



**HAL**  
open science

# Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs

Abdellah Amri

► **To cite this version:**

Abdellah Amri. Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs. Autre. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2021. Français. NNT : 2021INPT0119 . tel-04265545

**HAL Id: tel-04265545**

**<https://theses.hal.science/tel-04265545>**

Submitted on 31 Oct 2023

**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.



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

**Délivré par :**

Institut National Polytechnique de Toulouse (Toulouse INP)

**Discipline ou spécialité :**

Sciences de la Terre et des Planètes Solides

---

**Présentée et soutenue par :**

M. ABDELLAH AMRI

le jeudi 9 décembre 2021

**Titre :**

Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude  
du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets  
radioactifs

---

**Ecole doctorale :**

Sciences de l'Univers de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)

**Unité de recherche :**

Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT)

**Directeur de Thèse :**

M. RACHID ABABOU

**Rapporteurs :**

M. BRAHIM AMAZIANE, UNIVERSITE DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR  
MME AZITA AHMADI-SENICHAULT, ENSAM - ARTS ET METIERS PARISTECH

**Membres du jury :**

M. VINCENT LAGNEAU, MINESPARISTECH, Président  
M. MARC PRAT, TOULOUSE INP, Membre  
MME MAGDALENA DYMITROWSKA, IRSN, Membre  
M. RACHID ABABOU, TOULOUSE INP, Membre  
M. ZAKARIA SAADI, IRSN, Membre

# Table des matières

<b>Nomenclature</b>	<b>15</b>
<b>Résumé</b>	<b>17</b>
<b>Abstract</b>	<b>19</b>
<b>Introduction Générale</b>	<b>21</b>
<b>1 Description des phénomènes physiques d'écoulement et de transport en milieu poreux</b>	<b>25</b>
Overview . . . . .	25
1.1 Contexte : stockage profond de déchets radioactifs . . . . .	25
1.1.1 Définition et classement des déchets radioactifs . . . . .	25
1.1.2 Stockage en couche géologique profonde . . . . .	27
1.1.3 Centre de stockage géologique en France (Cigéo) . . . . .	27
1.1.4 Les problèmes liés au stockage des déchets radioactifs . . . . .	29
1.2 Propriétés générales d'un milieu poreux . . . . .	30
1.2.1 Caractéristiques physiques d'un milieu poreux . . . . .	30
1.2.2 Rétention de l'eau liquide . . . . .	32
1.2.3 Courbe de rétention d'eau . . . . .	35
1.2.4 Mécanismes de transfert de gaz dans les milieux poreux initialement saturés . . . . .	38
1.2.4.1 Transfert par advection . . . . .	38
1.2.4.2 Courbes de perméabilités relatives . . . . .	39
1.2.4.3 Transfert par diffusion . . . . .	40
1.2.4.4 Transfert de gaz en milieu poreux initialement saturé . . . . .	40
1.2.5 Modèle de transfert biphasique bi-composant dans un milieu poreux	42
1.3 Description des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées . . . . .	45
1.3.1 Argile du COx (roche hôte de Cigéo) . . . . .	46
1.3.2 Bétons de l'ANDRA (CEM I, CEM V) . . . . .	53
1.4 Conclusion . . . . .	58
<b>2 Prise en compte de la pression d'entrée dans la modélisation des transferts de gaz dans un milieu argileux</b>	<b>61</b>

Overview . . . . .	61
2.1 Modèles de courbes de rétention et de perméabilités relatives . . . . .	61
2.1.1 Modèle classique de van Genuchten-Mualem (VGM) . . . . .	62
2.1.2 Prise en compte de la pression d'entrée dans le modèle de Van Genuchten-Mualem (VGM) . . . . .	65
2.1.3 Analyse et traitement des données expérimentales . . . . .	67
2.1.3.1 Optimisation mono-objectif . . . . .	68
2.1.3.2 Optimisation multi-objectif . . . . .	69
2.1.3.3 Application aux données de l'argile du COx . . . . .	71
2.1.4 Conclusion . . . . .	73
2.2 Implémentation dans le code TOUGH2 . . . . .	74
2.2.1 Présentation générale du TOUGH2 Code . . . . .	74
2.2.2 Prise en compte de la pression d'entrée dans iTOUGH2-EOS3 . . . . .	76
2.2.2.1 Méthode $P_c$ : nouvelles variables primaires (PCM) . . . . .	77
2.2.2.2 Méthode $S_g$ : prise en compte de la pression d'entrée dans l'équilibre thermodynamique (SGM) . . . . .	79
2.2.3 Benchmark entre codes de calcul . . . . .	79
2.2.4 Conclusion . . . . .	84
2.3 Modélisation de l'expérience PGZ1-GAZ . . . . .	85
2.3.1 Description du protocole expérimental . . . . .	86
2.3.2 Modèle géométrique . . . . .	88
2.3.3 Résultats des simulations PGZ1-GAZ . . . . .	91
2.3.4 Conclusion . . . . .	95
2.4 Conclusions . . . . .	96

**3 Parametric Sensitivity to Gas Entry Pressure in Two-Phase Flow Models for Deep Geologic Disposal of Radioactive Waste (Article submitted for publication, currently under review, 2021)** **99**

Overview . . . . .	99
Introduction et résumé en français . . . . .	100
3.1 Introduction . . . . .	101
3.1.1 Mechanisms of gas transport in low permeability porous media . . . . .	101
3.1.2 Gas entry pressure, capillary entry pressure . . . . .	103
3.2 Theory of constitutive relationships : functional models and entry pressure	105
3.2.1 Classical Van Genuchten / Mualem model . . . . .	106
3.2.2 Modified Van Genuchten / Mualem model (VGM/Pe) . . . . .	108
3.2.3 Parametrization of the hydraulic properties models of porous media	109
3.3 The iTOUGH2 simulation code . . . . .	111
3.3.1 Governing equations for two-phase flow . . . . .	112
3.3.2 Modification of primary variables in the EOS3 module of iTOUGH2	114

3.3.3	Verification : Philip infiltration test in the Grenoble Sand . . . . .	115
3.4	Numerical experiments and applications . . . . .	115
3.4.1	Numerical experiments of vertical unsaturated flow . . . . .	116
3.4.2	Modeling the PGZ1 experiment . . . . .	123
3.4.2.1	The PGZ1 experimental system and field data . . . . .	123
3.4.2.2	Numerical model and modeling approach (PGZ1) . . . . .	124
3.4.2.3	Hydraulic properties of the CO <sub>x</sub> host rock (PGZ1 experiment)	125
3.4.2.4	Injection chamber (PGZ1 experiment) . . . . .	129
3.4.2.5	Initial and boundary conditions (PGZ1 experiment) . . . . .	129
3.4.3	Results and discussion (PGZ1 experiment) . . . . .	129
3.5	Conclusions . . . . .	134
	Conclusion en français (pression d'entrée) . . . . .	135
<b>4</b>	<b>Modeling multi-phase flow with hysteresis : Application to deep geological structures, storage of radioactive waste and CO<sub>2</sub> (Article in preparation for publication)</b>	<b>137</b>
	Overview . . . . .	137
	Introduction et résumé en français . . . . .	138
4.1	Introduction . . . . .	139
4.2	Brief description of some conceptual hysteresis models . . . . .	140
4.2.1	Empirical hysteresis models without non-wetting phase entrapment	140
4.2.1.1	Mualem model 1974 . . . . .	141
4.2.1.2	Mualem model 1984 . . . . .	144
4.2.1.3	Haverkamp 2002 . . . . .	146
4.2.2	Non-wetting phase entrapment with Hysteretic models . . . . .	148
4.2.2.1	Non-wetting phase entrapment saturation . . . . .	149
4.2.2.2	Lenhard and Parker 1987 . . . . .	149
4.2.2.3	Doughty 2007 . . . . .	151
4.2.2.4	Beriozkin and Mualem 2018 . . . . .	153
4.2.3	Conclusion . . . . .	155
4.3	Comparative study of water retention hysteresis models . . . . .	156
4.3.1	Data preparation and comparison criteria . . . . .	156
4.3.2	Results and discussions . . . . .	157
4.4	Application : Analysis and modeling of a 2-phase laboratory-scale experiment emulating CO <sub>2</sub> trapping with and without hysteresis . . . . .	171
4.4.1	Experimental setup . . . . .	171
4.4.2	Hydraulic properties and model description . . . . .	172
4.4.3	Simulation results and discussions . . . . .	174
4.4.3.1	Effect of different hysteresis models on the distribution of injected non-wetting fluid during the post-injection phase	174

4.4.3.2	Comparison of simulations with experimental observations of non-wetting fluid saturation . . . . .	177
4.5	Conclusions (hysteresis) . . . . .	180
	Conclusions en français (hystérésis) . . . . .	182
<b>5</b>	<b>Modélisation de la migration de l'hydrogène à l'échelle d'un alvéole</b>	<b>183</b>
	Overview . . . . .	183
5.1	Introduction à la modélisation aux grandes échelles . . . . .	183
5.1.1	L'alvéole : unité de stockage de déchets radioactifs dans le projet Cigéo . . . . .	183
5.1.2	Modèle de référence pour un alvéole HA (FORGE 2010) . . . . .	186
5.1.3	Etude préliminaire de l'effet de la pression d'entrée . . . . .	189
5.2	Conclusion . . . . .	194
<b>6</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>197</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>203</b>

# Nomenclature

## Symbole grec

- $\phi$  Porosité d'un milieu poreux
- $\alpha$  Paramètre pour indexer la phase liquide ( $\alpha = l$ ) ou gaz ( $\alpha = g$ )
- $\gamma$  Angle entre le ménisque capillaire et la paroi solide [rad]
- $\gamma$  Fonction gamma d'Euler
- $\kappa$  Paramètre pour indexer le constituant du mélanges biphasique  $\kappa \in \{l, g\}$ )
- $\lambda_c, \lambda_{cap}$  Point d'inflexion de la courbe de van Genuchten  $S_{we}(Pc)$  [-]
- $\mu$  viscosité dynamique du fluide [ $P.s^{-1}$ ]
- $\rho_\alpha^\kappa$  Masse volumique du composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$  [ $Kg.m^{-3}$ ]
- $\rho_g$  Masse volumique de gaz [ $Kg.m^{-3}$ ]
- $\rho_w$  Masse volumique de l'eau [ $Kg.m^{-3}$ ]
- $\sigma$  Tension superficielle entre la phase mouillante et la phase mouillée [ $N.m^{-1}$ ]
- $\theta_l$  Teneur en eau volumique [-]

## Abréviation

- ANDRA Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs
- EOS Module du code TOUGH2 décrivant une équation d'état précise (EOS3, EOS10...)
- FORGE Projet européen pour l'évaluation de l'impact des gaz dans les stockages de déchets radioactifs (2009-2013)
- IRSN Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire
- ITER, ITERC Nombre des itérations de Newton-Raphson à l'instant et le cumule des itérations de Newton-Raphson respectivement

KON Symbole pour désigner l'état de la convergence de chaque itération dans le code TOUGH2 ; KON=1 signifie la divergence de l'itération ; KON=2 signifie sa convergence

MOF Méthode d'optimisation basée sur une fonction multi-objective

PNGMDR Plan national de gestion des matières et déchets radioactifs

SOF Méthode d'optimisation basée sur une fonction objective simple

### Propriétés hydrauliques et grandeurs physiques

$H_R$  Humidité relative [-]

$k_{0,g}$  Perméabilité intrinsèque mesurée en état saturé en gaz [ $m^2$ ]

$k_{0,l}$  Perméabilité intrinsèque mesurée en état saturé en eau [ $m^2$ ]

$k_0$  Perméabilité intrinsèque [ $m^2$ ]

$k_{r,g}$  Perméabilité relative en gaz [-]

$k_{r,l}$  Perméabilité relative en eau [-]

$P_{c,e}$  Pression capillaire seuil d'entrée [Pa]

$P_c, P_{c,min}, P_{c,max}$  Pression capillaire, pression capillaire minimale, et la pression capillaire maximale respectivement [Pa]

$P_g$  Pression de gaz [Pa]

$P_l$  Pression de l'eau [Pa]

$P_{sat}$  Pression de vapeur saturante [Pa]

$P_v$  Pression de vapeur [Pa]

$R_c$  Rayon de courbure du ménisque entre la phase mouillante et la phase non mouillante [Pa]

$S_{ls}, S_{ws}$  Saturation totale en eau et en liquide respectivement

$S_{max,w}$  Saturation en eau maximale atteinte à partir de mouillage d'un milieu poreux totalement sec [-]

$S_{nw}^{\Delta}, S_{gr}^{\Delta}$  Saturation de la phase non-mouillante/gaz piégé [-]

$S_{we}, S_{le}$  Saturation en eau effective et saturation en liquide effective respectivement

$S_w, S_l$  Saturation en eau, et en phase liquide respectivement [-]

$S_{N,p}, P_{cN,p}$  Saturation et pression capillaire en point de retournement (*turnin point*) relative à la courbe intermédiaire numéro N et dans le chemin  $p \in \{w, d\}$



- $d_{\alpha}^{\kappa}$  Coefficient de diffusion du composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$  [ $m^2/s$ ].
- $F_{\alpha, diff}^{\kappa}$  Flux diffusif du composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$
- $F_{\alpha}$  Flux advectif de la phase  $\alpha$
- $g$  Accélération de la pesanteur [ $m.s^{-2}$ ]
- $H$  Constante de Henry [ $Pa^{-1}$ ]
- $n, m, P_{c,0}, \tau, \tau'$  Paramètres du modèle van Genuchten
- $O_{obj}(P)$  Fonction objectif suivant le vecteur de paramètres  $P$  [-]
- $R$  Constante des gaz parfaits [ $J.mol^{-1} K^{-1}$ ]
- $V_{\alpha}$  Vitesse du fluide dans la phase  $\alpha$
- $X_{\alpha}^{\kappa}$  Fraction massique du l'élément  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$



