour la phase fluide (phase γ):

$$\begin{aligned}\varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla.\left(\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma\rangle^\gamma \langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) &= \nabla.\left(\mathbf{D}^*_{A\gamma\gamma}.\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) + \alpha^*_A\left(\langle c_{A\omega}\rangle^\omega - \langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right) \\ &+ \nabla.\left(\mathbf{D}^*_{A\gamma\omega}.\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^\omega\right) + \nabla.\left(\mathbf{d}^*_{A\gamma}\left(\langle c_{A\omega}\rangle^\omega - \langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma\right)\right) \\ &+ \mathbf{u}^*_{A\gamma}.\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^\gamma - \left(\mathbf{u}^*_{A\omega} + \nabla\varepsilon_\omega.\mathbf{D}_{A\omega}\right).\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^\omega\end{aligned} \tag{67}$$

Afin de simplifier l'écriture du problème, la concentration en accepteur B est supposée ici en excès de sorte que la partie du terme de Monod dépendant de $c_{B\omega}$ est assimilée à une constante et notée $c^*_{B\omega}$.

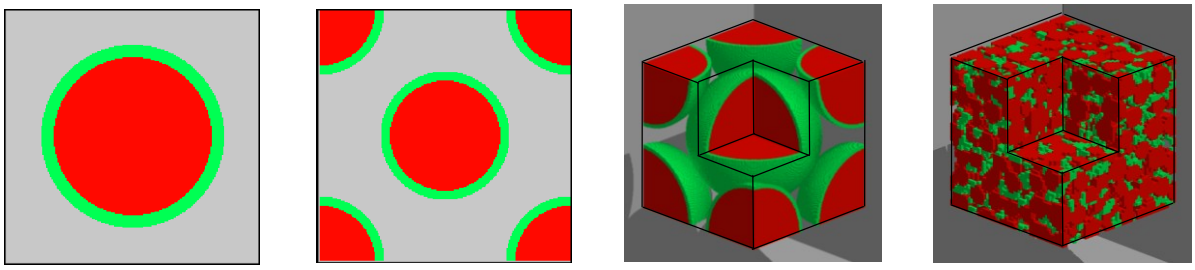


Figure 23. Exemple de cellules unitaires depuis un réseau 2D à une caractérisation 3D d'un milieu réel par micro-tomographie (le biofilm est en vert, les grains sont en rouge)

À la différence des modèles empiriques classiques, les coefficients effectifs (tenseur de dispersion, coefficient effectif de réaction, coefficient de transfert de masse) qui interviennent ici dans les différents modèles peuvent être déterminés au travers de la résolution de problèmes de fermeture uniquement à partir des informations disponibles à l'échelle du pore (longueur de corrélation, géométrie du milieu, valeurs des paramètres à petite échelle). En fonction du degré de précision requis, les calculs sont effectués sur des cellules unitaires plus ou moins complexes, représentatives de la géométrie d'un milieu poreux à l'échelle microscopique (cf. Figure 23 pour un exemple de la complexité des cellules unitaires utilisées). Ces calculs ont été validés à partir de comparaison avec des solutions analytiques dans des cas simplifiés (cf. Figure 24) et ont permis de caractériser l'influence des propriétés microscopiques du milieu sur ces propriétés macroscopiques.

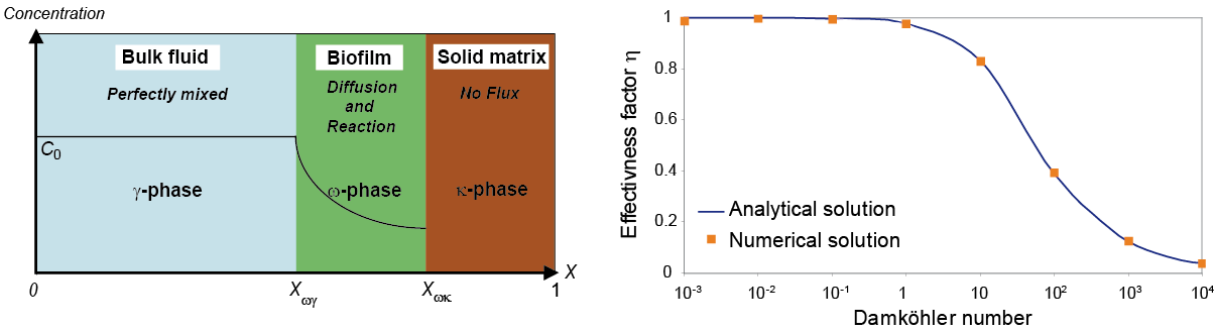


Figure 24. Comparaison de l'évolution théorique du facteur d'efficacité avec la solution analytique dans le cas d'un milieu stratifié 1D.

Les domaines de validité des modèles macroscopiques ont ensuite été établis en confrontant les courbes de percée issues de simulations numériques directes avec celles prédites par les modèles moyennés (cf. un exemple de comparaison pour une géométrie complexe dans le cas du modèle à 2 équations sur la Figure 25). Cette analyse à conduit à la construction de diagrammes de régime fonction des nombres de Péclet et Damköhler du système qui peuvent se résumer ainsi :

- Modèle LEA : $Pe \leq 1 ; Da \leq 1$
- Modèle MTLC : $Da \ggg 1 ; Pe \leq Da$
- Modèle RRLC : $Pe \ggg 1 ; Da \leq Pe$
- Le modèle double milieu enfin, qui peut être vu comme une formulation généralisée de ces précédents développements étend considérablement le domaine de validité mais au prix bien entendu d'une complexité supérieure (nombre significatif de coefficients effectifs à caler ou à déterminer, difficulté à les mesurer expérimentalement)

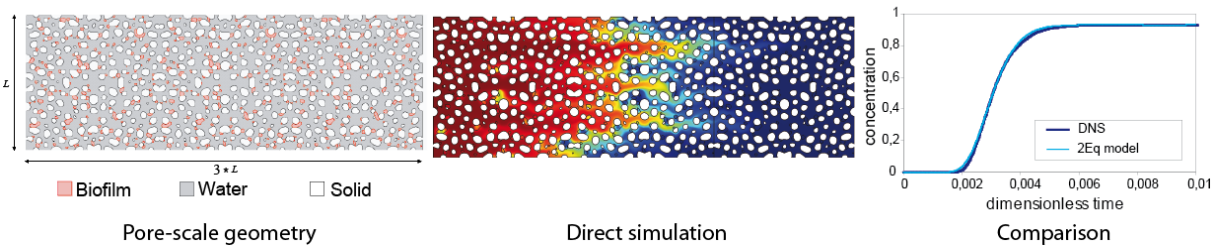


Figure 25. Comparaison entre simulations numériques directes et modèle à 2 équations pour Péclet=100 et Damköhler=10 sur un milieu poreux 2D complexe.

III. ÉTUDE NUMÉRIQUE DE LA CROISSANCE DE BIOFILM EN MILIEU POREUX À L'ÉCHELLE DU PORE

Il est important de préciser que les résultats précédents ont été obtenus pour une géométrie donnée du biofilm à l'échelle du pore. Or, nous avions précisé précédemment que la géométrie du biofilm (comme représenté par $V_\omega(t)$) pouvait évoluer dans le temps due à la croissance du biofilm ou inversement sous les effets de mort cellulaire ou d'érosion.

Cependant, compte tenu de la différence importante entre les temps caractéristiques de croissance et de transport du soluté (cf. Figure 20), il est généralement admis que le déplacement de l'interface fluide-biofilm peut être négligé par rapport au taux de transfert de masse par diffusion. On a pu ainsi à travers cette hypothèse de quasi-stationnarité découpler les processus de transport et de croissance.