# Table des figures

0.1	Schémas des galeries, des puits et des descenderies, remblayés et scellés pour le projet Cigéo, d'après le rapport de l'ANDRA (2005) [7] . . . . .	22
0.2	Représentation schématique des mécanismes de production de l'hydrogène (gaz H <sub>2</sub> ) dans un alvéole de déchets radioactifs "HA" (Haute Activité) dans un centre de stockage des déchets radioactifs (ANDRA 2005 [7]) . . . . .	22
1.1	Classement des déchets radioactifs en France, synthétisé à partir du rapport IRSN (2015) [110] . . . . .	26
1.2	Solutions de gestion développées dans le cadre du PNGMDR pour les différentes catégories de déchets [65] . . . . .	26
1.3	Schéma du centre industriel de stockage géologique en France (Cigéo) [10]	28
1.4	Schéma d'un colis de déchets vitrifiés 'à gauche' et d'un assemblage des conteneurs MAVL (à droite) [10] . . . . .	28
1.5	Schéma d'une galerie de la zone de stockage (HA) pour le projet cigéo avec un zoom sur un alvéole HA [10] . . . . .	29
1.6	Schéma représentatif d'un milieu poreux biphasique, d'après Daian (2013) [35] . . . . .	30
1.7	Schéma simplifié illustratif du phénomène d'adsorption d'après Laurette (2004) [76]. . . . .	32
1.8	Schéma des forces intermoléculaires dans le cas d'une interface liquide-gaz (en haut à gauche d'après Ababou (2018) [1]), et phénomène de montée capillaire dans un tube (à droite). . . . .	33
1.9	Mécanismes d'adsorption suivant le niveau de l'humidité relative dans le cas de condensation de l'eau vapeur, d'après Collet et al. (2011) [31] . . . . .	34
1.10	Mise en évidence de phénomènes physiques (pression d'entrée de gaz, hystérésis, et piégeage du gaz) dans la courbe de rétention d'eau. . . . .	35
1.11	Illustration schématique de l'effet « bouteille d'encre » d'après M'jahad (2012) [93], à gauche illustration de l'imbibition et à droite illustration du séchage (ou drainage). . . . .	36
1.12	Mise en évidence de l'angle de contact en mouillage et en drainage, d'après Maison (2011) [89]. . . . .	37

1.13	Analyse et classification des mécanismes de transfert dans l'argile d'Opalinus : (a) Description phénoménologique basée sur le modèle microstructure. (b) Mécanismes de transport (Modifiée de [90]). . . . .	41
1.14	Évolution temporelle de la dilatation des pores lors d'un test d'injection de gaz d'après Wiseall et al. (2015) [140]. (a) Début de la création des chemins préférentiels localisés. (b) Début de développement des chemins préférentiels localisés. (c) la ramification des chemins préférentiels à partir des ouvertures plus étroites. (d) Des chemins préférentiels plus larges se développent. . . . .	42
1.15	Schématisation de l'architecture du code TOUGH2 et mise en évidence du principe modulaire. Traduite à partir de Pruess et al. (2011) [111]. . . . .	45
1.16	Lithologie et minéralogie de l'argile du COx d'après Yven et al. (2007) [144].	46
1.17	Mise en évidence du phénomène d'hystérésis. (a) Courbe de rétention de l'argile du COx par Pham (2006) [103]. (b) Schématisation du phénomène de piégeage de gaz par Boulin, P. (2008) [17]. . . . .	49
1.18	Isothermes de sorption et de désorption de l'argile du COx, d'après M'jahad (2012) [93]. (a) Effet de la saturation initiale sur l'argile de COx. (b) Effet de la fissuration sur l'argile de COx. . . . .	49
1.19	Données expérimentales de courbes de rétention de l'argile du COx synthéti- sées par Gérard (2011) [52]. (a) Courbes de rétention issues des différentes études. (b) Mise en évidence de l'hystérésis. . . . .	50
1.20	Données expérimentales de l'hystérésis des courbes de rétention de l'argile du COx. (a) Hystérésis des courbes de rétention sous différentes conditions (échantillon bloqué ou libre) d'après Song (2014) [123]. (b) Mise en évidence de l'hystérésis dans les mesures de Meunacer et al. (2014) [91] comparées avec celles de Wan et al. (2013) [136] et Pham et al. (2007) [104]. . . . .	50
1.21	Données expérimentales du COx. (a) Perméabilité à l'eau en fonction de l'humidité relative. (b) Perméabilité au gaz en fonction de l'humidité relative d'après Gérard (2008) [52]. . . . .	51
1.22	Synthèse des données expérimentales de courbes de rétention de l'argile du COx. . . . .	52
1.23	Mise en évidence de l'hystérésis dans les courbes de rétention de l'argile du COx. . . . .	52
1.24	Synthèse des données mesurées de la perméabilité de l'eau en fonction de la pression capillaire $k_w(P_c)$ . . . . .	53
1.25	Synthèse des données mesurées de la perméabilité au gaz en fonction de la pression capillaire $k_g(P_c)$ . . . . .	53
1.26	Utilisation du béton dans le projet Cigéo (a) les alvéoles en béton contenant les colis de stockage de déchets MAVL, d'après ANDRA (2015) [10]. (b) Concept de stockage des déchets HA, d'après Libert et al. (2011) [83]. . . .	54

1.27	Isothermes de sorption et de désorption du béton (a) et (b) Effet de temps de dessiccation sur les bétons CEM V et CEM I respectivement, d'après Chen et al. (2011) [29] (c) Mise en évidence de l'hysteresis sur CEM I, d'après Chen (2011) [28]. (d) Effet du temps de dessiccation sur CEM V, d'après M'jihad (2012) [92]. (e) et (f) Mise en évidence de l'hysteresis dans les bétons CEM I et CEM V, respectivement, et ajustement par le modèle de double porosité réalisé par Liu (2011) [85]. . . . .	56
1.28	Synthèse des mesures de la perméabilité au gaz du Béton (CEM I et CEM v). (a) Evolution de la perméabilité relative avec la saturation en eau pour le béton (CEM V) et (b) Evolution de la perméabilité relative avec l'humidité relative pour le béton (CEM I) à l'état saine et fracturée avec une mise en évidence de l'effet du pression de confinement, d'après M'jihad (2012) [93]. (c) et (d) Evolution de la perméabilité relative avec la saturation en eau pour le béton CEM I et CEM V respectivement, d'après Chen (2011) [28]. . . . .	57
1.29	Synthèse des travaux de Zhang (2014) [146] sur l'hystérésis. (a) Résultats de prédiction des courbes intermédiaires sur une pâte de ciment CEM I. (b) Modélisation d'un cycle d'humidification-séchage d'une pâte de ciment CEM I.	58
2.1	Étude de sensibilité des perméabilités à l'eau et au gaz à des faibles perturbations de la courbe de rétention au voisinage de la saturation à travers le changement du paramètre $n$ . $S_{ls} = 1$ , $S_{lr} = 0$ , et $\alpha^{-1} = 15$ MPa. . . . .	65
2.2	Illustration de la modification de Vogel et al. (2001) [134] pour prendre en compte la pression d'entrée $P_{c,e}$ dans le modele de Van Genuchten VG. . . . .	66
2.3	Schématisation du choix de la solution optimale de Pareto dans un espace de deux objectifs $f_1$ et $f_2$ . . . . .	71
2.5	Optimisation simultanée des propriétés hydrauliques de l'argile du COx (courbes de rétention $S_l(P_c)$ , la perméabilité absolue à l'eau $k_l(P_c)$ , et la perméabilité absolue au gaz $k_G(P_c)$ ) avec les deux modèles VGM et VGMPE et par les deux méthodes d'ajustement (a) fonction mono-objectif (RETC), et (b) fonction multi-objectif. Les données mesurées sont issues de Gérard (2011) [52]. . . . .	72
2.6	Comparaison des deux méthodes d'ajustement dans l'espace de Pareto. . . . .	73
2.7	Schéma simplifié du module EOS3. . . . .	75
2.8	Structure détaillée de code TOUGH2 adaptée d'après Pruess et al. (1996) [113]. . . . .	76
2.9	Comparaison des profils de teneur en eau $\theta$ en fonction de la profondeur ( $z$ ) à différents temps $t = 1, 2, \dots, 8$ heures, calculés à partir du test d'infiltration d'eau dans le sable de Grenoble avec la nouvelle version de iTOUGH2/EOS3, la version originale de iTOUGH2/EOS3, et la solution semi-analytique de Philip. . . . .	78

2.10	Propriétés hydrauliques du sol argileux issues de Vogel et al. (2001) [134] avec $P_{c,e} = 196 Pa$ et $P_{c,e} = 0$ (a) Courbes de rétention. (b) Perméabilités à l'eau. . . . .	80
2.11	Comparaisons des résultats des simulations de la remontée capillaire dans l'argile avec et sans pression d'entrée capillaire ( $P_{c,e}=196 Pa$ et $P_{c,e}=0$ ). (a,b) : comparaison des profils de saturation en eau $S_l(z, t)$ aux temps $t = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.2, 1.4, 1.6, 1.8, 2.0$ jours ; (a) Sans pression d'entrée, et (b) Avec pression d'entrée ; (c) Comparaison de l'évolution temporelle du flux de masse $Q(t)$ [ $kg/s$ ] sans pression d'entrée et avec pression d'entrée. . . . .	82
2.12	Comparaison de l'évolution du flux de la remontée capillaire $Q(t)$ au fond de la colonne dans le sol "Clay 12". Trois jeux de simulations sont comparés (avec des couleurs différentes) : code BIGFLOW 3D, code Matlab UNSAT 1D, et code iTOUGH2-EOS3. La pression d'entrée capillaire est prise nulle dans ces trois simulations ( $P_{c,e} = 0$ ). . . . .	83
2.14	Comparaison des profils de saturation en eau $S(z,t)$ pour $t = 0.2, 0.6, 1.0, 1.4, 2.0$ jours issus des résultats de simulation par le code UNSAT1D et le code iTOUGH2-EOS3. (a) Simulations avec une pression d'entrée nulle. (b) Simulations avec une pression d'entrée non nulle ( $P_{c,e} = 196 Pa$ ). . . . .	84
2.15	schématisation des galeries et des conduites dans le laboratoire souterrain de Bure avec un zoom sur la conduite de l'expérience PGZ1-GAZ et la chambre d'injection [37], [38]. . . . .	85
2.16	Les trois forages installés dans l'expérience PGZ1-GAZ [55]. . . . .	86
2.17	Flux d'injection de l'azote $N_2$ gazeux au cours de l'expérience PGZ1-GAZ [73].	87
2.18	Schématisme de la chambre d'injection de gaz [73]. . . . .	87
2.19	Description des éléments constituant l'intervalle 2 d'injection de gaz [73]. . . . .	88
2.20	Visualisation sous PetraSim de la géométrie radiale 2D discrétisée par MESH-MAKER (à gauche) et zoom sur le maillage de la chambre en jaune et de l'EDZ en magenta (en face de la chambre) et en bleu (en face des packers). . . . .	89
2.21	(a) Conditions initiales, et (b) conditions aux limites considérées pour la modélisation de l'expérience PGZ1-GAZ. . . . .	90
2.22	Comparaison entre les variations temporelles des données expérimentales et les simulations numériques de la pression de gaz dans la chambre . . . . .	91
2.23	Evolutions temporelles de la saturation en eau aux points P1 et P2, simulées avec les modèles VGM ( $P_{c,e}=0$ ) et avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e} = 1.997 MPa$ )	92
2.24	Distributions spatiales de la saturation en eau (figures (a,b)) et de la fraction molaire de l'azote gazeux dissout dans l'eau (figures (c,d)), simulées aux différents temps $T$ [jours]. À gauche les sous figures (a,c) sont relatives aux simulations avec le modèle VGM ( $P_{c,e}=0$ ). À droite les sous figures (b,d) sont relatives aux simulations avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e} = 1.997 MPa$ ). . . . .	93

3.1	Schematic depiction of four main processes of gas transfer in clays (from Gauss et al. 2014 [34]) . . . . .	102
3.2	Parametric sensitivity of the VGM model with respect to parameter $n$ . Other parameters are fixed : $S_{ls} = 1$ , $S_{lr} = 0$ , and $\alpha^{-1} = 15$ MPa. . . . .	107
3.3	Comparison of water content profiles $\theta$ vs. depth ( $z$ ), at times $t = 1, 2, \dots, 8$ hours, for the Grenoble Sand infiltration experiment, calculated numerically with the original and modified versions of iTOUGH2/EOS3, and analytically using the classical solution of Philip. . . . .	116
3.4	Soil hydraulic properties functions of capillary pressure, for the Clay soil from Vogel et al. (2001) [134], with two different capillary entry pressures : $P_{c,e} = 196$ Pa and $P_{c,e} = 0$ , respectively. Note that the two saturation curves at left are almost indistinguishable, while the two permeability curves at right are quite distinct. . . . .	117
3.5	Comparison of upward water flux evolution $Q(t)$ at the bottom of the column during capillary rise in the "Clay 12" soil. Three sets of simulations are compared (with different colors) : BIGFLOW 3D code, UNSAT 1D Matlab code, iTOUGH2-EOS3 code. The capillary entry pressure is taken zero in all three simulations ( $P_{c,e} = 0$ ). <i>Above</i> : Log-Log plot of $Q(t)$ . <i>Below</i> : Semi-Log plot of $Q(t)$ . . . . .	119
3.6	Comparison of water saturation profiles $S_l(z, t)$ at times $t = 0.2, 0.6, 1.0, 1.4, 2.0$ days, with and without capillary entry pressure, for upward flow in the "Clay 12" soil. Two sets of capillary rise simulations are compared : with the UNSAT 1D code (continuous curves), and with the iTOUGH2-EOS3 code (discontinuous curves). <i>Above</i> : $P_{c,e} = 0$ . <i>Below</i> : $P_{c,e} = 196$ Pa. . . . .	120
3.7	Comparison of capillary pressure profiles $P_c(z, t)$ at different times, with and without capillary entry pressure, for upward flow in the "Clay 12" soil. Two sets of capillary rise simulations are compared : with the custom made Matlab UNSAT 1D code (continuous curves), and with the iTOUGH2-EOS3 code (discontinuous curves). <i>Above</i> : $P_{c,e} = 0$ . <i>Below</i> : $P_{c,e} = 196$ Pa. . . . .	121
3.8	Comparison for upward flow in the "Clay 12" soil with and without capillary entry pressure ( $P_{c,e} = 196$ Pa, and $P_{c,e} = 0$ ) . . . . .	122
3.9	Experiment layout of the PGZ1 experiment in the Meuse/Haute-Marne URL, with a zoom of the gas injection chamber [37], [38] . . . . .	124
3.10	Variable gas injection rate in the test chamber for the PGZ1201-GAS1 experiment over 423 days. . . . .	125
3.11	Geometry of the axi-symmetric simulation domain of the PGZ1-GAS1 experiment, with a zoom (at left) on the interval chamber and the EDZ. This figure also shows an example of the adaptive "rectilinear" mesh of the axi-symmetric domain used in the numerical model. . . . .	126