Afin d'étudier néanmoins plus en détail l'impact de la croissance bactérienne sur le faciès du biofilm observé et par là même, l'impact sur les processus hydrodynamiques (« *bioplugging* », modification du tenseur de dispersion), un modèle numérique, basé sur une approche de type automate cellulaire, a été mis en place en parallèle afin de simuler ce phénomène à l'échelle du réseau poreux. Les sciences des systèmes complexes, en effet, sont parfaitement adaptées à ce type de représentation. En particulier, des modèles de type « automate cellulaire » ont déjà montré avec succès leur capacité à décrire les dynamiques de croissance bactérienne observées dans la réalité (*e.g.*, Picioreanu *et al.*, 1998, Kapellos *et al.*, 2007 ; Graf von der Schulenburg *et al.*, 2009). Les mécanismes considérés ici sont la croissance proprement dite par consommation du nutriment, l'extinction du biofilm, le détachement par érosion principalement contrôlé par les forces de cisaillement et éventuellement l'adhésion à un autre endroit des fragments de biofilm détachés. Par soucis de simplicité, on se limite à un système biologique se nourrissant d'un seul substrat dont on notera la concentration c_A de sorte que le terme de croissance soit modélisé par une cinétique non linéaire de Monod du premier ordre. En d'autres termes, on ne tient pas compte de l'accepteur d'électrons dont on suppose ainsi qu'il n'est jamais limitant dans la réaction biologique. Sous ces hypothèses (écoulement de Stokes, cinétique de Monod, un seul substrat), les équations régissant le transport d'espèces et la croissance bactérienne peuvent être écrites sous forme adimensionnelle comme suit :

$$Pe\left(\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla c_{A\gamma}\right) = \nabla^2 c_{A\gamma} \quad \text{dans la phase fluide} \tag{68}$$

$$\nabla.(D_{A\omega}\nabla c_{A\omega}) = Da \times \rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{\frac{c_{A\omega}}{K_{A\omega}}+1} \quad \text{dans la phase biofilm} \tag{69}$$

$$\frac{\partial \rho_\omega}{\partial t_{growth}} = \Gamma\, Da\, \rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{\frac{c_{A\omega}}{K_{A\omega}}+1} - k_{\text{ext},\omega}\rho_\omega \tag{70}$$

auxquelles viennent s'ajouter les conditions initiales et conditions aux limites du problème. $D_{A\omega}$ correspond au coefficient de diffusion adimensionné dans la phase biofilm, ρ_ω désigne la masse adimensionnée de cellules bactériennes par unité de volume du biofilm, $K_{A\omega}$ désigne la constante adimensionnelle de demi-saturation et $k_{\text{ext},\omega}$ est le coefficient d'extinction adimensionné du biofilm. Trois nombres adimensionnels caractérisent les processus mis en jeu : le nombre de Péclet (*Pe*) souligne l'influence relative des effets convectifs par rapport aux effets diffusifs, le nombre de Damköhler (*Da*) rend compte du rapport entre diffusion et

réaction au sein du biofilm ; enfin, le nombre adimensionnel Γ traduit le découplage du processus de croissance du biofilm par rapport à la réaction.

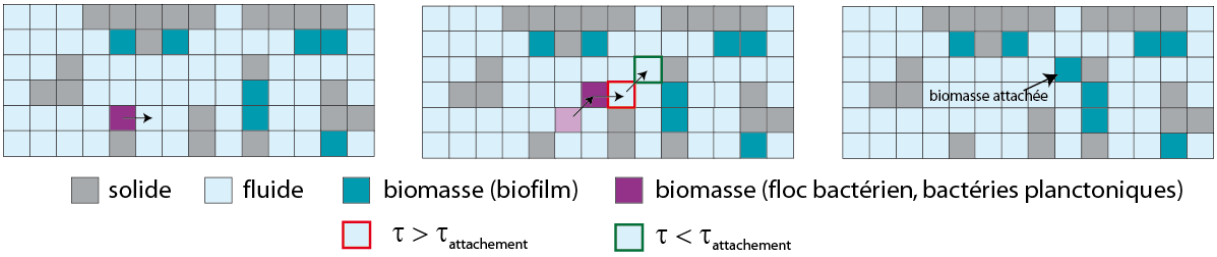


Figure 26. Illustration de la prise en compte des processus d'attachement/détachement au sein du modèle

Compte tenu de l'hypothèse de quasi-stationnarité adoptée, les équations stationnaires d'écoulement et de transport sont résolues dans un premier temps. D'un point de vue de l'hydrodynamique, une condition de non glissement est imposée à l'interface fluide-biofilm puisque celui-ci se comporte comme la phase solide (les effets convectifs ne sont pas pris en compte au sein de la phase biofilm). Le champ de vitesse, qui représente une des étapes les plus coûteuses en temps de calcul (il doit être recalculé à chaque évolution de la géométrie) est résolu soit par une méthode itérative de type Uzawa soit par méthode spectrale [MA13].

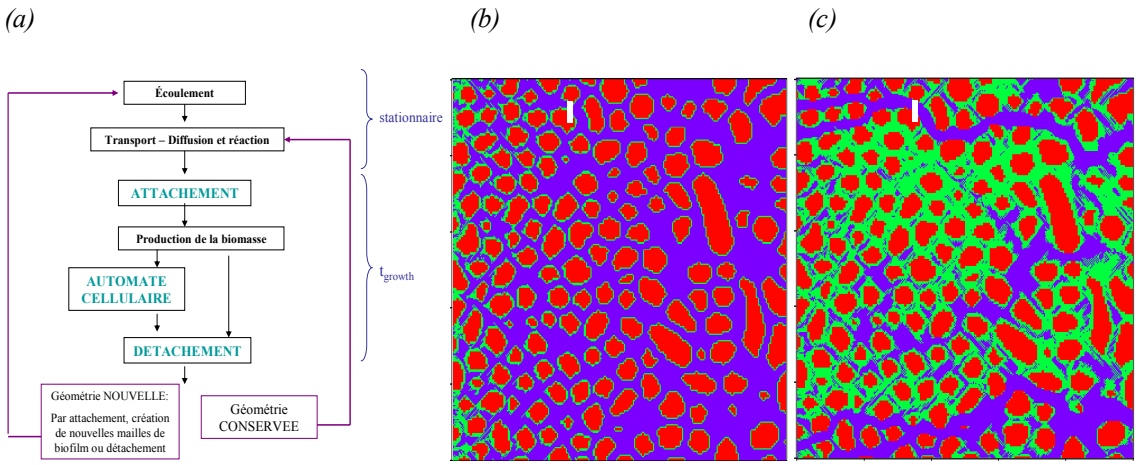


Figure 27. (a) Algorithme du modèle de croissance de biofilm - (b, c) Représentation du développement du biofilm au sein d'un même milieu poreux pour des conditions hydrodynamiques distinctes (en rouge les grains, en bleu le fluide et en vert le biofilm). (b) Pe=0.01 et Da=100 ; (c) Pe = 200 et Da=0.1. Le sens de l'écoulement est de la gauche vers la droite.

L'évolution locale de la densité bactérienne ρ_ω au cours du temps t_{growth} est ensuite calculée. Si celle-ci dépasse, au moins dans une maille, une valeur seuil de densité fixée, le biofilm s'étend spatialement et le réseau d'écoulement est modifiée (cf. algorithme du modèle, Figure 27a). La répartition de la croissance du biofilm et les processus de détachement/adhésion sont implémentés de manière discrète. Un algorithme de « poussée » est utilisé pour la partie croissance : l'excédent de biomasse produit est réparti alors vers les mailles voisines proportionnellement à la concentration en substrat présente dans chacune des mailles. Si l'une des cellules voisines dépasse alors la valeur seuil, le surplus de biomasse est repoussé vers les

mailles environnantes suivant le même algorithme. Le détachement éventuel de flocs de biomasse est ensuite vérifié : les contraintes de cisaillement sont calculées à chaque interface fluide/biofilm et si celles-ci atteignent une valeur critique fixée, la maille de biofilm adjacente est alors considérée mobile (sous forme de floc). Elle est transportée le long des lignes de courant et peut éventuellement se réattacher ultérieurement si les contraintes locales de cisaillement sont suffisamment faibles (cf. Figure 26).

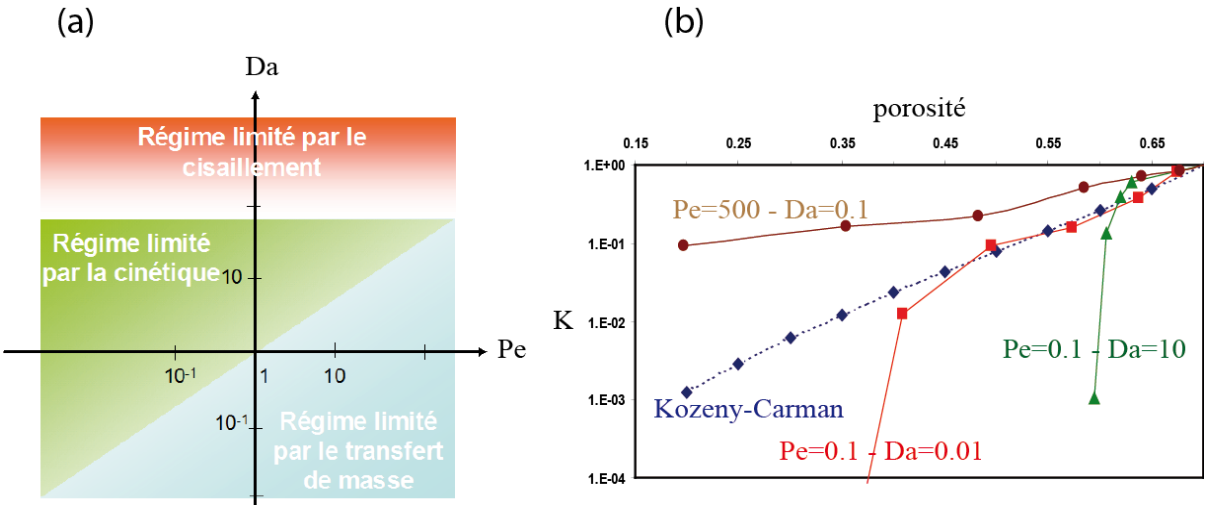


Figure 28. (a) Diagramme des régimes de croissance du biofilm en milieu poreux – (b) corrélation perméabilité-porosité obtenue pour les différents régimes.