3.12	Optimal simultaneous fit of COx hydraulic properties (water retention curve $S_l(P_c)$ , absolute water permeability $K_l(P_c)$ , and absolute gas permeability $K_g(P_c)$ ) using two distinct optimization methods : (a) Single Objective Function (RETC Code) ; and (b) Multi-Objective Function. The data points are borrowed from Gérard (2011) [52]. . . . .	127
3.13	Comparison between time-varying experimental and numerical gas pressure in the chamber simulated by VGM and VGM/Pe in PGZ1-GAS experiment . .	132
3.14	Water saturation vs. time in the P1 and P2 cells, simulated with the VGM model ( $P_{c,e} = 0$ ) and with the VGM/Pe model ( $P_{c,e} = 2$ MPa). Points P1 and P2 are in two adjacent cells, respectively in the EDZ (P1) and in the intact COx (P2). . . . .	133
3.15	Simulated 2D spatial distributions of gas mass fraction and of water saturation for the PGZ1 experiment at different times T [days]. Left subfigures (a,c) : VGM model (without entry pressure). Right subfigures (b,d) : VGM/Pe model (with entry pressure). . . . .	134
4.1	Schematic representation of processes of main wetting (a), main drying (b), first wetting scanning (c), and first drying (d) using the diagramme of independent domain theory of Mualem (1974) [96]. . . . .	142
4.2	Schematic illustration of soil water hysteresis with the independent domain theory of Mualem (1974) [96] (a) Continuous sequence of scans departing from the main drying curve, (b) Continuous sequence of scans departing from the main wetting curve. . . . .	144
4.3	Schematic illustration of soil water hysteresis with the dependent model theory of Mualem (1984) [141] : (a) continuous sequence of scans departing from the main drying curve, (b) continuous sequence of scans departing from the main wetting curve. . . . .	145
4.4	Schematic illustration of soil water hysteresis with the geometrical scaling model of Haverkamp et al. (2002) [57] continuous sequence of scans departing from the main drying curve. . . . .	148
4.5	Schematic illustration of water-gas hysteresis using the Doughty (2007) [42] model. The parameters of Van Genuchten model are the same as in the figure (4.2) . . . . .	152
4.6	Schematic representation of Beriozkin and Mulaem hysteresis model (2018) [15] with two parallel sequences of scans departing from the main wetting curve (MWC) and from the first drying curve (FDC). . . . .	153
4.12	Schematic representation of the simulated 2D domain and boundary conditions, corresponding to the laboratory experiment of Trevisan et al. (2014) [129] . . . . .	172



4.13	Illustration of the hysteresis effect on retention curve properties of sand 40/50. Scanning loops are calculated with different models. (a) Beriozkin & Mualem (2018) [15]. (b) Doughty (2007) [42]. (c) Mualem (1974) [96] . . .	173
4.14	Comparison of Aissaoui, linear, and Land representation of non-wetting phase entrapment for the experimental data of the Sand 40/50. The points (black dots) represent experimental entrapment data from Trevisan et al. (2017) [129]. . . . .	174
4.15	(a) Simulated 2D distribution of the non-wetting fluid saturation at different time interval with the Beriozkin and Mualem (2018) hysteresis model. (b) Flow reversal index numbers where $icurve=0$ designates fully saturation state ( $S_l = 1$ ), $icurve=1$ designates main drying curve, $icurve=2$ designates the first wetting curve, and $icurve=3$ designates second drying curve. . . . .	175
4.16	Simulated 2D distribution of the non-wetting fluid (Soltrol 220) saturation at different times intervals. (a) Results without hysteresis model. (b) Results with the hysteresis model of Doughty (2007). . . . .	176
4.17	Simulated 2D distribution of the non-wetting fluid (Soltrol 220) saturation at different time intervals. (a) With hysteresis model of Beriozkin and Mualem 2018. (b) With hysteresis model of Mualem 1974 . . . . .	176
4.18	Picture taken during the experiment at the end of recovery periode $T= 15$ days from Trevisan et al. (2014) [129] . . . . .	178
4.19	Simulated 2D distribution of non-wetting fluid saturation at the end of the post-injection period $T=15$ days. (a) With hysteretic model (Beriozkin & Mualem 2018). (b) Without hysteretic model . . . . .	178
4.20	Temporal variation of horizontal ( $x_c$ ) and vertical ( $z_c$ ) position of the centroid plume. The measured data are taken from Cihan et al. (2017) [30]. . . . .	179
4.21	Simulation results of temporal variation of horizontal ( $x_c$ ) and vertical ( $z_c$ ) position of the centroid plume from Cihan et al. (2017) [30]. We simulate the homogeneous experimentation which is presented by black color. . . . .	179
5.1	Architecture de l'installation souterraine du projet Cigéo [110]. Flèche rouge : direction de la contrainte principale (Nord-Nord-Ouest) ; flèche verte : direction du pendage des couches (Ouest-Nord-Ouest) . . . . .	184
5.2	Schéma représentatif d'un module et de la galerie principale, avec une coupe transversale (AA) de la galerie d'accès, et une coupe transversale (BB) de l'alvéole, d'après Wendling et al. (2013) [66]. . . . .	185
5.3	Représentation schématique de la géométrie axisymétrique considérée pour l'exercice du modèle d'alvéole HA (Wendling et al. 2013) [138], avec illustration des points de visualisation des résultats, modifiée par Saadi et al. (2020) [118]. . . . .	186

5.4	Conditions aux limites variables imposées à la limite de la galerie d'accès (Wendling et al. 2013) [138]. . . . .	188
5.5	(a) Représentation du maillage radial axisymétrique de l'alvéole et de la roche environnante. (b) Zoom sur la localisation des différents matériaux près du débouché à la galerie d'accès. (c) Zoom sur l'interface de 1 cm d'épaisseur entre l'alvéole et son EDZ, et entre le bouchon et l'EDZ. . . . .	189
5.6	Mise en évidence de l'impact d'une pression capillaire d'entrée non nulle sur les propriétés hydrauliques de la roche hôte : $P_{c,e} = 2$ MPa pour les courbes rouges ; $P_{c,e} = 0$ pour les courbes bleues. (a) Courbe de rétention. (b) Courbe de perméabilité relative à l'eau. (c) Courbe de perméabilité relative au gaz. . . . .	190
5.7	Comparaison de l'évolution temporelle de la pression de l'eau (a, b), de la fraction massique du gaz dissoute dans l'eau (c, d) et de la saturation en eau (e, f) simulées avec les modèles Alvéole_0 (a, c, e) et Alvéole_PE ( b, d, f) . . . . .	192
5.8	Distribution spatiales de la saturation en gaz simulées aux différents temps T[ans]. (a) À gauche simulation avec les propriétés hydrauliques du modèle standard Alvéole_0. (b) À droite, simulation avec une pression d'entrée non nulle suivant le modèle Alvéole_PE . . . . .	193
5.9	Distribution spatiales de la fraction massique de gaz dissoute dans l'eau $X_l^{H_2}$ simulées à T=10 000 ans. (a) À gauche simulation avec les propriétés hydrauliques du modèle standard Alvéole_0. (b) À droite, simulation avec une pression d'entrée non nulle suivant le modèle Alvéole_PE . . . . .	194

# Liste des tableaux

1.1	Synthèse des mesures expérimentales (au laboratoire et in-situ) de la perméabilité intrinsèque de l'argile du COx. . . . .	39
1.2	Intervalles de variation de la composition minéralogique de l'argile du COx. . . . .	47
1.3	Synthèse des propriétés porales de l'argile du COx à partir de plusieurs travaux. . . . .	48
1.4	Synthèse des intervalles de variation de la porosité, la perméabilité à l'eau, et la perméabilité au gaz pour les bétons de type CEM I et CEM V. . . . .	54
2.1	Équations des différents modèles de propriétés hydrauliques utilisés dans cette étude. . . . .	62
2.2	Paramètres des deux méthodes d'ajustement des propriétés hydrauliques du COx. . . . .	73
2.3	Variables primaires et secondaires dans le code TOUGH2 pour le module EOS3. $\mu_\alpha$ , $\rho_\alpha$ désignent respectivement, la viscosité dynamique et la masse volumique de la phase $\alpha$ . $h$ est l'enthalpie, $a$ et $b$ sont des paramètres des coefficients de diffusion [111]. . . . .	75
2.4	Changement des variables primaires implémenté dans le module EOS3 selon la méthode $P_c$ . . . . .	77
2.5	Paramètres hydrauliques du modèle VGM pour le sol 'Clay-12' de Carsel et Parish (1988) [26] (d'après Vogel et al. (2001) [134]). . . . .	80
2.6	Présentation des éléments modélisés dans l'expérience PGZ1-GAZ. . . . .	89
2.7	Comparaison des temps de calcul (CPU) [s] pour les deux méthodes $P_c$ et $S_g$ et avec les deux modèles VGM et VGMPE. . . . .	94
2.8	Comparaison des nombres de pas de temps pour les deux méthodes $P_c$ et $S_g$ et avec les deux modèles VGM et VGMPE. . . . .	94
2.9	Comparaison des nombres totaux des itérations de Newton-Raphson pour les deux méthodes $P_c$ et $S_g$ et avec les deux modèles VGM et VGMPE. . . . .	95
3.1	Change of primary variables implemented in the EOS3 module of iTOUGH2. . . . .	114
3.2	Hydraulic parameters of the VGM model for the 'Clay 12' soil of Carsel and Parish 1988 [26] (from Vogel et al. 2001 [134], Table 2). . . . .	116
3.3	Parameters of hydraulic properties of the COx, determined by a simultaneous fit using the modified version of the RETC code [132] . . . . .	128
4.1	Hydraulic properties of different porous materials studied . . . . .	157

4.2	MAE results for the scanning curves fit of each material experimental data by the different hysteresis models. The column No refer to the number of soil as presented in the table (4.1). . . . .	157
4.3	Properties of surrogate fluids used in the experiment by Trevisan et al. (2014) [129]. . . . .	171
4.4	Adjusted hydraulic parameters for the sand 40/50. the scenario 1 is for $S_{w,max}$ as a free parameter. Scenario 2 is for fixed $S_{w,max} = 1.0$ . . . . .	172
5.1	Valeurs de la pression capillaire d'entrée pour chaque type de matériau (en MPa) . . . . .	190

# Remerciements

Cette thèse a été financée par l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) qui a pour mission d'évaluer la sûreté d'un stockage profond de déchets radioactifs de haute Activité et de moyenne activité et à vie longue. Je remercie l'IRSN pour m'avoir permis de réaliser un travail de recherche sur un sujet aussi intéressant que le transfert de l'hydrogène en zone saturée et de m'avoir assuré le bon déroulement de ce projet de recherche.

Beaucoup de personnes ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail, je tiens à leur dire merci de m'avoir accompagné dans cette belle expérience. Je profite de cette page pour présenter mes sincères remerciements aux personnes qui resteront toujours dans ma mémoire :

Je veux remercier en premier mon directeur de thèse Mr. **Rachid ABABOU** pour l'accompagnement et le suivi efficace tout au long de ce travail, la confiance qu'il m'accorde et tout le savoir-faire qui m'a transmis, j'ai beaucoup appris la rigueur scientifique et le travail de recherche auprès de lui. Je remercie Mr. **Zakaria SAADI** (ingénieur-chercheur à l'IRSN) pour sa relecture de mon manuscrit, merci pour le suivi, pour les réunions d'avancement, les discussions scientifiques et pour le soutien durant cette thèse. Je remercie également Mme **Magdalena DYMITROWSKA** (ingénieur-chercheur à l'IRSN) pour ses références bibliographiques qui m'ont beaucoup aidé en début de cette thèse. Je remercie Mme **Hanane AMOR** (ingénieur-chercheur à l'IRSN) pour ses conseils et ses discussions et de m'avoir familiarisé avec les commandes linux. Je remercie Mr. **Frédéric DELERUYELLE** (Ingénieur de recherche et expert à l'IRSN) pour les discussions au coin café riches par son expertise et par ses questions pertinentes qui m'ont permis d'avancer dans la compréhension de cette thématique. Je veux remercier Mr **François MARSAL** (Chef de l'unité UEMIS) pour son accueil et ses précieuses directives.

Je remercie sincèrement les membres de mon jury : Mme. **Azita AHMADI-SENICHAULT** (Professeur des Universités), Mr. **Brahim AMAZIANE** (Maître de Conférences) et Mr. **Vincent LAGNEAU** (Professeur MINES ParisTech et Directeur du Centre de Géosciences) d'avoir accepté de rapporter sur ma thèse, leur expertise scientifique fait

référence, et je suis très reconnaissant qu'ils s'associent à ce travail. Je les remercie pour leurs remarques pertinentes qui m'ont permis d'améliorer ce document. J'exprime ma gratitude à Mr. **Marc PRAT** d'avoir accepté de faire partie de mon jury.

J'exprime ma gratitude à mes collègues (Rafael, Ayedah, Marine, Julie, Julien, Yara, Charlotte, et Solène). Je tiens à leur dire merci d'avoir rendu notre espace de travail un endroit très agréable. Merci pour le soutien et le partage de ces belles trois années de thèse.

Finalement, je dédie mon travail à ma très chère famille. À mes parents, à ma femme et à mes petites soeurs Ayat et Assia.

# Résumé

Titre : Réévaluation du modèle physique de transfert de l'hydrogène pour l'étude du transitoire hydraulique-gaz dans un stockage profond de déchets radioactifs.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre des activités de recherche et d'expertise que l'IRSN mène pour la compréhension et la modélisation des mécanismes de migration des gaz dans des barrières ouvragées quasi-saturées en eau dans le cadre du futur projet du Centre Industriel de stockage Géologique des déchets radioactifs (Cigéo). Ce travail contribue à la détermination et à l'évaluation des mécanismes de migration des gaz au voisinage d'un site de stockage des déchets radioactifs, à travers la modélisation numérique des écoulements diphasiques eau-gaz en milieu poreux, l'analyse de sensibilité des paramètres d'entrée, et la comparaison avec des expérimentations sur site. En particulier, ce travail prend en compte plusieurs phénomènes physiques négligés dans les études précédentes (pression d'entrée de gaz, hystérésis des courbes de rétention et de perméabilités relatives) : aspects théoriques, implémentation dans les codes de calcul, analyses de sensibilité... On a construit une base de données sur les mesures de propriétés hydrauliques (courbes de rétention, perméabilités à l'eau et au gaz) des différents matériaux de barrières ouvragées et de la roche hôte (CEM I, CEM V, Bentonite, Argile du Callovo-Oxfordien « COx »). Pour chaque phénomène physique, une analyse des données expérimentales a été menée pour développer ou tester des modèles à base physique. Les modèles choisis sont implémentés dans la plateforme du code TOUGH2 développée par le Laboratoire Lawrence Berkeley (LBNL, Etats-Unis) , et à l'aide de scripts (Python, Matlab) développés dans le cadre de cette thèse. Après des tests de vérification et de validation, comprenant des benchmarks avec d'autres codes, des expériences d'injection d'azote (PGZ1-GAZ in situ), ou de Soltrol 220 émulant l'injection de CO<sub>2</sub> supercritique (en laboratoire), ont été modélisées afin de tester l'impact de ces phénomènes. La modélisation de migration de gaz à l'échelle d'un alvéole et les études de sensibilité des paramètres ont souligné l'importance de prendre en compte ces phénomènes physiques dans l'évaluation de la migration des gaz dans un site de stockage des déchets radioactifs.





# Abstract

Title : Re-evaluation of physically-based model of hydrogen transport in the study of transient water-gas flow in a deep geological repository for radioactive waste.

This thesis is part of the research and expert activities that IRSN is carrying out on the understanding and modeling of gas migration mechanisms in the project of the Industrial Geological Storage Center for radioactive waste (Cigeo). This work contributes to the determination and evaluation of gas migration (H<sub>2</sub>) mechanisms within a radioactive waste disposal site, through the numerical modeling of two-phase (water-gas) flow in porous media that are initially quasi-saturated, complemented by sensitivity analyses with respect to input parameters, code benchmark tests, and modeling of both in-situ and laboratory experiments. In particular, this work takes into account several physical phenomena neglected in previous studies (gas entry pressure, hysteresis of water retention curve and of relative water & gas permeability curves) : theoretical aspects, implementation in computer codes, and sensitivity analyses. A database was constructed concerning measured hydraulic properties (retention curves, water and gas permeabilities) of the various materials constituting engineered barriers and host rock (CEM I, CEM V, Bentonite, Callovo-Oxfordian "COx" claystone). For each physical phenomenon, an analysis of the experimental data was carried out towards developing and testing physically based models. The selected models are then implemented in the TOUGH2 code platform developed by the Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL, CA, USA), and with several Python and Matlab scripts developed especially for this thesis. After verification and validation tests, including benchmarks with other codes, experiments were modeled in order to test the impact of entry pressure and of hysteresis phenomena (through their parameters). In particular, the nitrogen gas injection experiment (PGZ1-GAS) performed in situ in the COx host rock was modeled with & without entry pressure, and the LBNL laboratory experiment (injection of non-wetting Soltrol 220 emulating CO<sub>2</sub> injection) was modeled with & without hysteresis. In addition, preliminary results are presented concerning the modeling of these phenomena at the scale of a waste cell ("alvéole" in the French terminology). The modeling of gas migration at the waste cell

scale, as well as the previous tests and sensitivity studies with respect to input parameters, reveal the importance of these phenomena (entry pressure, hysteresis) and the need to take them into account for the evaluation of gas migration in a radioactive waste disposal site.

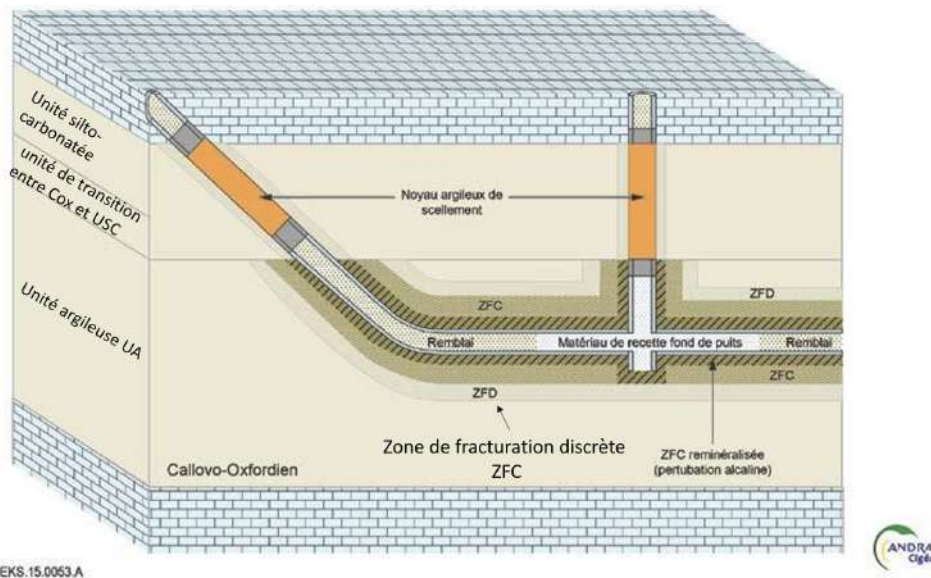
# Introduction Générale

Ce travail s'inscrit dans la problématique du stockage souterrain profond de déchets radioactifs. Il porte sur l'étude de l'impact de certains phénomènes physiques sur la migration d'hydrogène dans le stockage.

Dans ce présent travail on s'intéresse en particulier à la problématique de transfert des gaz dans la roche hôte "COx" (Callovo-Oxfordien) et les barrières ouvragées (béton, bentonite, remblai) en adéquation avec le concept du stockage de Cigéo. Il s'agit essentiellement de prendre en compte des phénomènes physiques négligés dans les études précédentes [20] et qui peuvent engendrer des incertitudes sur l'évaluation de la sûreté à long terme d'une telle installation.

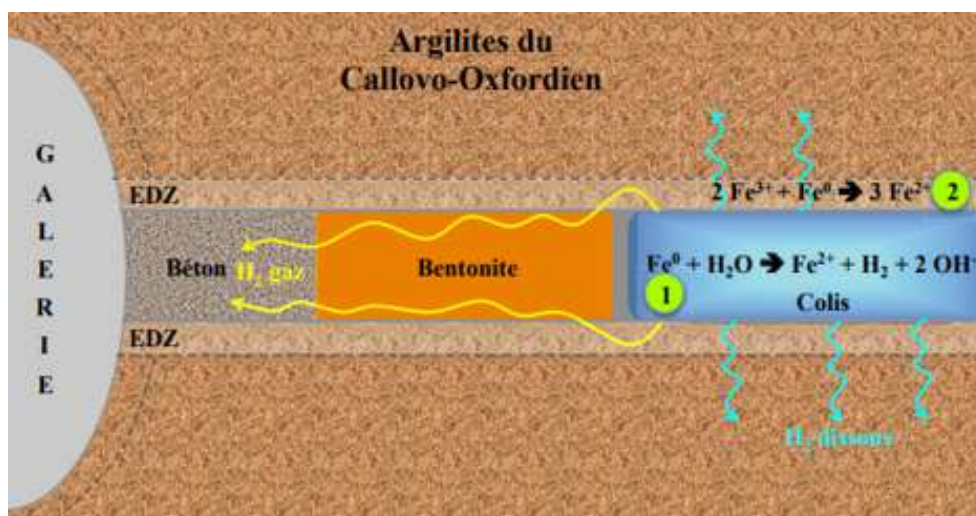
## **Problématique des gaz**

Au cours du temps, le site de stockage connaîtra de fortes perturbations mécaniques et hydrauliques. En effet, la ventilation et l'excavation vont engendrer une chute en pression hydraulique, des cycles de séchage et d'imbibition, des modifications des contraintes mécaniques de la roche au voisinage notamment des galeries et des alvéoles, et la création de zones endommagées dites "EDZ" autour de ces structures (EDZ : *Excavation Damages Zone*). Après la période d'exploitation, estimée à 100 ans, l'installation de stockage sera fermée pour assurer le confinement des substances radioactives à long terme. La fermeture du site consiste à boucher les alvéoles (ou "*waste cells*") avec un bouchon de radioprotection et un bouchon à base d'argile gonflante de type bentonite, puis à remblayer les galeries, et sceller et remblayer les puits et les descenderies (figure 0.2).



**Figure 0.1 :** Schémas des galeries, des puits et des descenderies, remblayés et scellés pour le projet Cigéo, d'après le rapport de l'ANDRA (2005) [7]

Après la fermeture de l'installation de stockage profond, une importante production d'hydrogène H<sub>2</sub> gaz (et accessoirement d'autres gaz) est attendue au niveau du stockage. Cette production d'H<sub>2</sub> est due à des mécanismes physico-chimiques, tels que (essentiellement) la corrosion anoxique des composants en acier et la radiolyse de l'eau (figure 0.2). Il est difficile de déterminer un taux de **production de l'hydrogène** à long terme, puisque ces deux mécanismes de production dépendent de l'environnement physico-chimique à long terme (quantité d'eau disponible, pH du milieu, taux de radiation).



**Figure 0.2 :** Représentation schématique des mécanismes de production de l'hydrogène (gaz H<sub>2</sub>) dans un alvéole de déchets radioactifs "HA" (Haute Activité) dans un centre de stockage des déchets radioactifs (ANDRA 2005 [7])

Le gaz produit localement dans les alvéoles va tout d'abord se dissoudre (au moins partiellement) dans les barrières ouvragées saturées en eau. Ensuite, suivant la **cinétique de production de gaz** et la vitesse de transport de gaz dissous, une phase gazeuse peut se former et monter en pression jusqu'à dépassement d'un seuil de pression notée '**pression d'entrée**' de gaz dans le milieu poreux. On verra par la suite que la pression d'entrée de gaz dans une situation donnée dépend de la pression de la phase liquide et d'une pression d'entrée capillaire, cette dernière étant un paramètre important qui caractérise le milieu poreux lui-même, et que nous étudions particulièrement dans ce travail. Selon la quantité d'hydrogène produite, le transfert éventuel des radionucléides peut se faire ensuite en régime diphasique à partir des colis vers les barrières ouvragées. La variabilité de la saturation en eau et la cinétique de migration de gaz dans différents matériaux de barrières ouvragées peuvent générer un phénomène **d'hystérésis** qui modifie et rend plus complexes les propriétés hydrodynamiques diphasiques de ces milieux poreux.

### Objectifs de la thèse

L'objectif de cette thèse est d'améliorer les capacités d'évaluation de la migration des gaz au sein d'une installation de stockage profond de déchets radioactifs, en particulier le site de stockage Cigéo, à partir de l'évaluation de l'importance de certains phénomènes physiques observés expérimentalement et négligés dans les modélisations précédentes [20]. Il s'agit essentiellement d'étudier l'importance des phénomènes suivants :

- i. **La pression capillaire d'entrée**. Ce paramètre est directement lié, dans une situation donnée, à la pression seuil du gaz qui permet le passage du gaz dans le milieu poreux ; en partant d'un état totalement saturé en eau, si cette pression seuil de gaz est dépassée, on aboutit à un état désaturé (partiellement saturé) de la roche hôte, de l'EDZ et des barrières ouvragées. Cette pression capillaire d'entrée est prise en compte via la courbe de rétention et les perméabilités relatives à l'eau et au gaz.
- ii. **Le phénomène d'hystérésis**. Suivant la cinétique de production des gaz et les différents états de saturation de la roche hôte et des barrières ouvragées, ainsi que l'état de ventilation et le degré de remblaiement des galeries (entres autres facteurs), le stockage pourrait connaître des cycles de séchage et d'imbibition qui mettent en jeu le phénomène d'hystérésis dans les propriétés hydrodynamiques de la roche hôte et des barrières ouvragées. L'hystérésis se manifeste essentiellement par une dépendance des courbes de rétention et des perméabilités diphasiques à la cinétique de saturation en eau : imbibition ou drainage ("wetting" ou "drying").

Les phénomènes étudiés seront implémentés dans le code de calcul iTOUGH2 [47]. Le code iTOUGH2 est un code de calcul en Volumes Finis 3D (Finsterle 2007 [49]) conçu pour résoudre des problèmes d'écoulements diphasiques multi-composants et de

transferts de chaleur en milieux poreux. Ce code est connu pour sa robustesse et a été intensivement utilisé dans la littérature sous différentes formes (iTOUGH2 : Finsterle 2007 [49] ; précédemment TOUGH2 : [112]). Notre bonne connaissance de ce code de calcul a permis, de plus, d'en modifier certains aspects dans le cadre de ce travail, comme par exemple le choix des variables primaires ou l'implémentation des modèles de l'hystérésis. De plus, le code iTOUGH2 pourra permettre de procéder à des analyses de sensibilité, d'identification de paramètres, et *in fine*, de propagation d'incertitude (le préfixe "i" de iTOUGH2 signifie "inverse", c'est-à-dire, problèmes inverses).

# Description des phénomènes physiques d'écoulement et de transport en milieu poreux

**Résumé.** Ce chapitre est consacré à la description des phénomènes physiques des transferts d'eau et de gaz dans un milieu poreux, et à leur modélisation mathématique. Dans un premier temps, on définit les propriétés physiques et hydrodynamiques des milieux poreux, en particulier les mécanismes qui régissent la rétention d'eau et les transferts biphasiques. Puis on présentera un état de l'art sur la caractérisation des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées et de la roche hôte (COx). Dans un second temps, on décrira le modèle mathématique d'écoulement et de transfert biphasique (Liquide-Gaz) et bi-composant ( $H_2O$ ,  $H_2$ ) considéré dans cette étude.

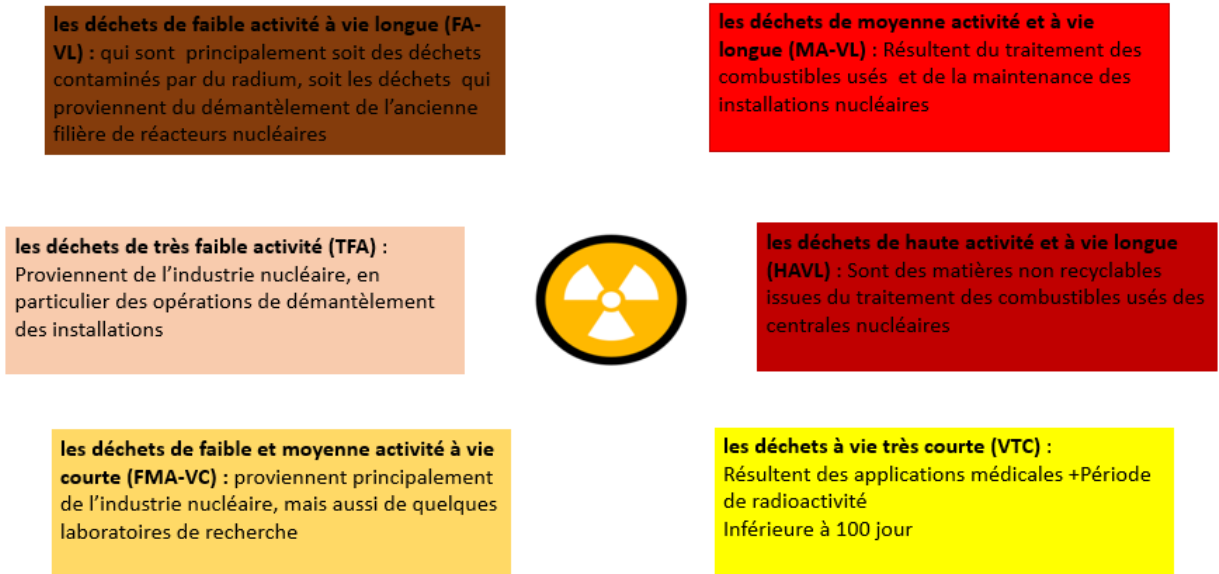
## 1.1 Contexte : stockage profond de déchets radioactifs

En France, comme c'est le cas pour plusieurs autres pays dans le monde (Belgique, Canada, Chine, Etats-Unis, Finlande, Japon, Suède, Suisse, ...), le projet de stockage géologique profond des déchets radioactifs est la solution de référence pour la gestion des déchets radioactifs de Moyenne Activité et à Vie Longue (MAVL) et de Haute Activité (HA), l'Agence Nationale de gestion des Déchets RADIOactifs (ANDRA) est chargée de l'étude de faisabilité du Centre Industriel de Stockage Géologique (CIGEO).

### 1.1.1 Définition et classement des déchets radioactifs

Les déchets radioactifs sont des substances radioactives pour lesquelles aucune utilisation ultérieure n'est prévue ou envisagée. Le classement des déchets radioactifs (figure 1.1) est basé sur la période de désintégration (durée de demi-vie) et sur l'activité des radionucléides qu'ils contiennent.