Bien que les mécanismes hydrodynamiques et biologiques soient fortement simplifiés, l'influence des variations des conditions hydrodynamiques sur les processus de croissance et les différents régimes observés a ainsi pu être caractérisée. A titre d'exemple, la Figure 27b et la Figure 27c présentent le développement de biofilm obtenu pour un milieu poreux 2D dans deux configurations hydrodynamiques distinctes. La porosité initiale du milieu (sans biofilm) est de 0.65. Un biofilm d'une maille d'épaisseur est initialement attachée à toutes les mailles solides présentes.

On observe des faciès d'évolution de la biomasse notablement différents dans ces deux situations. Pour la première configuration, le transport est considéré essentiellement diffusif dans les deux phases (Pe = 0.01). Le nombre de Damköhler élevé (Da = 100) traduit une consommation de substrat importante par rapport au phénomène de diffusion (fort gradient de concentration dans le domaine). Ainsi, la production de biomasse est relativement forte à l'entrée du domaine où arrive le substrat et très faible vers la sortie où la quantité de substrat disponible est insuffisante. L'extinction commence d'ailleurs à se faire ressentir vers la sortie où la densité microbienne ρ_ω a diminuée. C'est pour un tel système que l'obstruction du milieu peut être la plus rapide. Pour la seconde configuration (Pe=200 et Da=0.1), le transport de nutriment est globalement uniforme mais les fortes vitesses d'écoulement impliquent des contraintes de cisaillement suffisamment importantes localement pour conduire au détachement d'une partie du biofilm. L'obstruction concerne alors les pores les plus fins. Dans les zones de très faible écoulement, l'obstruction est ainsi quasi-totale. Après croissance du biofilm, le milieu poreux acquiert ainsi des propriétés hydrodynamiques sensiblement

distinctes. Ces résultats ont permis d'établir un diagramme des différents régimes de croissance observés au sein du milieu en fonction des nombres adimensionnels caractéristiques des processus mis en jeu (Figure 28a) : croissance limitée par la cinétique de réaction, par le transfert de masse ou le cisaillement.

À terme, l'un des objectifs de ce travail est de réussir à coupler ces calculs avec la résolution des problèmes de fermeture obtenus dans la section précédente de manière à caractériser les éventuelles lois d'état qui contrôlent les couplages. En effet, le développement de modèles macroscopiques couplant croissance et transport de soluté (cf. résultats pour la partie transport ou la discussion dans le Chapitre 3 sur les aspects liés à la dissolution) nécessite des lois d'état pour clore le système. En d'autres termes, il s'agit de remplacer la dépendance historique des coefficients effectifs (*e.g.*, K(t), **D**(t), ε(t)) par une relation empirique reliant les paramètres macroscopiques entre eux tels que K(ε) ou **D**(ε, Pe). Nous avons ainsi analysé le comportement d'un biofiltre et son colmatage progressif [ACL15] mais dans le cas simple d'une croissance uniforme de la biomasse (la géométrie du biofilm est ainsi implicitement présupposée et ne nécessite pas de calcul). Dans le cas général, une première tentative en ce sens a été effectuée pour le cas d'un milieu nodulaire simplifié (Figure 29). Nous avons déterminé les propriétés macroscopiques du milieu poreux à différents stades de croissance du biofilm et pour des conditions hydrodynamiques imposées en utilisant une cellule unitaire dont la biomasse croît au cours du temps. Nous avons ainsi formalisé des lois d'état en fonction des régimes de croissance (cf. Figure 28b pour la corrélation perméabilité-porosité). Ces résultats nécessitent toutefois d'être généralisés à des configurations plus complexes.

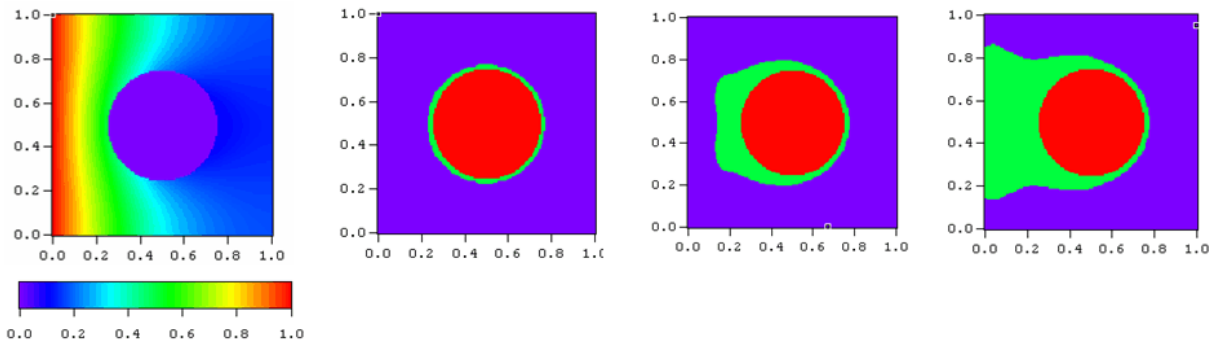


Figure 29. Exemple de champ de concentration initial et d'évolution de la biomasse autour d'un support cylindrique.

IV. ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DU TRANSPORT DE NUTRIMENT EN MILIEU POREUX AVEC BIOFILM

Afin de valider les résultats prédits par ces développements théoriques, nous avons décidé de confronter ces modèles aux expériences réalisées en laboratoire.

L'observation expérimentale du développement de la biomasse a été réalisée dans une cellule d'écoulement transparente de 10×10×0.5 cm^3, remplie de grains transparents d'Accusand. Après tassement, la cellule d'écoulement a été saturée et une culture de *Shewanella oneidensis MR-1* a été inoculée dans le milieu. Une solution nutritive (LML) avec du fumarate comme accepteur d'électron a été injectée de manière continue afin de favoriser la croissance

et le développement du biofilm au sein de la cellule. Comme le phénomène de bio-obstruction est attendu à être beaucoup plus important à proximité de la source d'injection, la vitesse d'écoulement a été optimisée de manière à favoriser une distribution spatiale du biofilm la plus uniforme possible tout en réduisant les effets d'arrachement au minimum. Le suivi du transport d'un soluté organique (biodégradable ou non) en présence de biofilm sous différentes conditions hydrodynamiques et les courbes de percée résultantes ont été analysées. L'évolution spatio-temporelle du champ de concentration dans la cellule a été obtenue par mesure optique de l'absorption lumineuse du colorant (erioglaucine pour le cas non réactif). Une camera CCD intensifiée PIMAX3 (Princeton Instruments) a été utilisée dans ce but tandis que la géométrie locale du biofilm autour des grains a été estimée à partir d'une observation au microscope AZ-100 (cf. Figure 30 pour le schéma de dispositif de montage).

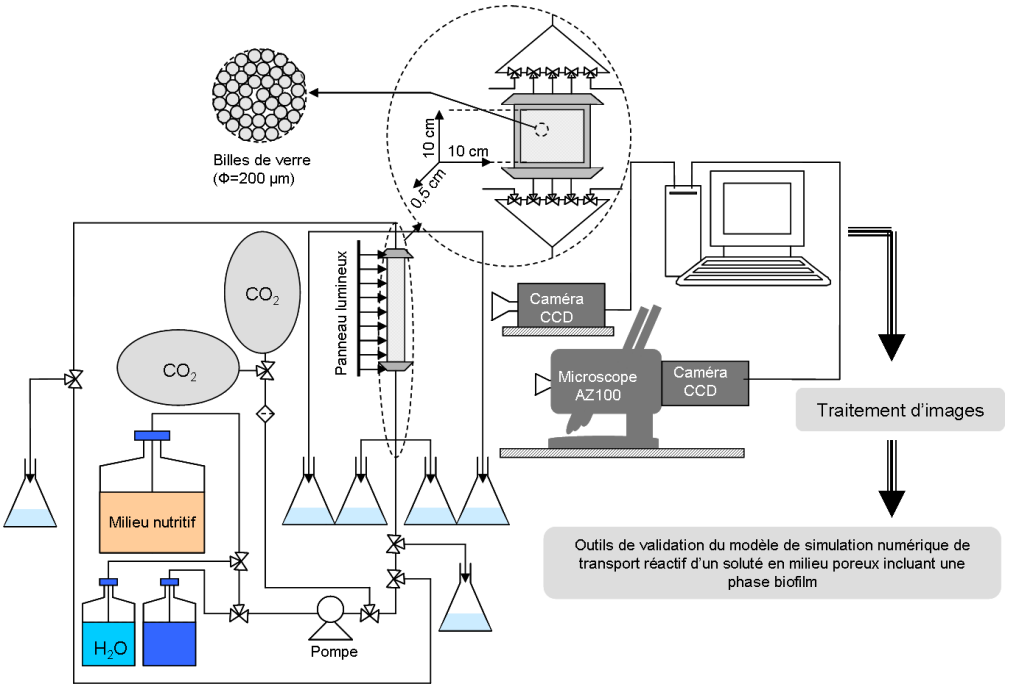


Figure 30. Schéma du dispositif expérimental

Une des principales difficultés a porté sur le développement d'un biofilm homogène (en terme de répartition spatiale) dans la cellule d'écoulement et a nécessité d'optimiser au maximum la conception de la cellule et l'apport de nutriment (utilisation de multi-injecteur, réglage de la vitesse d'injection). Un second obstacle expérimental a concerné la mise en place de mesures non intrusives pour le suivi spatio-temporelle du transport et de la dégradation dans le cas d'un soluté bio-réactif. De telles mesures n'avaient jamais été mises en place pour un problème de ce type à notre connaissance, du moins pour de telles fractions volumiques de biofilm. Ce problème a été résolu en utilisant un colorant (biodégradable ou non) et des mesures optiques par absorption lumineuse. Le suivi de croissance de la biomasse a été caractérisée de deux manières différentes : (i) par des mesures de perméabilité et (ii) par mesure optique. En effet, la réduction de porosité a pu être mesurée en utilisant une solution de Dextran Blue qui a la propriété de diffuser beaucoup plus lentement à l'intérieur de la matrice EPS que le traceur de référence. À différents stades de croissance du biofilm, des mesures de suivi par absorption lumineuse du transport de Dextran Blue ont été effectuées

après calibration. La fraction de bio-volume par section a ainsi pu être estimée à partir de la différence des vitesses de propagation des courbes de percée respectivement pour l'Erioglaucine et le Dextran Blue (cf. Figure 31c). À l'exception de la zone d'entrée (sur les deux premiers centimètres) où l'influence des conditions d'entrée perturbe l'interprétation, les valeurs mesurées expérimentalement sont cohérentes avec les observations qualitatives de la la cellule représentées Figure 31a et Figure 31b (la diminution de niveau de gris traduit le développement de biomasse). Ces mesures sont aussi en accord avec les résultats des simulations numériques. Elles ont révélé la très bonne uniformité du développement du biofilm selon l'axe d'injection et confirmé la forte augmentation de biomasse observée au cours de l'expérience (la plupart des études expérimentales de la littérature se limitent à une faible variation du volume poral et cette réduction n'est estimée que de manière *post-mortem*).

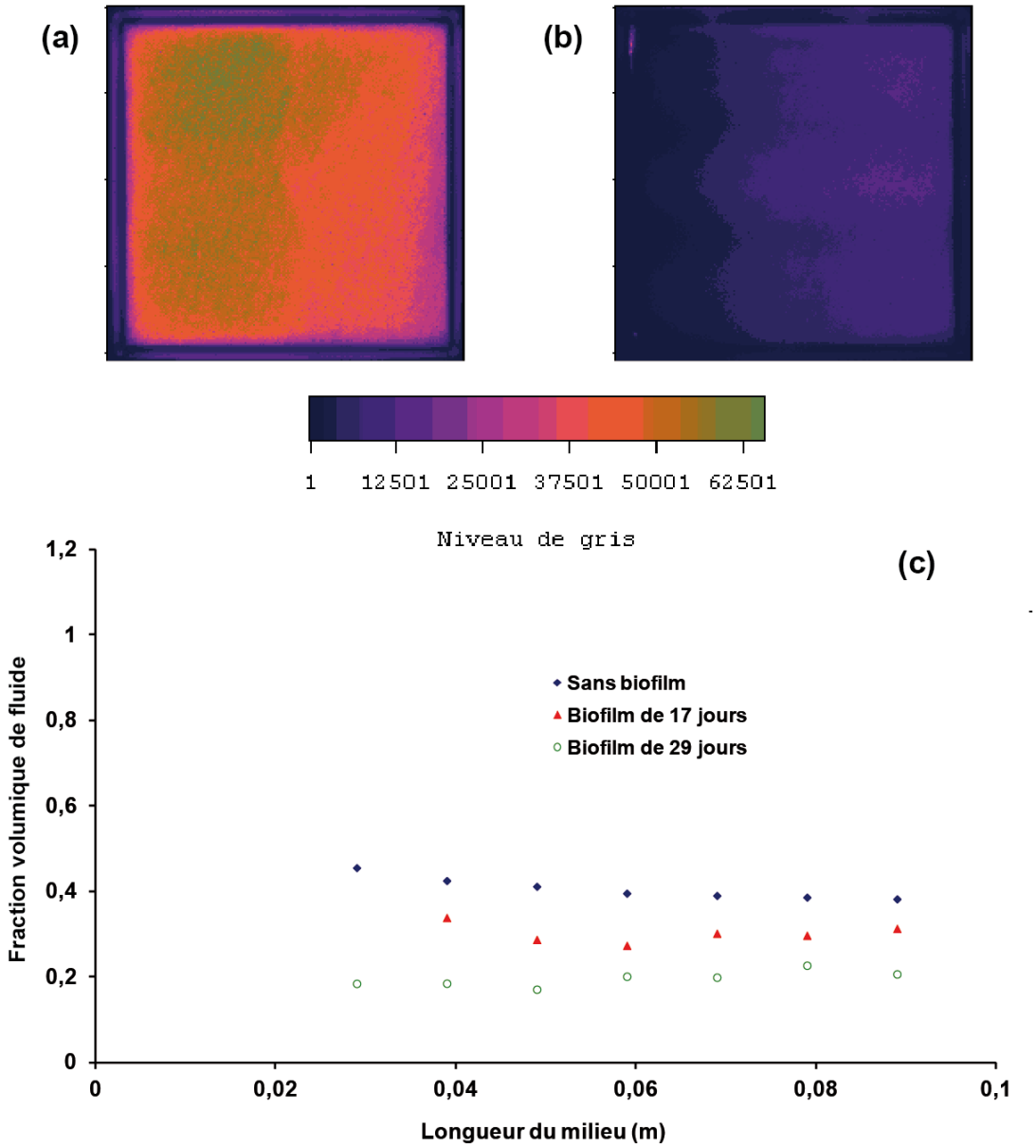


Figure 31. Image de la cellule pour: (a) t=0 jours (inoculation) et t=29 jours et (c) évolution de la fraction volumique de fluide sur le domaine à t=17 jours et t=29 jours.

À titre d'exemple, la Figure 32 présente la distribution de la concentration à différents stades d'évolution du biofilm et les courbes de percée associées. On distingue clairement l'apparition de chemins d'écoulement préférentiel et l'augmentation de la macro-dispersion.