**Figure 1.1 :** Classement des déchets radioactifs en France, synthétisé à partir du rapport IRSN (2015) [110]

Dans le cadre du plan national de gestion des matières des déchets radioactifs (PNGMDR), des solutions de gestion de ces déchets ont été développées pour chaque catégorie de déchet (figure 1.2) :

Période d'activité	Très courte durée de vie (inférieure à 100 jours)	Courte durée de vie (inférieure à 31 ans)	Longue durée de vie (supérieure à 31 ans)
Très faible activité	Gestion par décroissance radioactive	Stockage dédié en surface. Filières de recyclage (activité < 100 Bq/g).	
Faible activité		Stockage de surface (centre de stockage de l'Aube)	Stockage dédié en subsurface (à l'étude)
Moyenne activité			
Haute activité		Filières à l'étude dans le cadre de l'article 3 de la loi de programme du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs	

**Figure 1.2 :** Solutions de gestion développées dans le cadre du PNGMDR pour les différentes catégories de déchets [65]



Dans le cadre de la présente étude on s'intéresse aux déchets radioactifs de haute activité (HA) et de moyenne activité à vie longue (MAVL) destinés au stockage géologique profond dans le cadre du projet Cigéo en France.

### 1.1.2 Stockage en couche géologique profonde

Le stockage géologique profond repose sur le confinement des déchets radioactifs dans une couche géologique peu perméable (roche hôte) avec des barrières de protection capables de limiter le plus possible la migration des radionucléides vers l'environnement extérieur sur des grandes échelles temporelles (Millions d'années) et spatiales (quelques km).

Le stockage géologique profond est la solution adoptée par plusieurs pays dans le monde. Depuis 1976 la Belgique étudie dans le laboratoire souterrain HADES (Mol, Belgique) la possibilité d'une telle installation dans l'argile de Boom à 230 m de profondeur. De même, la Suisse est en train de mener des études sur la roche argileuse dite à Opalines (Opalinus) dans le laboratoire souterrain de Mont Terri situé à 300 m de profondeur. La Suède dispose d'un laboratoire souterrain à Aspö pour valider les concepts choisis ; le site retenu pour implanter le stockage profond se situe à Forsmark, à environ 500 m de profondeur, dans une roche granitique. La Finlande a débuté en 2004 les travaux de construction d'un laboratoire de recherche, situé dans une roche granitique à 400 m de profondeur sur le site d'Olkiluoto. Le Japon est également en train d'étudier la possibilité d'un site de stockage profond dans une roche cristalline située à une profondeur de 500 m, et une roche argileuse située à 450 m de profondeur. Le Canada est en train d'étudier une formation granitique dans le laboratoire souterrain de Pinawa.

Enfin, en France l'ANDRA étudie la roche argileuse du Callovo-Oxfordien dans le laboratoire souterrain de Bure (MeuseHaute-Marne) situé à 500 m de profondeur. L'IRSN exerce ses propres recherches sur la roche argileuse de Tournemire qui possède des propriétés hydrauliques semblables à celle de Bure.

### 1.1.3 Centre de stockage géologique en France (Cigéo)

Cigéo est le projet en cours d'étude pour accueillir différents types de déchets HA et MAVL en France (figure 1.3). Il s'agit d'une éventuelle installation située à 500 m de profondeur dans une couche d'argile (COx) dont les propriétés physiques sont proches de celles actuellement étudiées dans le laboratoire souterrain de Bure, qui en est proche géographiquement.

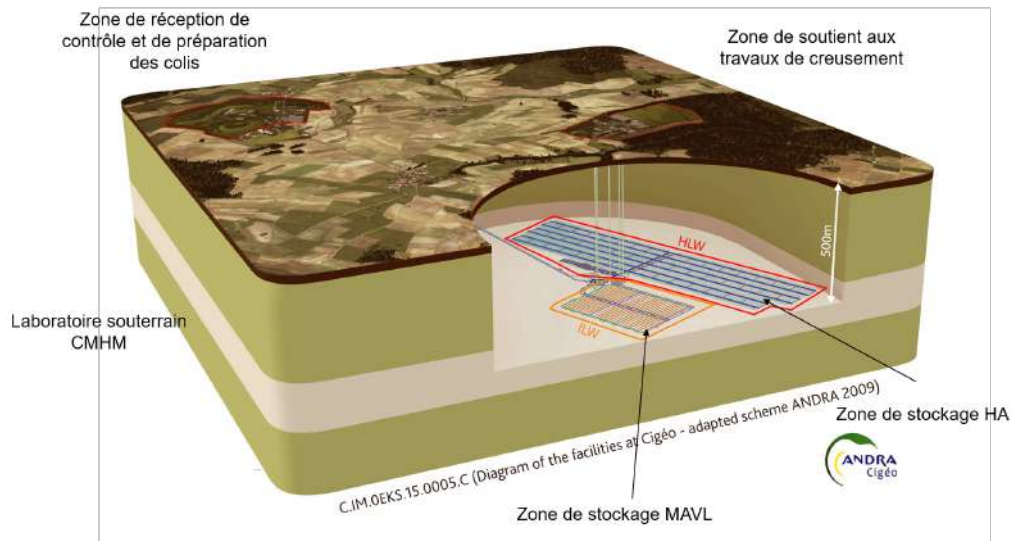


Figure 1.3 : Schéma du centre industriel de stockage géologique en France (Cigéo) [10]

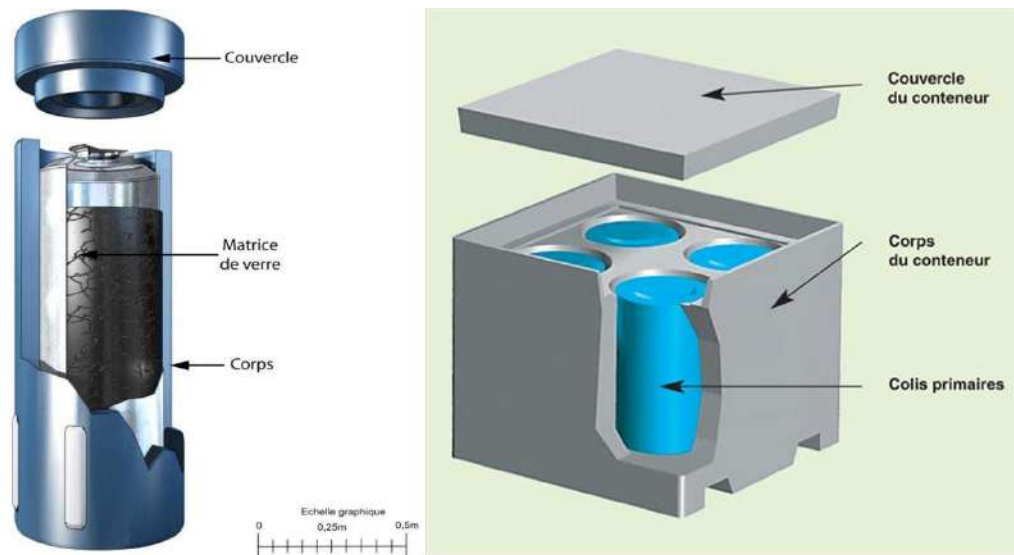
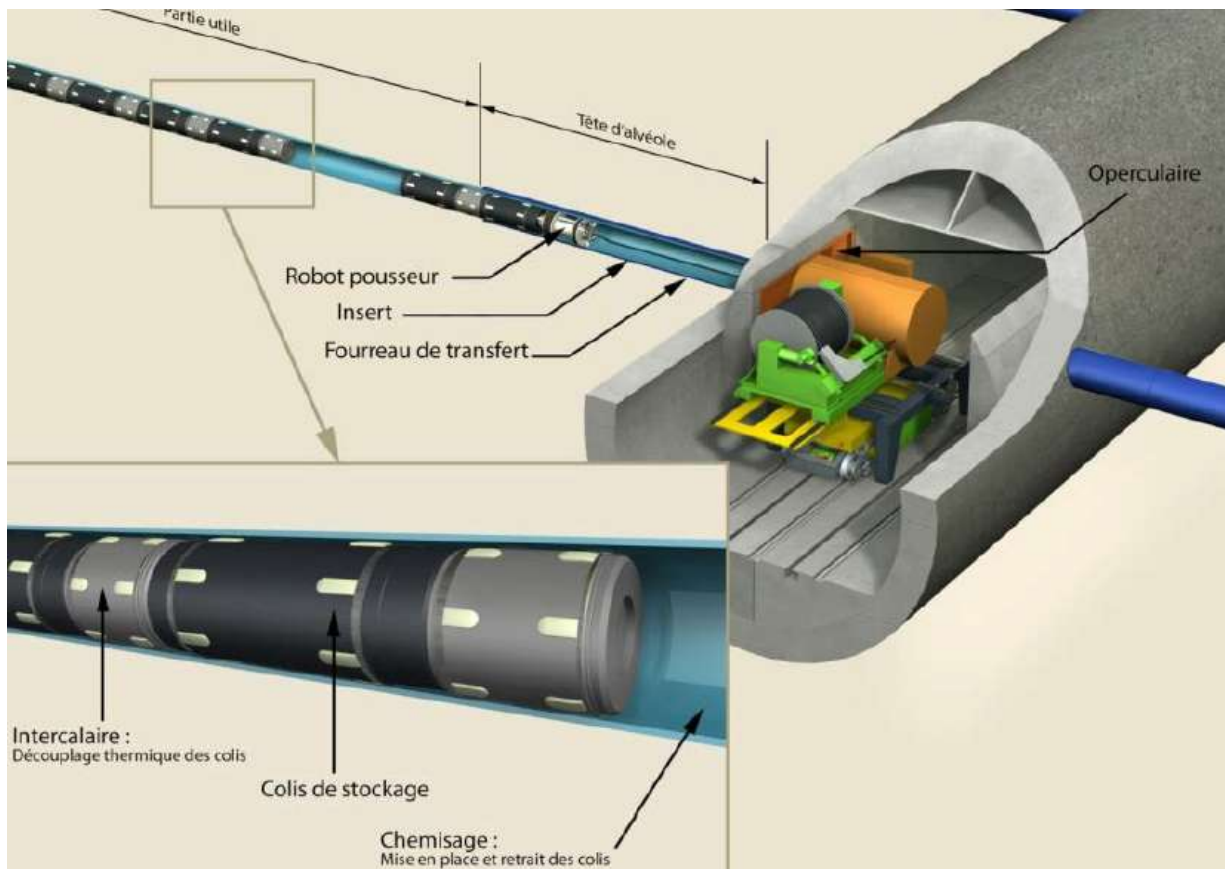


Figure 1.4 : Schéma d'un colis de déchets vitrifiés 'à gauche' et d'un assemblage des conteneurs MAVL (à droite) [10]

Les déchets MAVL sont confinés dans du bitume, où ils sont compactés puis placés dans des fûts en béton ou en acier. À priori, ils seront placés dans un conteneur parallélépipédique en béton armé, qui sera ensuite stocké dans une chambre de stockage au sein des argiles, soutenue par une épaisseur de 25 cm de béton (figure 1.4, à droite). Les déchets HA quant à eux sont incorporés dans une matrice vitrifiée dont la capacité de confinement est particulièrement élevée et durable dans un environnement physico-chimique stable. Le verre est ensuite coulé dans des fûts en inox pour constituer un colis placé dans un conteneur cylindrique individuel en acier non allié (figure 1.4, à gauche). Ces déchets ("colis") sont ensuite placés dans des alvéoles de stockage cylindriques (80

à 150 m de long) creusés dans l'argile du COx, et recouverts par un chemisage en acier (figure 1.5).



**Figure 1.5** : Schéma d'une galerie de la zone de stockage (HA) pour le projet cigéo avec un zoom sur un alvéole HA [10]

### 1.1.4 Les problèmes liés au stockage des déchets radioactifs

Afin d'évaluer la sûreté d'une telle installation, en particulier sa capacité à isoler et contenir les éléments radioactifs, il est nécessaire de déterminer l'évolution temporelle du stockage et de caractériser l'impact des phénomènes physiques occasionnés par la présence des radionucléides et leur interaction avec le milieu environnant dans une telle installation. Parmi les principaux problèmes rencontrés dans un site de stockage profond de déchets radioactifs d'après le rapport d'argile (2005) de l'ANDRA [7], on cite :

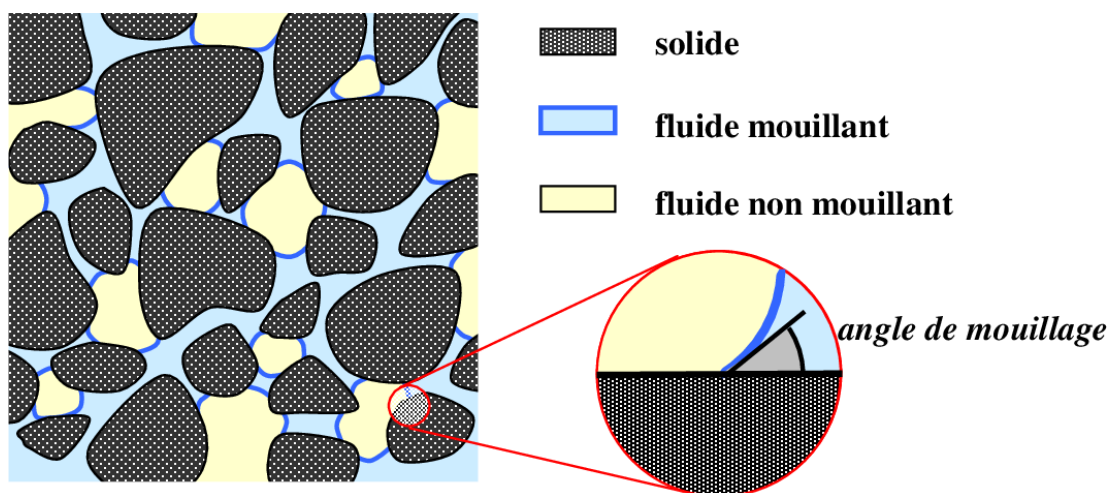
- l'évolution des propriétés hydromécaniques de la roche hôte et des barrières ouvragées (création d'une zone endommagée autour des galeries) ;
- la dégradation physico-chimique des composants du stockage suite à leur contact avec de l'eau ;
- la montée en pression de la phase gazeuse et ses conséquences sur le transfert des radionucléides (création des fissures et des chemins préférentiels) ;
- l'augmentation de la charge thermique due aux propriétés exothermiques des déchets radioactifs.

## 1.2 Propriétés générales d'un milieu poreux

Afin de faciliter la lecture de ce document, et de préserver une cohérence avec les modifications qui seront apportées aux codes de calculs, on adoptera par la suite la notation du manuel guide du code TOUGH2 d'après Pruess et al. (1999) [112].