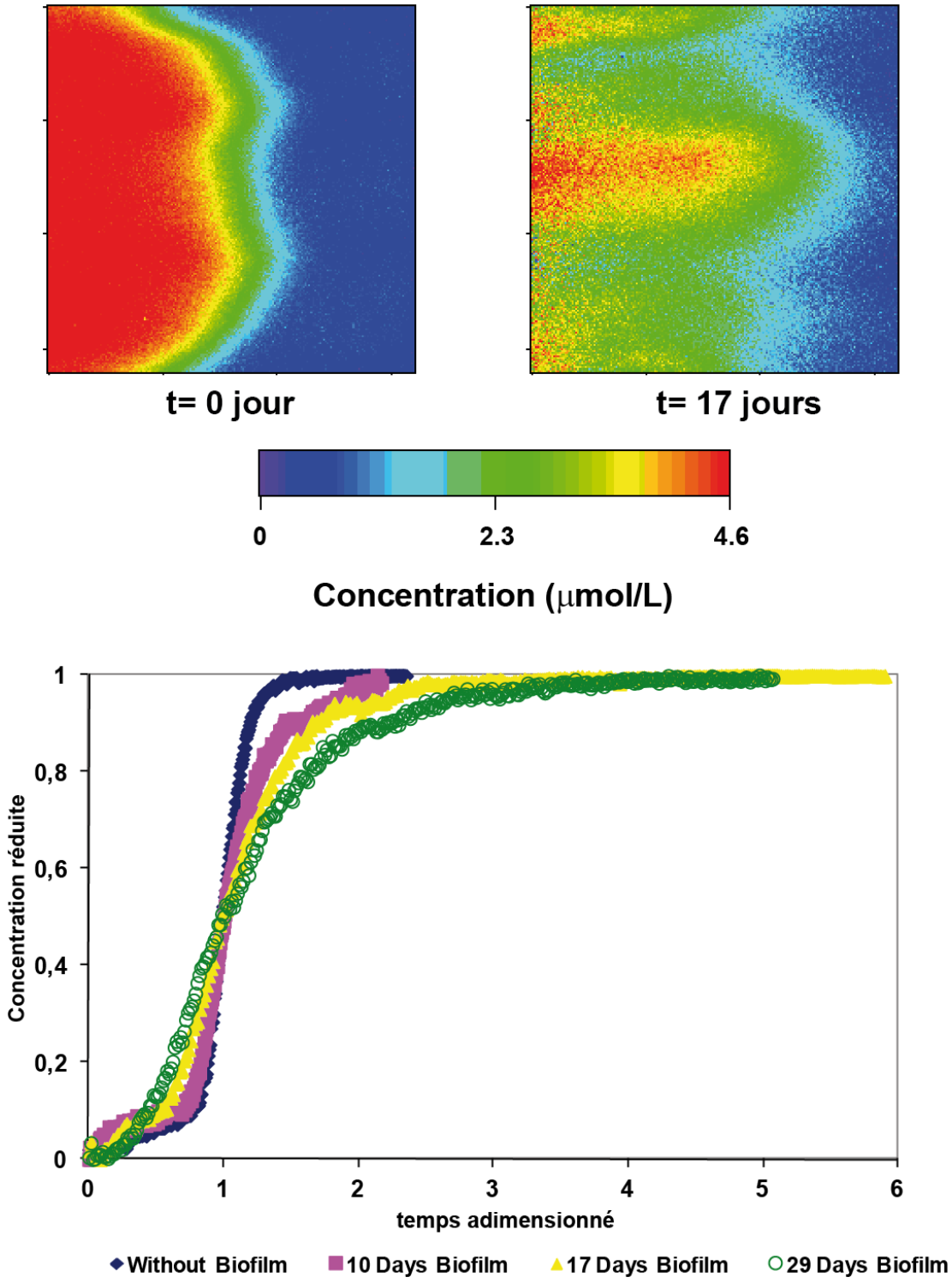


Figure 32. Évolution du panache d'un soluté non réactif au sein d'un milieu poreux sans biofilm et après colonisation de 17 respectivement. Les courbes de percée associées sont représentées et illustrent l'impact du développement de la biomasse sur la dispersivité du milieu.

En fait, ce développement bactérien induit des hétérogénéités à différentes échelles :

i. D'une part, à l'échelle du pore, la présence de biofilm où le transport se fait uniquement par diffusion conduit, pour de fortes valeurs de Péclets, à des concentrations qui évoluent de manière distincte dans les deux phases (cf. l'analyse associée au développement du modèle à deux équations dans la section II de ce Chapitre).

ii. D'autre part, à l'échelle de la cellule expérimentale, le biofilm se répartit de manière non uniforme, particulièrement selon la section transversale compte tenu des conditions d'injection. Ce processus conduit à l'apparition de zones moins perméables et favorisent l'apparition de digitations (le comportement observé est similaire à celui étudié dans le Chapitre 2).

En pratique, l'impact de ces hétérogénéités est indissociable au travers de l'interprétation des courbes de percée. Ces observations, qui confortent les résultats issus du modèle de croissance, révèlent que l'impact du biofilm sur les processus de transport est plus important que celui-ci pouvait le laisser supposer, de part ses hétérogénéités spatiales qui interviennent même pour des échantillons centimétriques.

La comparaison avec un modèle à une équation s'est révélée impossible aux fortes vitesses d'injection soulignant le comportement de non-équilibre local du système. Sur la base des développements théoriques effectués dans le cadre de l'étude des biofilms et du transport en milieux hétérogènes, nous avons alors tenté d'interpréter le transport de notre traceur à l'aide d'un modèle mobile-immobile (ou modèle à 2 équations). En l'absence de données précises sur la morphologie du biofilm à l'échelle du pore (l'observation au microscope reste essentiellement qualitative), les coefficients effectifs intervenant dans le modèle ont été calés par rapport à la courbe de percée. Seule la vitesse d'injection et les fractions volumiques ont été fixées par rapport aux données expérimentales. On peut constater sur la Figure 33 le très bon accord entre simulation et données expérimentales.

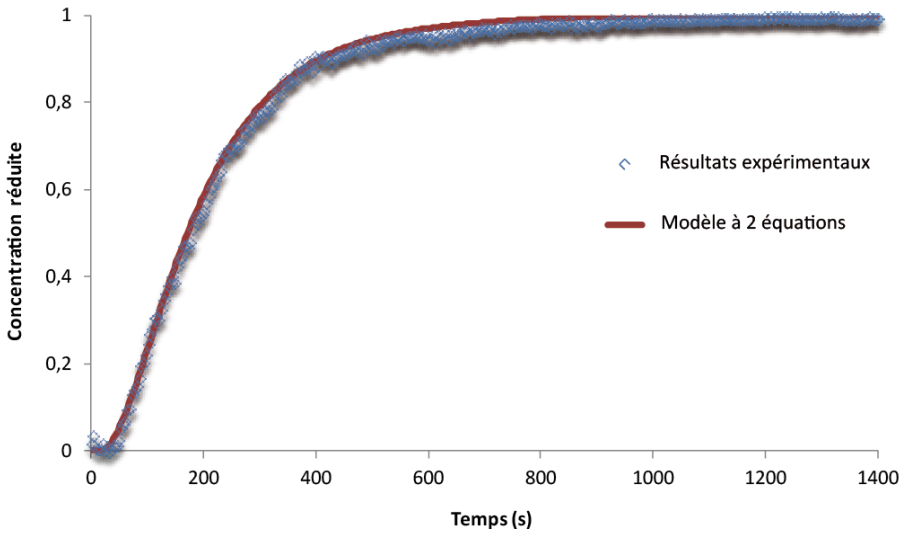


Figure 33. Comparaison des courbes de percée expérimentales et numériques pour un biofilm de 29 jours et une vitesse de 1.3×10^{-4} m/s

La comparaison avec les prédictions numériques et l'étude expérimentale pour un soluté biodégradable est actuellement encore en cours d'exploitation. Mais cette étude devrait fournir à terme un outil de comparaison performant pour les prédictions issues des modèles macroscopiques.

CONCLUSION

Comme le montre cet exposé détaillé de mes activités de recherches, le couplage des processus bio-physico-chimiques avec l'écoulement et le transport de soluté soulève encore de nombreux défis à relever du point de vue du changement d'échelle. Certains aspects de ces couplages ont été présentés au travers de ce manuscrit et les différentes approches permettant de les modéliser ont été discutées.

Dans le futur, je continuerai mes efforts pour intégrer ces mécanismes réactifs dans la description macroscopique des processus d'écoulement et de transport. En particulier, la problématique biofilm devrait prendre de l'essor dans les années à venir avec le démarrage du projet ANR MOBIOPOR. Le développement d'une équation macroscopique pour la croissance microbienne pose ainsi un réel problème compte tenu de l'absence d'équation aux dérivées partielles à l'échelle du pore permettant de décrire précisément l'étalement de la biomasse dans le domaine ; nous envisageons d'utiliser une équation pseudo-diffusive calée sur le modèle d'automate cellulaire afin de reproduire ce comportement. De même, la prise en compte de l'impact microbien en conditions multiphasiques reste encore à étudier: que ce soit dans la zone saturée (système gaz/eau/biofilm) ou à proximité de blobs de NAPL non dissous (système huile/eau/biofilm). La description des échanges d'espèces chimiques aux interfaces de ces systèmes multiphasiques ou encore la répartition non uniforme de la biomasse aux niveaux de ces interfaces (description d'une surface effective, effet d'historicité) sont quelques uns des problèmes à surmonter. L'objectif à moyen-long terme est de dépasser l'échelle de l'étude de laboratoire et de confronter nos prédictions numériques aux résultats expérimentaux fournis par les colonnes lysimétriques mises en place sur le site pilote du GISFI (Groupement d'Intérêt Scientifique sur les Friches Industrielles, CPER "Après-Mines" région Lorraine) : l'ancienne cokerie d'Haumécourt, démantelée dans les années 80 et fortement contaminée encore en hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).

La prise en compte des mécanismes de dissolution/précipitation devrait aussi se poursuivre. Je compte essayer de mieux caractériser l'influence des variations de masse volumique du fluide sur ces processus en collaboration avec Constantin Oltéan. D'un point de vue expérimental, nous chercherons à suivre les variations de concentration au sein de la fracture. Les expériences seront menées dans une cellule d'écoulement transparente bidimensionnelle permettant de déterminer d'une manière quantitative, à l'aide des méthodes optiques non-intrusives (*e.g.*: *Background Oriented Schlieren Method*), le champ de concentration. La matrice solide sera réalisée à partir de blocs de sel compactés (micro-modèle). La partie numérique portera sur le développement, à l'échelle de Darcy, d'un modèle bidimensionnel en prenant en compte aussi bien le couplage entre les équations décrivant l'écoulement et le transport réactif que le processus historique. Ces travaux devraient apporter un éclairage

intéressant sur une meilleure compréhension de certains processus géologiques dont la formation des systèmes karstiques. Un projet en collaboration avec le GET (UMR 5563) et l'IMFT (UMR 5502) vient d'être soumis sur ces aspects dans le cadre de l'appel d'offre EC2CO 2011. L'objectif portera sur la mise en place d'un modèle numérique de karstogénèse.

Le contexte futur de l'équipe 'Transfert en Milieu Poreux et du LAEGO (appartenance à la nouvelle UMR « Géoressources », démarrage du LABEX Ressources21, fusion des équipes Transferts en Milieu Poreux et Mécanique des Roches) devrait conduire aussi à un recentrage d'une partie de mes activités sur des applications plus orientées ressources (stockage, fluides minéralisateurs). Ainsi dans le cadre du projet HYDROGEN soutenu par L'ICEEL (Institut Carnot), je vais prochainement me focaliser sur l'impact des activités bactériennes sur le stockage de gaz (un projet ANR autour de cette problématique du stockage souterrain d'hydrogène n'a pas été retenu cette année mais devrait être prochainement reproposé). À l'heure actuelle, l'hydrogène est considéré comme une source d'énergie renouvelable offrant des perspectives prometteuses, qui devrait être capable de compléter les énergies fossiles dans un futur proche. Compte tenu des volumes de gaz nécessaire à produire, le stockage géologique de l'hydrogène dans les aquifères ou les cavités salines est considéré aujourd'hui comme l'option la plus rentable. Toutefois, la problématique de stockage géologique du H_2 reste encore très peu étudiée. En particulier, certaines observations récentes ont souligné que la physique des processus observés *in situ* semble fortement liée à la capacité de certaines populations bactériennes à dégrader le CO_2 présent en méthane tout en consommant une partie du H_2 comme source d'énergie. Or, si la cinétique de croissance de bactéries sous forme planctonique (bactéries se déplaçant librement au sein du fluide de manière isolée) est bien connue et décrite de manière classique par la formulation de Monod, la cinétique *apparente* de croissance d'un ensemble de populations bactériennes à l'échelle macroscopique (paramètre nécessaire dans le cadre d'une modélisation à grande échelle) est beaucoup plus complexe à formaliser. L'objectif consistera à (i) modéliser la croissance bactérienne à l'échelle du réseau de pores (un modèle mixte est envisagé, couplant modèle 1D de croissance microbienne au niveau d'un grain et écoulement et transport des espèces chimiques dans la phase gazeuse environnante) et (ii) d'étudier l'évolution sous l'effet des réactions des espèces chimiques gazeuses (H_2, CH_4, CO_2 …) présentes dans le milieu. Les résultats obtenus auront pour but de déterminer l'expression des cinétiques de réaction macroscopiques et la formulation d'une loi empirique de croissance bactérienne.

D'un point de vue plus fondamental, parmi les pistes scientifiques à explorer pour le futur on peut citer en particulier :

- **Résolution de problèmes de fermeture 3D complexes** les méthodes d'imagerie 3D non-intrusive (micro-tomographie, synchrotron, LIF 3D pour des milieux poreux transparent avec indice optique ajusté, ...) permettent d'acquérir une caractérisation spatiale de milieux poreux complexes à une très haute résolution. Ces informations sont extrêmement précieuses pour déterminer avec précision les propriétés effectives du milieu. D'un point de vue du changement d'échelle, en effet, ces grandeurs macroscopiques peuvent être calculées explicitement par la résolution des problèmes de fermeture sur une cellule unitaire représentative du milieu poreux. En dépit des

rapides évolutions matérielles (cadences processeurs, multi-cœurs, ...), ces calculs restent extrêmement couteux et ceci nécessite toutefois le développement de nouveaux modèles mathématiques performants : méthodes numériques de pointe, parallélisation des codes (collaboration en cours avec le GET).

- **Reconstruction des informations à petite échelle :** les processus de transport avec évolution d'interface (variation spatio-temporelle de la géométrie du milieu géologique à petite échelle) tels que les problèmes de dissolution/précipitation, croissance de biofilm en milieu poreux sont fortement marqués par l'influence de l'historique et le couplage de l'évolution temporelle de la microstructure avec le modèle macroscopique qui sont difficiles à modéliser. Comme nous l'avons souligné dans le corps de ce manuscrit, il est généralement indispensable d'introduire certaines hypothèses simplificatrices (dissolution homogène de l'interface par exemple) afin de s'affranchir de ces phénomènes. Différentes approches permettant d'améliorer cette prise en compte nécessitent d'être explorées dans ce sens : modèle micro/macro hybride (résolution à l'échelle microscopique au niveau du front de réaction), *downscaling* (reconstruction du champ de variables microscopiques à partir de la solution à l'échelle supérieure)…
- **Transferts interfaciaux**: La modélisation des échanges de masse interfaciaux dans les milieux fortement hétérogènes constitue depuis longtemps un important sujet d'étude dans la communauté des milieux poreux. Des efforts importants ont été accomplis ces dernières années sur la compréhension et la caractérisation des domaines de validité associés aux différentes formulations macroscopiques (*e.g.*, modèle double milieu, modèle asymptotique, modèle mixte…). De manière générale, le modèle à deux équations ou double milieu avec un coefficient d'échange constant est généralement l'approche privilégiée en présence de fortes hétérogénéités en dépit des simplifications introduites par un modèle de transfert de masse du 1er ordre. D'autres pistes sont à explorer afin de décrire plus finement l'évolution transitoire du terme d'échange modèle multi-rate, modèle de fermeture transitoire. Des collaborations sont en cours avec l'IMFT et l'Oregon State University (OSU) sur ces aspects.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

(hors publications personnelles listés page 12)

Ahmadi A, Quintard M, Whitaker S. Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media V: Two-equation model for solute transport with adsorption. Adv Water Resour 1998;22:59–86.

Anderson RY, Kirkland DW. Dissolution of salt deposits by brine density. Geology 1980;8:66–9.

Arbogast T., Lehr H.L. Homogenization of a Darcy-Stokes system modeling vuggy pous media, Comput. Geosci. 2006; 10(3): 291-302.

Aris R. On the dispersion of a solute in a fluid moving through a tube. Proc. R. Soc. Lond. A. 1956; 235 (1200): 67-77.

Aspa Y., Debenest G., Quintard M. Effective dispersion in channeled biofilms. Int J Environ Waste Management. 2011; 7(1-2): 112-131.

Audusse E., Bristeau M.-O., Perthame B. Kinetic Schemes for Saint-Venant Equations with Source Terms on Unstructured Grids. rapport de recherche INRIA [RR-3989], 2000.

Audusse E., Bristeau M-O., Pelanti M., Sainte-Marie J. Approximation of the hydrostatics Navier-Stokes system for density stratified flows by a multilayer model. Kinetic interpretation and numerical validation. J. Comput. Physics 2011; 230(9):3453-3478.

Baveye P., Valocchi A.J. An evaluation of mathematical models of the transport of biologically reacting solutes in saturated soils and aquifers. Water Resources Research. 1989; 25(6): 1413-1421.

Bear J. Dynamics of Fluids in Porous Media. 1972; Elsevier, New York

Beavers G.D., Joseph D.D. Boundary conditions at a naturally permeable wall, J. Fluid Mech.1967; 30(1): 197-207.

Bekri S., Thovert J.F., Adler P.M. Dissolution of porous media. Chem. Engng Sci. 1995; 50(17): 2765-2791.