### 1.2.1 Caractéristiques physiques d'un milieu poreux

Un milieu poreux est un milieu composé d'une structure solide et d'espaces vides appelés pores (figure 1.6). Ces pores peuvent être remplis partiellement ou totalement par du liquide ou du gaz. Les milieux poreux peuvent être consolidés, comme une roche par exemple, ou non consolidés, comme un sable ou un empilement de billes.



**Figure 1.6** : Schéma représentatif d'un milieu poreux biphasique, d'après Daian (2013) [35]

A l'échelle d'un VER (Volume Élémentaire Représentatif), un milieu poreux est caractérisé par des propriétés physiques qui déterminent son comportement vis à vis de transfert des fluides et leur rétention. Parmi ces caractéristiques, on peut citer :

**i. La porosité  $\phi$  :**

$$\phi = \frac{V_v}{V_t} \times 100 = \left(1 - \frac{\rho_d}{\rho_s}\right) \times 100 \quad (\%) \quad (1.1)$$

où  $V_v$  [ $m^3$ ] est le volume du vide dans le milieu poreux de volume total  $V_t$  [ $m^3$ ].  $\rho_d = \frac{m_d}{V_t}$  [ $kg \times m^{-3}$ ] est la masse volumique sèche du milieu et  $\rho_s$  [ $kg \times m^{-3}$ ] est la masse volumique des grains solides.

**ii. La teneur en eau massique  $w$  :**

$$w = \frac{m_w}{m_d} = \frac{m_h - m_d}{m_d} \quad [kg.kg^{-1}] \quad (1.2)$$

où  $m_w$ ,  $m_h$  et  $m_d$  sont respectivement la masse de l'eau dans l'échantillon, la masse de l'échantillon humide et la masse de l'échantillon sec [kg].

La teneur en eau volumique  $\theta_w$  [ $m^3.m^{-3}$ ] peut s'écrire alors en fonction de la teneur en eau massique  $w$  sous forme :

$$\theta_w = \frac{V_w}{V_t} = \frac{\rho_d}{\rho_w} \times w \quad [m^3.m^{-3}] \quad (1.3)$$

$\rho_w$  [ $kg.m^{-3}$ ] est la masse volumique de l'eau ( $\rho_w = 998.2 \text{ kg.m}^{-3}$  à  $T = 20 \text{ }^\circ\text{C}$ ) .

**iii. Degré de saturation en eau :**

Il présente le ratio du volume de la phase eau dans le volume poral du milieu :

$$S_l = \frac{V_l}{V_v} = \frac{\theta_w}{\phi} \quad (1.4)$$

Dans un milieu biphasique la saturation en gaz peut alors s'écrire :

$$S_g = 1 - S_l \quad (1.5)$$

**iv. Perméabilité intrinsèque du milieu  $k_{int}$  :**

C'est une caractéristique du milieu poreux relative au transfert du fluide par advection sous un effet de gradient de pression. Cette perméabilité  $k_{int}$ , en  $m^2$ , intervient dans la loi de Darcy, en même temps que la viscosité dynamique  $\mu$  du fluide. Théoriquement,  $k_{int}$  traduit la capacité du milieu à transmettre le fluide, elle ne dépend pas du type de fluide considéré ni du gradient de pression imposé.

## 1.2.2 Rétention de l'eau liquide

La rétention d'eau dans un milieu poreux caractérise sa capacité à retenir ce liquide. Elle dépend de la texture porale et de la composition en minéraux. Dans le contexte du stockage des déchets radioactifs, cette propriété est très importante puisqu'elle caractérise la capacité de la roche à retenir les radionucléides et limiter leur impact sur l'environnement extérieur à l'installation. Plusieurs mécanismes caractérisent la rétention de l'eau. Dans cette partie on discute la sorption moléculaire et la sorption capillaire ainsi que leur degré de prépondérance.

### i. La sorption moléculaire

Dans un milieu poreux, un pore se remplit ou se vide du liquide selon l'humidité relative du milieu extérieur. À faible humidité relative, l'accumulation des particules liquides sur les parois des pores (figure 1.7) dépend des forces physiques (forces de Van der Waals) et chimiques (liaisons chimiques intermoléculaires).

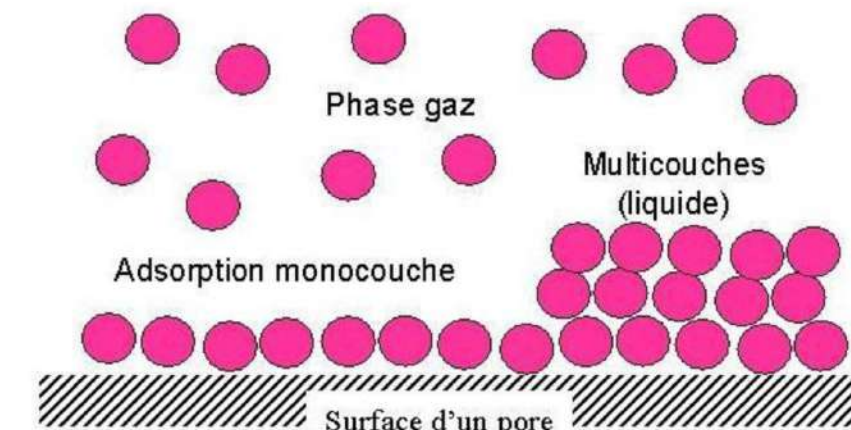
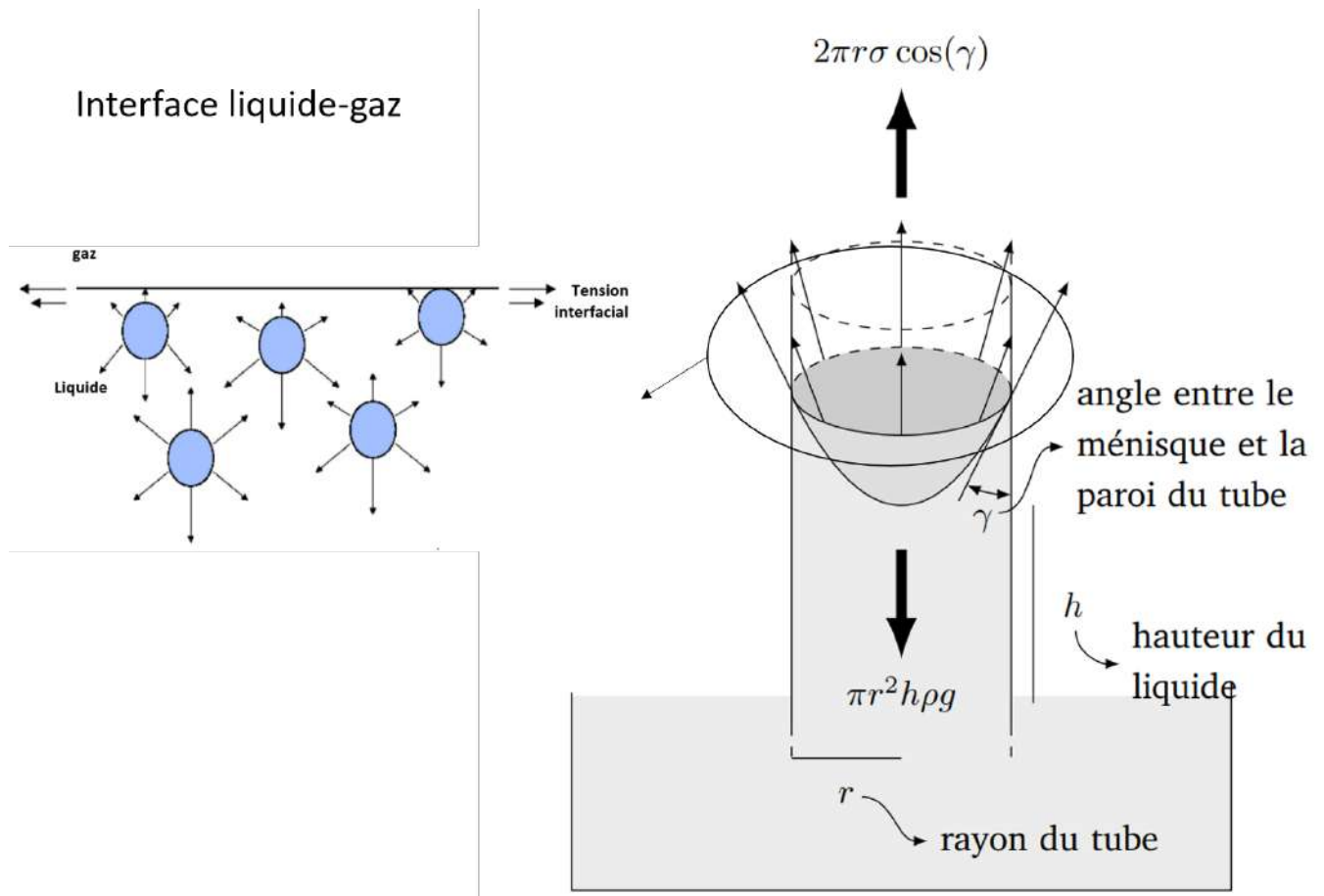


Figure 1.7 : Schéma simplifié illustratif du phénomène d'adsorption d'après Laurette (2004) [76].

L'adsorption de l'eau se fait par répartition successive des molécules d'eau sous forme de couches, jusqu'à diminution de l'attraction des forces de surface.

### ii. La sorption capillaire





**Figure 1.8 :** Schéma des forces intermoléculaires dans le cas d'une interface liquide-gaz (en haut à gauche d'après Ababou (2018) [1]), et phénomène de montée capillaire dans un tube (à droite).

La capillarité résulte des interactions à l'interface liquide-gaz, et des interactions à l'interface liquide-solide (figure 1.8). Une interface se crée entre la phase mouillante et la phase non-mouillante, au sein de laquelle des tensions superficielles ou interfaciales s'exercent. Ces tensions résultent de la différence des forces intermoléculaires qui agissent sur des particules se trouvant soit dans le fluide (liquide ou gaz) soit dans l'interface. L'équilibre se traduit par la loi de Laplace :

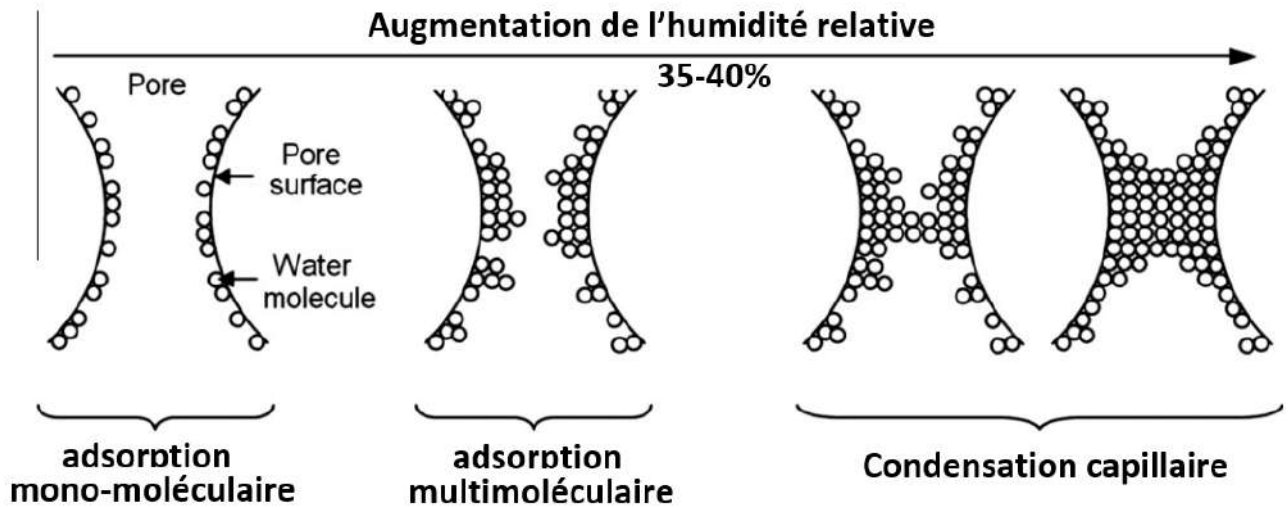
$$P_c = P_g - P_l = \frac{\sigma}{R_c} \quad (1.6)$$

où  $P_c$ ,  $P_g$  et  $P_l$  représentent respectivement la pression capillaire, la pression de la phase gazeuse (phase non-mouillante) et la pression de la phase liquide (phase mouillante) en [Pa].  $R_c$  est le rayon de courbure, et  $\sigma$  est la tension superficielle ( $\sigma_{\text{eau/air}} = 72,75 \times 10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$  à la température  $T = 293,15\text{K}$ ). Pour un ménisque

dans un pore cylindrique de rayon  $r$  et un angle de contact  $\alpha$  (figure 1.8), l'équation (1.6) peut être réécrite sous la forme :

$$P_c = \frac{2\sigma \cos(\gamma)}{r} \quad (1.7)$$

Dans un système biphasique air-eau, suivant l'humidité relative de l'air  $H_R$ , on peut avoir une prépondérance de la sorption par capillarité ou par interactions moléculaires. Selon Liu et al. (2013) [86], l'adsorption se fait différemment selon trois niveaux d'humidité relative  $H_R$  (figure 1.9) :



**Figure 1.9** : Mécanismes d'adsorption suivant le niveau de l'humidité relative dans le cas de condensation de l'eau vapeur, d'après Collet et al. (2011) [31]

- Adsorption mono-moléculaire : à faible niveau d'humidité relative ( $H_R \leq 10\%$ ), les particules d'eau sont adsorbées par l'effet des forces de Van der Waals ;
- Adsorption multimoléculaire : à niveau d'humidité relative de l'ordre de ( $10\% \leq H_R \leq 40\%$ ), l'eau s'adsorbe en couches successives pour former des multicouches d'eau ;
- Condensation capillaire : à niveau d'humidité relative important ( $H_R \geq 40\%$ ), les multicouches se joignent et un ménisque se forme par capillarité.