Bekri S., Thovert J.F., Adler P.M. Dissolution and deposition in fractures', Engng. Geo. 1997; 48: 283-308.

Berkowitz B. Characterizing flow and transport in fractured geological media: a review. Adv. Water Resour. 2002; 25:861-884.

Berkowitz B., Zhou J. Reactive solute transport in a single fracture. Water Resour. Res. 1996; 32 (4): 901-913.

Bodin J., Delay F., de Marsily G. Solute transport in fissured aquifers: 1.Fundamental mechanisms. Hydrogeol. J. 2003; 11: 418-433.

Bouquain J., Méheust Y., Davy P. Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts, J. Contam. Hydrol. 2011; 120-121: 184-197.

Bibby R. Mass transport of solutes in dual-porosity media. Water Resour Res 1981;17:1075–81.

Block J.C. Biofilms in drinking water distribution system. In Biofilms—Science and technology. 1992; Kluwer Academic, Dordrecht: 469-485.

Brinkman H.C. A calculation of the viscous force exerted by a flowing fluid on a dense swarm of particles, Appl. Sci. Res. 1947; 1: 27-34.

Brusseau M.L., Jessup R.E., Rao P.S.C. Modeling the transport of solutes influenced by multiprocess non-equilibrium. Water Resour. Res. 1989; 25: 1971– 1988.

Chastanet J, Wood BD. The mass transfer process in a two-region medium. Water Resour Res. 2008; 44, W05413.

Chatelier M. Faisabilité d'un pilote de dénitrification in situ dans un aquifère karstifié. Thèse de doctorat. 2010. Université de Poitiers.

Chen Z-X. Transient flow of slightly compressible fluids through double-porosity, double-permeability systems – a state-of-the-art review. Transport Porous Med 1989;4:147–84.

Cirpka O.A., Frind E.O., Helmig R. Numerical simulation of biodegradation controlled by transverse mixing. J Contam Hydrol 1999;40:159–82.

Civan F. Scale Effect on Porosity and Permeability: Kinetics, Model, and Correlation. AIChE J. 2001; 47(2): 271-287.

Coats KH, Smith BD. Dead-end pore volume and dispersion in porous media. Society of Petroleum Engineers Journal 1964;73–84.

Cushman H.J., Moroni M. Statistical mechanics with three-dimensional particle tracking velocimetry experiments in the study of anomalous dispersion. I. theory. Phys. Fluids. 2001a; 13(1): 75-80.

Cushman H.J., Moroni M. Statistical mechanics with three-dimensional particle tracking velocimetry experiments in the study of anomalous dispersion. II. Experiments. Phys. Fluids. 2001b; 13(1): 81-91.

Dagan G, Fiori A. Time-dependent transport in heterogeneous formations of bimodal structures: 1. The model. Water Resour Res 2003;39(5):1112.

Dagan G, Lessoff SC. Solute transport in heterogeneous formations of bimodal conductivity distribution: 1. Theory. Water Resour Res 2001;37 (3):465-72.

Davies D.G., Parsek M.R., Pearson J.P., Iglewski B.H., Costerton J.W., Greenberg E.P. The involvement of cell-to-cell signals in the development of a bacterial biofilm. Science. 1998; 280: 295-298.

Davit Y., Debenest G., Wood B.D., Quintard M. Modeling non-equilibrium mass transport in biologically reactive porous media. Advances in Water Resources. 2010; 33: 1075–1093.

de Dreuzy J.-R., Davy P., Bour O. Hydraulic properties of two-dimensional random fracture networks following power law distributions of length and aperture. Water Resour. Res. 2002; 38(12): 1276.

de Dreuzy J.-R., Beaudoin A., Erhel J. Transport in 2D highly heterogeneous porous media : preasymptotic and asymptotic behaviours determined by large-scale numerical simulations. Water Resources Research. 2007; (43), W10439.

Delay F., Bodin J. Time domain random walk method to simulate transport by advection-dispersion and matrix diffusion in fracture networks. Geophys. Res. Lett. 20001; 28(21): 4051-4054.

Dijk PE, Berkowitz B. Buoyancy-driven dissolution enhancement in rock fractures. Geology 2000; 28(11): 1051–1054.

Dijk PE, Berkowitz B, Yechieli Y. Measurement and analysis of dissolution patterns in rock fractures. Water Resour Res 2002; 38(2), 10.1029/200IWR000246.

Dybas M.J., Barcelona M., Bezborodnikov S., Davies S., Forney L., Heuer H., Kawka O., Mayotte T., Sepulveda-Torres L., Smalla K., Sneathen M., Tiedje J., Voice T., Wiggert D.C., Witt M.E., Criddle C.S. Pilot-Scale Evaluation of Bioaugmentation for In-Situ Remediation of a Carbon Tetrachloride-Contaminated Aquifer. Environ. Sci. Technol. 1998 ; 32 : 3598-3611.

Eidsath A., Carbonell R. G., Whitaker S., Hermann L. R.. Dispersion in pulsed systems-III : Comparison between theory and experiment for packed beds. Chemical Engineering Science. 1983; 38:1803-1816.

Felder C., Oltéan C., Panfilov M., Buès MA. Dispersion de Taylor généralisée à un fluide à propriétés physiques variables. C R Mecanique. 2004; 332: 223-229.

Fogler HS. Elements of Chemical Reaction Engineering. 3rd edition. Prentice Hall; 1999.

Gouze P., Luquot L. X-ray microtomography characterization of porosity, permeability and reactive surface changes during dissolution. Journal of Contaminant Hydrology. 2011; 120-121: 45-55.

Goyeau B., Benihaddadene T., Gobin D., Quintard M. Numerical calculation of the permeability in a dendritic mushy zone, Metall. and Mater. Trans. B 1999; 30B: 613-622.

Goyeau B., Lhuillier D., Gobin D., Velarde M.G. Momentum transport at a fluid-porous interface, Int. J. Heat Mass Transfer 2003; 46: 4071-4081.

Graf von der Schulenburg DA, Pintelon TR, Picioreanu C, Van Loosdrecht MCM, Johns ML. Three-dimensional simulations of biofilm growth in porous media. AIChE Journal. 2009; 55(2): 494-504.

Griffioen J. Suitability of the first-order mass transfer concept for describing cyclic diffusive mass transfer in stagnant zones. J Contam Hydrol 1998;34:155–65.

Haggerty R, Gorelick SM. Multiple-rate mass transfer for modeling diffusion and surface reactions in media with pore-scale heterogeneity. Water Resour Res 1995;31:2383–400.

Haggerty R, McKenna SA, Meigs LC. On the late-time behavior of tracer breakthrough curves. Water Resour Res 2000;36:3467–79.

Harvey CF, Gorelick SM. Temporal moment-generating equations: modeling transport and mass transfer in heterogeneous aquifers. Water Resour Res 1995;31:1895–1911.

Hirata S.C., Goyeau B., Gobin D., Chandesris M., Jamet D. Stability of natural convection in superposed fluid and porous layer: Equivalence of the one- and two-domain approaches. Int. J. Heat Mass Transf. 2009; 52(1–2): 533–536.

Jamet D., Chandesris M., Goyeau B. On the Equivalence of the Discontinuous One- and Two-Domain Approaches for the Modeling of Transport Phenomena at a Fluid/Porous Interface. Trans Porous Media. 2009; 78: 403-418.

Kapellos G.E., Alexiou T.S., Payatakes A.C. Hierarchical simulator of biofilm growth and dynamics in granular porous materials. Advances in Water Resources. 2007; 30(6-7): 1648-1667.

Kumar K., van Noorden T.L, Pop I.S., Effective Dispersion Equations for Reactive Flows Involving Free Boundaries at the Microscale. Multiscale Model. Simul. 2011; 9: 29-58.

Landerau P, Noetinger B, Quintard M. Quasi-steady two-equation models for diffusive transport in fractured porous media: large-scale properties for densely fractured systems. Adv Water Resour 2001;24: 863–76.

Le Borgne T., de Dreuzy J.-R., Davy P., Bour O. Describing the velocity field organization in

heterogeneous media by conditional correlations. Water Resources Research. 2007; 43, W02419.

Löffler F.E., Edwards E.A. Harnessing microbial activities for environmental cleanup. Current Opinion in Biotechnology. 2006; 17: 274-284.

Luquot L., Gouze P. Experimental determination of porosity and permeability changes induced by massive injection of CO2 into carbonate reservoirs. Chemical Geology. 2009; 265(1-2): 148-159.

Luo H., Quintard M., Debenest G., Laouafa F. Properties of a diffuse interface model based on a porous medium theory for solid-liquid dissolution problems. Comp. Geosc. 2011

Markov M., Kazatchenko E., Mousatov A., Pervago E. Permeability of fluid-filled inclusions in porous media. Trans. Porous Media. 2010; 84(2): 307-317.

Marle C.M. Ecoulements monophasiques en milieu poreux. Revue de l'Institut Français du Pétrole. 1967 ; 1471-1509.

Mermoud F. Gazéification de charbon de bois à la vapeur d'eau : de la particule isolée au lit fixe continu. Thèse de doctorat. 2006 ; INP Toulouse.

Mikelic A., Devigne V., van Duijn C.J. Rigorous upscaling of the reactive flow through a pore, under dominant Peclet and Damkohler numbers. SIAM J. Math. Anal. 2006; 38.

Mikelic A., Rosier C. Rigorous upscaling of the infinite adsorption rate reactive flow under

dominant Peclet number through a pore. Ann. Univ. Ferrara Sez. VII Sci. Mat. 2007; 53:333–359.

Moctezuma-Berthier A., Vizika O., Thovert J.F., Adler P.M. One- and two-phase permeabilities of vugular porous media Transport in Porous Media. 2004; 56 (2): 225-244.

Mourzenko V.V., Békri S., Thovert J.-F., Adler P.M. Deposition in fractures. Chemical Engineering Communications. 1996; 148-50: 431-464.

Moyne C. Two-equation model for a diffusive process in porous media using the volume averaging method with an unsteady state closure. Adv Water Resour 1996;20:63–76.

Moyne C, Didierjean S, Amaral Souto HP, Da Silveira OT. Dispersion thermique en milieu poreux : Modèle à une équation. in `Congrés Annuel de la Société Française des Thermiciens', Elsevier ;1999:467-72.

National Research Council In situ bioremediation: When does it work? National Academy Press. 1993; Washington DC.

Noiriel, C., Gouze, P., Bernard, D. Investigation of porosity and permeability effects from microstructure changes during limestone dissolution. Geophysical Research Letter., 2004, 31.

Ochoa-Tapia J.A., Stroeve P, Whitaker S. Diffusive transport in two-phase media: spatially periodic models and Maxwell's theory for isotropic and anisotropic systems. Chem Eng Sci 1994;49:709–26.

Ochoa-Tapia J.A., Whitaker, S. Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid - I. Theoretical development. Int. J. Heat Mass Transfer 1995; 38: 2635-2646.

Oltéan C., Buès M.A. Infiltration of salt solute in homogeneous and saturated porous media - An analytical solution evaluated by numerical simulations. Transp. Porous Media. 2002; 48(1):61-78.

Oltéan C, Felder C, Panfilov M., Buès MA. Transport with a very low density contrast in Hele-Shaw cell and porous medium: Evolution of the mixing zone. Transp. Porous Media. 2004; 55: 339-360.

Picioreanu C, Van Loosdrecht MCM, Heijnen J. Mathematical modelling of biofilm structure with a hybrid differential-discrete cellular automaton approach. Biotechnol Bioeng 1998;58(1):101-116.

Quintard M, Cherblanc F, Whitaker S. Dispersion in heterogeneous porous media: One-equation non-equilibrium model. Transport Porous Med 2001; 44(1):181–203.

Quintard M., Whitaker S. Two-phase flow in heterogeneous porous media: The method of large-scale averaging. Transport in Porous Media. 1988; 3:357-413.

Quintard M., Whitaker S. Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media IV: large-scale mass equilibrium for solute transport with adsorption. Adv Water Resour. 1999a; 22(1), 33-57.

Quintard M., Whitaker S. Dissolution of an immobile phase during flow in porous media. Ind. and Engng Chem. Res. 199b; 38(3): 833-844.

Rao P.S.C., Rolston D.E., Jessup R.E. and Davidson J.M. Solute transport in aggregated porous media: theoretical and experimental evaluation. Soil Sci Am J. 1980; 44: 1139–1146.

Sanchez-Palencia E., Sanchez Hubert J. Introduction aux méthodes asymptotiques et à l'homogénéisation. Application à la Mécanique des milieux continus. Masson, Paris. 1992, 266 pages.

Seifert D., Engesgaard P. Use of tracer tests to investigate changes in flow and transport properties due to bioclogging of porous media. Journal of Contaminant Hydrology 2007; 93: 58-71.

Shikaze S.G., Sudicky E.A., Schwartz F.W. Density-dependent solute transport in discretely-fractured geologic media: is prediction possible? J. Contam. Hydrol. 1998; 34: 273-291.

Slattery J.C. Flow of viscoelastic fluids through porous media. American Institute of Chemical Engineers Journal. 1967; 13:1066-1071.

Tartakovsky A.M., Tartakovsky D.M., Scheibe T.D., Meakin P. Hybrid simulations of reaction-diffusion systems in porous media. Siam J. Sc. Comput. 2008; 30(6): 2799-2816.

Taylor G.I. Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube. Proc. R. Soc. Lond. 1953; A 219 (1137): 186-203.

Trinh Thieu B. Infiltration par contraste de densité en entraînement d'un liquide miscible émis à débit constant dans un milieu poreux saturé d'eau au repos ou en mouvement. Thèse de doctorat. 1974 ; Université Louis Pasteur, Strasbourg, France.

Valdes-Parada F.J., Goyeau B. and Ochoa-Tapia J.A. Jump momentum boundary condition at a fluid-porous dividing surface: derivation of the closure problem. Chem. Eng. Sci. 2007; 62: 4025-4039.

Valocchi A. Validity of the local equilibrium assumption for modeling sorbing phase solute transport through homogeneous soils. Water Resour Res 1985;21:808–20.

Walker J.T., Marsh P.D. A review of biofilms and their role in microbial contamination of dental unit water systems (DUWS). International Biodeterioration and Biodegradation. 2004; 54: 87-98.

Weiss J.V., Cozzarelli I.M. Biodegradation in contaminated aquifers: Incorporating microbial/molecular methods. Ground Water. 2008; 46: 305-322.

Whitaker S. Diffusion and dispersion in porous media. AIChe J. 1967; 13:420-427.

Whitaker S. Flow in porous media I : A theoretical derivation of Darcy's law. Transport in Porous Media. 1986; 1:3-25.

Whitaker S. The method of volume averaging. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers; 1999.

Wood B.D., Whitaker S. Diffusion and reaction in biofilms, Chem. Engng. Sci. 1998; 53(3): 397-425.

Wood B.D., Quintard M., Whitaker S. Calculation of effective diffusivities for biofilms and tissues, Biotechnol. Bioeng. 2002;77(5):495-516.

Wu W.M., Carley J., Fienen M., Melhorn T., Lowe K., Nyman J., Luo J., Gentile M.E., Rajan R., Wagner D., Hickey R.F., GU B., Watson D., Cirpka O.A., Kitanidis P.K., Jardine P.M., Criddle C.S. Pilot-Scale in Situ Bioremediation of Uranium in a Highly Contaminated Aquifer. 1. Conditionning of a Treatment Zone. Environ. Sci. Technol. 2006; 40: 3978-3985.

Xu Z., Meakin P. Phase-field modeling of solute precipitation and dissolution. The Journal of Chemical Physics. 2008; 129:014705.

Zinn B, Meigs LC, Harvey CF, Haggerty R, Peplinski WJ, von Schwerin CF. Experimental visualization of solute transport and mass transfer processes in two-dimensional conductivity fields with connected regions of high conductivity. Environ Sci Technol 2004;38:3916–26.

Copie des 5 publications les plus significatives

1. Mermoud F., **Golfier F.**, Salvador S. and Van de Steene L. (**2006**) Experimental and Numerical Study of steam gasification of a single charcoal particle, *Combust. Flame*, 145(1-2), 59-79.
2. **Golfier F.**, Quintard M., Cherblanc F., Zinn B. and Wood B. (**2007**) Comparison of theory and experiment for solute transport in highly heterogeneous porous medium, *Adv. Water Resour.*, 30(11), 2235-2261.
3. **Golfier F.**, Wood B., Orgogozo L., Quintard M. and Buès M.A. (**2009**) Biofilms in Porous Media: Development of Macroscopic Transport Equations via Volume Averaging with Closure for Local Mass Equilibrium Conditions, *Adv. Water Resour.*, 32(3), 463-485.
4. Orgogozo L., **Golfier F.**, Buès M.A, Quintard M. **(2010**) Upscaling of Transport Processes in Porous Media with Biofilms in Non-Equilibrium Conditions, *Adv. Water Resour.*, 33(5), 585-600.
5. **Golfier F.**, Wood B. and Quintard M. (**2011**) Comparison of theory and experiment for solute transport in weakly heterogeneous bimodal porous medium, *Adv. Water Resour.*, 34(7), 899-914.