La quantité de l'eau absorbée est limitée par le niveau de l'humidité relative à l'interface liquide-vapeur d'eau. Cet équilibre entre le liquide et la vapeur d'eau est vérifié pour chaque température et peut être exprimé suivant la loi de Kelvin qui donne la valeur du rayon de pore dans lequel l'eau se condense pour chaque valeur de l'humidité relative. La loi d'équilibre de Kelvin s'exprime par l'équation suivante :

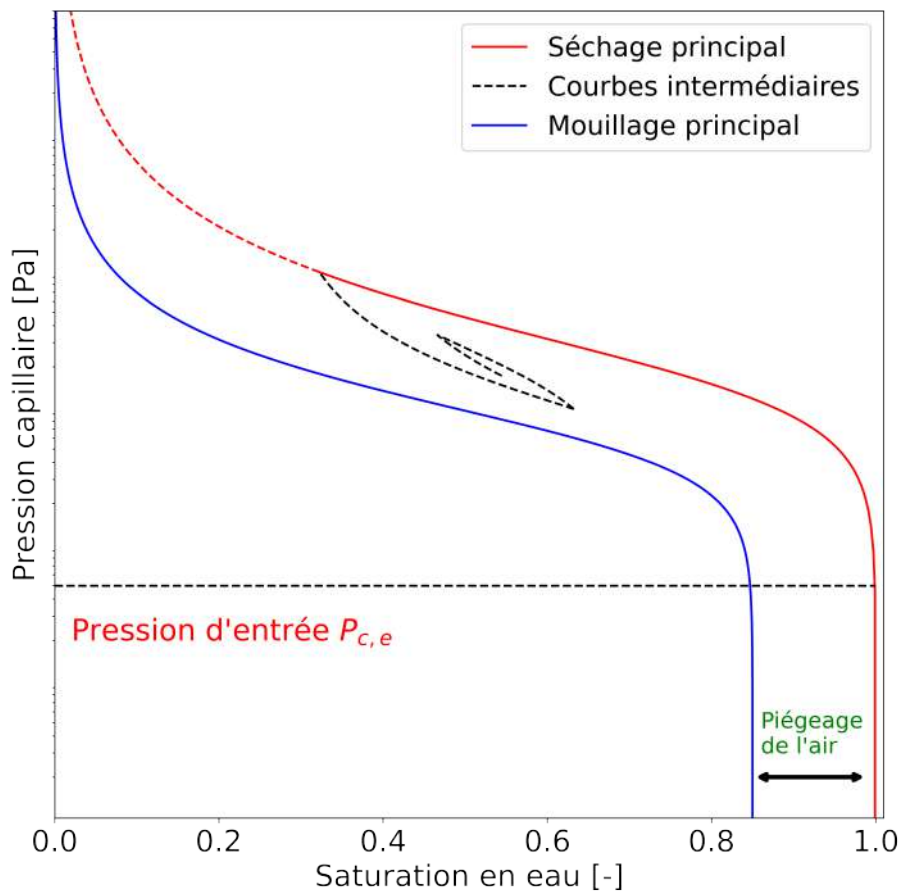


$$H_R = \frac{P_v}{P_{sat}} = \exp\left(\frac{-P_c}{\rho_w RT}\right) \quad (1.8)$$

Dans cette équation (1.8),  $H_R$  est l'humidité relative de l'air,  $P_{sat}$  est la pression de vapeur saturante [Pa],  $P_c$  est la pression capillaire [Pa],  $\rho_w$  est la masse volumique de la phase liquide [ $\text{kg}/\text{m}^3$ ],  $R$  est la constante des gaz parfaits [ $\text{J}/\text{kg}\cdot\text{K}$ ], et  $T$  est la température absolue en Kelvin [ $\text{K}$ ].

### 1.2.3 Courbe de rétention d'eau

La courbe de rétention d'eau capillaire est parmi les données nécessaires à la description des écoulements biphasiques en milieu poreux. Elle conditionne la distribution des fluides (liquide et gaz) au sein du milieu poreux en reliant la teneur en ces fluides à la pression capillaire. Sous l'hypothèse d'un milieu indéformable, la courbe de rétention est équivalente à la courbe saturation – pression capillaire. On peut exprimer celle-ci soit comme une relation  $S(P_c)$  soit comme une relation  $P_c(S)$ .



**Figure 1.10** : Mise en évidence de phénomènes physiques (pression d'entrée de gaz, hystérésis, et piégeage du gaz) dans la courbe de rétention d'eau.

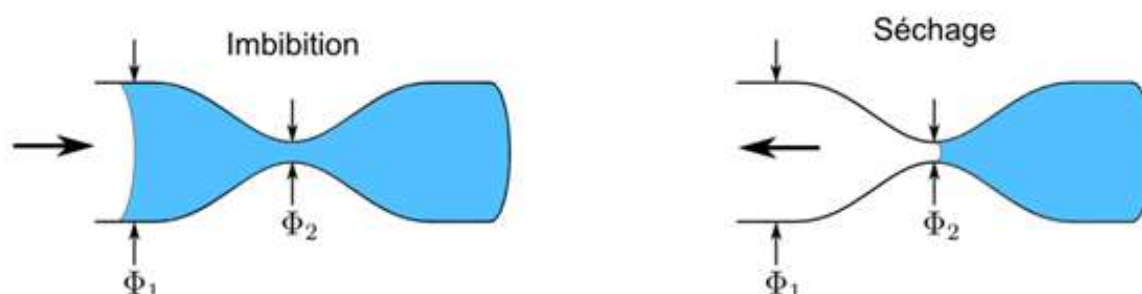
La figure (1.10) illustre cette courbe sous la forme  $P_c(S)$ , et montre aussi l'effet de la pression d'entrée, ainsi que l'effet de l'hystérésis. L'hystérésis se manifeste ici par une dépendance de la courbe de rétention par rapport à la cinétique de saturation : humectation (wetting) ou dessèchement (drying), sachant que le cas du dessèchement est aussi interprété comme un "drainage". En humectation, la saturation augmente ; en dessèchement ou drainage, la saturation diminue.

Ces courbes peuvent présenter deux caractéristiques très importantes qui traduisent les mécanismes de rétention et de transfert en milieu poreux :

- **La pression d'entrée du gaz** : D'après l'équation (1.7), pour chaque distribution de tailles des pores dans l'intervalle  $[r_{min}, r_{max}]$ , il existe une pression capillaire seuil à partir de laquelle le gaz peut pénétrer un milieu saturé. Cette pression seuil est notée la pression capillaire seuil d'entrée de gaz  $P_{c,e}$ . La pression d'entrée peut être quantifiée à partir des courbes de rétention (figure 1.10). Elle correspond à la pression capillaire nécessaire pour passer de l'état saturé à l'état non saturé.
- **L'hystérésis** : Ce phénomène représente la dépendance de la relation  $S_w(P_c)$  du chemin hydrique parcouru pour parvenir à ce point (figure 1.10). Selon Hillel et al. (2012) [60] l'hystérésis des courbes de rétention est généralement attribuée aux causes suivantes :

i. La géométrie réelle des pores :

Au-delà de la représentation simplifiée du milieu poreux par des pores parallèles de rayons différents, l'hypothèse associée au phénomène de l'hystérésis consiste à représenter le milieu poreux par des pores très irréguliers et interconnectés par de petits orifices, cette hypothèse est dite de **bouteilles d'encre** (*i=Ink bottle*) illustré dans la figure (1.11).



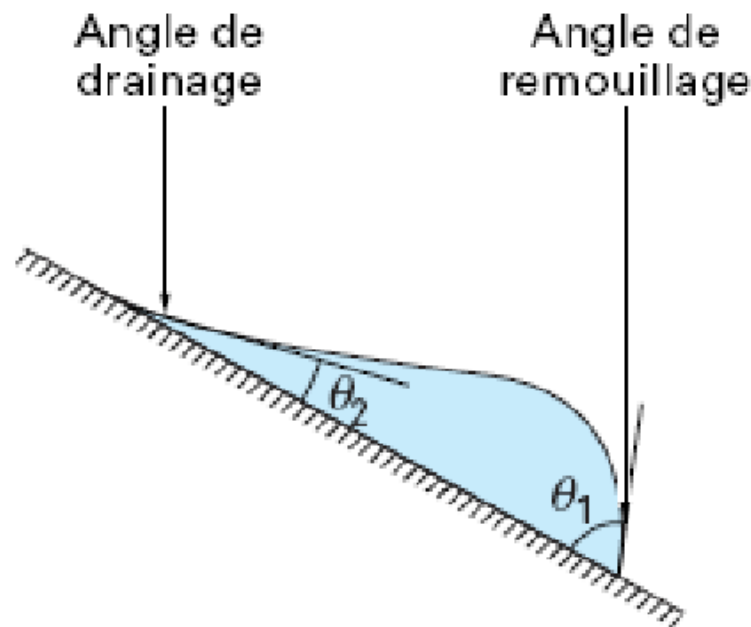
**Figure 1.11** : Illustration schématique de l'effet « bouteille d'encre » d'après M'jahad (2012) [93], à gauche illustration de l'imbibition et à droite illustration du séchage (ou drainage).

En effet, en imbibition, le transfert de l'eau est régi par le corps du pore (*pore body*) de rayon  $\phi_1$ , alors qu'en drainage le transfert de l'eau est gouverné par la gorge (*pore neck or throat*) de pore de rayon  $\phi_2$ .

ii. L'angle de contact :

L'angle de contact entre l'eau et la phase solide est plus grand pendant l'imbibition de l'eau que pendant le drainage (figure (1.12)), ce qui rend la pression pendant le drainage plus grande que pendant le mouillage à la même saturation en eau, ce qui renforce l'effet bouteille d'encre (*ink bottle effect*). Cette hystérésis est due à la rugosité de la surface solide.

L'angle de contact et le rayon du ménisque sont plus grands en imbibition qu'en drainage (figure 1.12). Cette hystérésis est due à la rugosité de la surface solide, et à la présence d'impuretés adsorbées.



**Figure 1.12** : Mise en évidence de l'angle de contact en mouillage et en drainage, d'après Maison (2011) [89].

iii. L'encapsulation (piégeage) de l'air ou du gaz lors de l'imbibition

Le phénomène de piégeage de gaz caractérise la non continuité des bulles d'air piégées par l'eau. En effet, lors de l'imbibition l'eau tend à remplir les grands pores avant de mouiller les petits pores. Cette hiérarchisation d'imbibition peut donner lieu à un blocage de passage de l'air entre les pores, ce qui réduit la saturation en eau totale de sa valeur théorique de 1 à la fin d'imbibition. Chen et al. (2002) [27], Doughty (2007) [42], and Cihan et al. (2017) [30] ont montré l'importance de la prise en compte de ce phénomène dans la

modélisation numérique pour la bonne représentation des mécanismes de transfert multiphasique.

L'hystérésis de sorption et de désorption est un phénomène présent dans plusieurs applications de transfert multiphasique tel que le stockage du  $CO_2$ , la production des hydrocarbures, et le stockage géologique des déchets radioactifs. En effet, dans un site de stockage des déchets radioactifs et lors de la phase d'excavation des tunnels, la ventilation des tunnels va engendrer un séchage de la roche au voisinage de l'installation. Après la fermeture du site une resaturation de la roche voisine de l'installation par l'eau du site est attendue après une période de re-saturation estimée à des dizaines d'années.

## 1.2.4 Mécanismes de transfert de gaz dans les milieux poreux initialement saturés

Dans un milieu poreux, le transfert d'un fluide peut être dû à l'advection, à la diffusion ou à la dispersion. La dominance d'un mécanisme de transfert est reliée au gradient de pression imposé. La vitesse d'écoulement est proportionnelle au gradient de pression par la loi de Darcy.

### 1.2.4.1 Transfert par advection

Le transfert d'un fluide (liquide ou gaz) est advectif, lorsque le transfert est induit par un gradient de pression. Ce mécanisme de transfert dépend de la viscosité de fluide ( $\mu_{\alpha}$ ) et la perméabilité intrinsèque du milieu poreux  $k_{int}$ . La vitesse d'un écoulement visqueux  $V_{\alpha}$  du fluide  $\alpha$  s'exprime suivant la loi de Darcy (1856) dans un milieu saturé en phase  $\alpha$  et en régime permanent :

$$\vec{V}_{\alpha} = - \frac{K_{int}}{\mu_{\alpha}} (\vec{\nabla} P_{\alpha} + \rho_{\alpha} g \vec{\nabla} z) \quad (1.9)$$

Théoriquement la perméabilité intrinsèque du milieu est un paramètre qui ne dépend pas du fluide écoulé. Cependant, dans le cas des barrières ouvragées, plusieurs auteurs ([92], [17], [102],[36]) ont souligné que le rapport de différence entre la perméabilité à l'eau et au gaz peut dépasser les 3 ordres de grandeur ( $\times 10^3$ ). Cette différence est faiblement due à l'effet de glissement de la phase gazeuse comme reporté dans Boulin et al. (2008) [17] et Wang et al. (2016) [137], qui peut être modélisé par l'équation de Klinkenberg [70]. Mais principalement due aux interactions chimiques entre l'eau et la matrice poreuse. En effet, la saturation en eau de l'argile du  $CO_x$  riche en smectite conduit à un gonflement de l'échantillon, ce qui peut colmater les fissures ou les

macrospores, ce qui peut conduire à des perméabilités plus faibles que celles mesurées à l'état sec. Le tableau (1.1) présente une synthèse des différents travaux effectués dans la littérature sur les mesures de la perméabilité à l'eau et au gaz de l'argile du COx (intact et fracturé) ainsi que leurs intervalles de variation pour différents types de fluides.

Auteur	État du matériau	le fluide utilisé	intervalle de variation
Escoffie 2002 [45] (Andra 2005 [7])	Intact	Eau synthétique	$[5.10^{-21}, 5.10^{-20}]$
Davy 2007 [36]	Fracturé	Eau pure	$[10^{-21}, 10^{-18}]$
Davy 2007 [36]	Fracturé	Argon	$10^{-14}$
Harrington 2012 [55]	In-situ EDZ	Azote	$6.5810^{-18}$
M'jahad 2012[93]	Intact	Eau du site	$[10^{-21}, 10^{-20}]$
M'jahad 2012[93]	Intact	Argon	$[10^{-20}, 10^{-19}]$
M'jahad 2012[93]	Fracturé	Argon	$[5.10^{-19}, 5.10^{-16}]$
Song 2014 [123]	Bloqué ou libre	Argon	$[1.10^{-22}, 1.10^{-16}]$
Song 2014 [123]	Intact	Eau pure	$[1.10^{-21}, 1.10^{-20}]$
Yuan 2017 [143]	Intact	Helium	$[1.10^{-18}, 1.10^{-17}]$
Mayer 2017 [50]	In-situ	Azote	$[5.10^{-19}, 1.10^{-21}]$
de La Vaissière 2019 [74]	In-situ	Azote	$[5.10^{-21}, 5.10^{-20}]$
Duan et al 2021 [43]	Intact	Eau pure	$[10^{-21}, 10^{-20}]$
Duan et al 2021 [43]	Intact	Argon	$[10^{-17}, 10^{-16}]$

**Tableau 1.1 :** Synthèse des mesures expérimentales (au laboratoire et in-situ) de la perméabilité intrinsèque de l'argile du COx.

### 1.2.4.2 Courbes de perméabilités relatives

En milieu biphasique liquide-gaz, les perméabilités effectives au liquide et au gaz dépendent du degré d'occupation de la porosité par chacune de ces deux phases. La perméabilité relative pour la phase  $\alpha$ , notée  $k_{r,\alpha}(S_\alpha)$  est définie comme le rapport de la perméabilité effective  $k_{e,\alpha}(S_\alpha)$  non saturée à la perméabilité effective à saturation complète pour la phase considérée. Ainsi, la perméabilité relative varie entre 0 et 1 :

$$k_{r,\alpha}(S_\alpha) = \frac{k_{e,\alpha}(S_\alpha)}{k_{e,\alpha}(S_\alpha = 1)} \quad \alpha \in \{l, g\} \quad (1.10)$$

En régime d'écoulement biphasique, le flux advectif est décrit par la loi de Darcy généralisée (notée aussi loi de Darcy-Muskat) en introduisant la perméabilité relative  $k_{r,\alpha}$  sous la forme suivante :

$$\vec{F}_\alpha = - \frac{k_{int} k_{r,\alpha}(S_\alpha)}{\mu_\alpha} (\vec{\nabla} P_\alpha + \rho_\alpha g \vec{\nabla} z) \quad (1.11)$$

Avec  $\vec{F}_\alpha$ ,  $\mu_\alpha$ , et  $P_\alpha$  représentent respectivement, le flux advectif, la viscosité dynamique, et la pression du fluide de la phase  $\alpha$ .

### 1.2.4.3 Transfert par diffusion

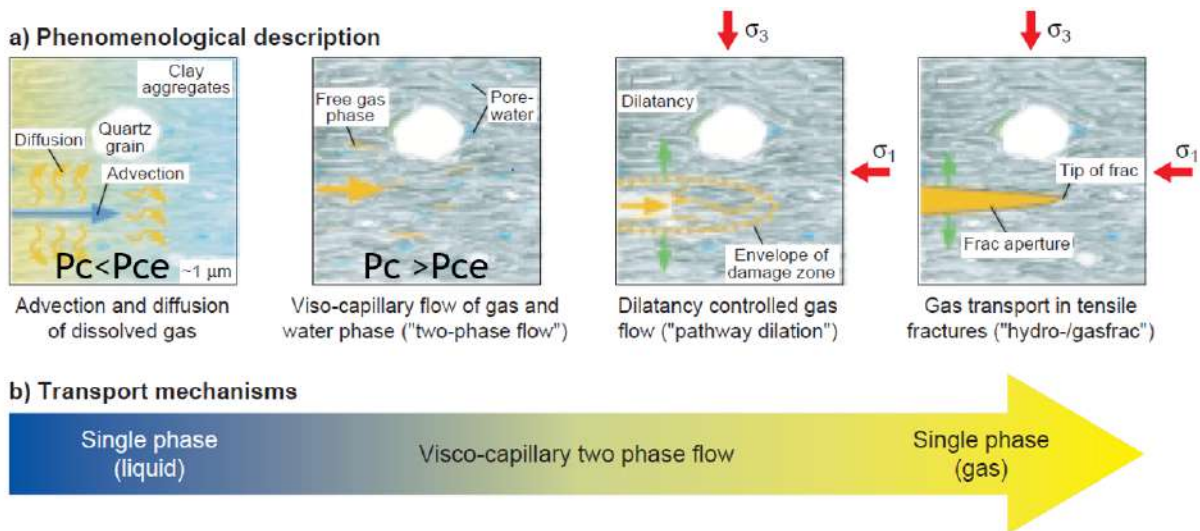
La diffusion est le transfert de matière sous l'effet d'un gradient de concentration moléculaire. la quantité de flux transportée par diffusion  $F_{\alpha,diff}^\kappa$  de composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$  est généralement décrite par la loi de Fick :

$$F_{\alpha,diff}^\kappa = -\phi \tau_0 \tau_\alpha \rho_\alpha d_\alpha^\kappa \nabla X_\alpha^\kappa \quad \kappa \in 1, \dots, N_k \quad (1.12a)$$

avec  $\phi$  est la porosité du milieu poreux, le produit  $\tau_0 \tau_\alpha$  représente la tortuosité de la phase  $\alpha$ , il inclut un coefficient qui dépend du milieu poreux  $\tau_0$  et un coefficient  $\tau_\alpha$  dépend de la saturation de la phase  $\alpha$ ;  $d_\alpha^\kappa [m^2/s]$  est le coefficient de diffusion du composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$  en milieu libre.

### 1.2.4.4 Transfert de gaz en milieu poreux initialement saturé

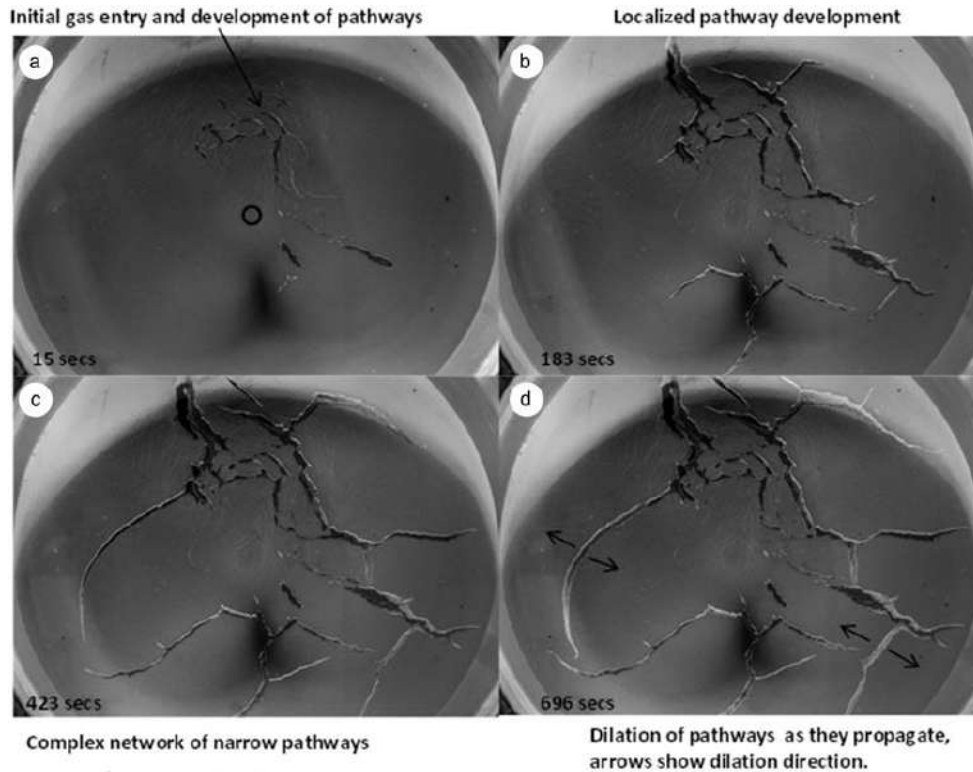
Dans le contexte du stockage des déchets radioactifs, la roche hôte est initialement totalement saturée. La corrosion anaérobie des déchets et la radiolyse de l'eau génère des molécules gazeuses, il s'agit essentiellement de l'hydrogène ( $H_2$ ). Marshal et al. (2005) [90] ont distingué trois mécanismes de migration de gaz dans un milieu poreux saturé (figure 1.13) :



**Figure 1.13** : Analyse et classification des mécanismes de transfert dans l'argile d'Opalinus : (a) Description phénoménologique basée sur le modèle microstructure. (b) Mécanismes de transport (Modifiée de [90]).

- i. Diffusion-advection du gaz dissout : Ce mécanisme de transfert est prépondérant lorsque la pression de gaz est inférieure à la pression seuil d'entrée de gaz, le gaz se dissout et le transport dans le milieu aqueux s'effectue par diffusion. Durant ce mécanisme de transfert le coefficient de diffusion du composant gazeux dans le liquide est le paramètre qui détermine le transport de la matière. Si la cinétique de production de gaz est plus rapide que le mécanisme de diffusion une montée en pression de la phase gazeuse peut avoir lieu ;
- ii. Visco-capillarité : lorsque la pression de la phase gazeuse dépasse la pression seuil d'entrée du gaz, un écoulement biphasique aura lieu. Cette pression seuil dépend de la pression de liquide et de la structure porale du milieu. Durant ce mécanisme, la perméabilité à l'eau  $k_l$  et la pression d'entrée  $P_{c,e}$  jouent un rôle important dans cette phase de transfert de gaz ;
- iii. Dilatation des chemins préférentiels et création de fracture : lorsque la pression de gaz continue à augmenter, les pores commencent à se dilater et des chemins préférentiels peuvent se former pour permettre un transfert continu du gaz. Ce mécanisme de transfert est observé expérimentalement par Angeli et al. (2009) [11], Autio et al. (2006) [12], Cuss et al. (2014) [34], Wesall et al. (2015) [140] sur des matériaux riches en argile. Le figure 1.14 explique le développement des chemins préférentiels au fur et à mesure de l'injection de gaz.





**Figure 1.14 :** Évolution temporelle de la dilatation des pores lors d'un test d'injection de gaz d'après Wiseall et al. (2015) [140]. (a) Début de la création des chemins préférentiels localisés. (b) Début de développement des chemins préférentiels localisés. (c) la ramification des chemins préférentiels à partir des ouvertures plus étroites. (d) Des chemins préférentiels plus larges se développent.

### 1.2.5 Modèle de transfert biphasique bi-composant dans un milieu poreux

Le modèle de transfert considéré dans cette étude, est un modèle biphasique bicomposant ( $H_2/H_2O$ ). L'advection est représentée par la loi de Darcy généralisée (Eq.1.12a). La diffusion est représentée par la loi de Fick (Eq.1.12a). Dans cette sous-section, les relations de fermeture pour la résolution de l'équation de conservation de masse seront présentées :

- **Description des deux phases**

Le mélange fluide au sein du stockage est composé de deux phases  $\alpha \in \{l, g\}$  : La phase mouillante notée  $l$  est la phase non-mouillante notée  $g$ , et de deux composants  $\kappa \in \{H_2O, H_2\}$ . Dans ce mélange, on note :

- $\rho_\alpha^\kappa$  la densité du composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$  ;



- $X_{\alpha}^{\kappa} = \frac{\rho_{\alpha}^{\kappa}}{\rho_{\alpha}}$  la fraction massique de l'élément  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$  ;
- $S_{\alpha}$  la saturation en phase  $\alpha \in \{l, g\}$  avec :

$$S_l + S_g = 1 \quad (1.13a)$$

$$\rho_g = \rho_g^{H_2O} + \rho_g^{H_2} \quad \text{et} \quad \rho_l = \rho_l^{H_2O} + \rho_l^{H_2} \quad (1.13b)$$

$$\sum_{\kappa \in \{H_2O, H_2\}} X_{\alpha}^{\kappa} = 1 \quad (1.13c)$$

### • Loi de Dalton

Dans un mélange de gaz parfait la pression du gaz est égale à la somme des pressions partielles de chaque constituant :

$$P_g = \sum_{\kappa \in \{H_2O, H_2\}} P_g^{\kappa} \quad (1.14)$$

### • Loi de Henry

La quantité de gaz dissout dans un liquide est reliée à la pression partielle qu'exerce ce gaz sur le liquide par la loi de Henry, qui peut s'écrire sous la forme :

$$P_g^{*H_2} = H(T) \times X_l^{H_2} \quad (1.15)$$

Dans cette équation :

- $H(T)$  [Pa] est la constante de Henry, qui est supposée ne dépendre que de la température. Dymitrowska et al. (2015) [44] ont étudié l'impact de la température et de la pression capillaire sur la constante de Henry. Ils ont montré que la prise en compte d'une pression capillaire dans la formulation de la constante de Henry permet d'augmenter de l'ordre de 10% de quantité de gaz dissout dans le liquide pour les valeurs de  $P_c$  au delà de 100 MPa ;
- $P_g^{*H_2}$  représente la pression partielle du constituant  $\kappa$  dans la phase gazeuse ;
- $X_l^{\kappa}$  représente la fraction molaire dissoute du constituant  $\kappa$  dans la phase liquide.

*Remarque.* Noter que, même en l'absence de phase gazeuse, la présence dans l'eau d'une fraction de gaz dissout  $X_{\alpha}^{\kappa}$  peut s'interpréter par la loi de Henry comme une pression partielle de gaz  $P_g^{\kappa} = H_c(T)X_{\alpha}^{\kappa}$ .

### • Équation de Kelvin

L'équilibre entre le liquide et le gaz a été exprimé précédemment par la loi de Henry comme une fonction qui ne dépend que de la température. Dans un milieu poreux un autre équilibre s'impose, c'est l'équilibre de la pression de vapeur (*vapour-pressure lowering*) exprimée dans l'équation (1.8).

- **Equations d'écoulement et de transport**

Elles sont décrites par les équations de la conservation de masse, dans un volume arbitraire  $V_n$  délimité par une surface fermée  $\Gamma_n$  qui s'écrivent sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \int_{V_n} M^\kappa dV_n = \int_{\Gamma_n} \vec{F}^\kappa \cdot \vec{n} d\Gamma_n + \int_{V_n} q^\kappa dV_n \quad (1.16)$$

$$\kappa \in \{H_2O, H_2\}$$

Avec :

- $M_\alpha^\kappa$  : terme de l'accumulation de la masse du composant  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$ , elle peut s'écrire sous la forme :

$$M^\kappa = \phi \sum_{\alpha} S_{\alpha} \rho_{\alpha} X_{\alpha}^{\kappa} \quad \kappa \in 1, \dots, N_k \quad (1.17)$$

- $q_\alpha^\kappa$  : terme source de l'élément  $\kappa$  dans la phase  $\alpha$ , ce terme prend en compte le transfert de masse entre les constituants  $\kappa$  de chaque phase  $\alpha$ .

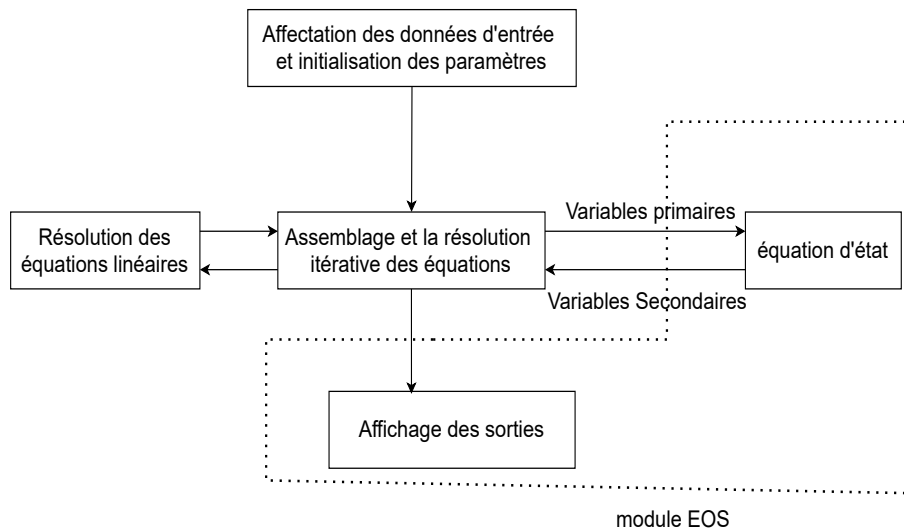
D'après le théorème de Gauss, l'équation (1.16) peut s'écrire en une équation à dérivées partielles, sous la forme :

$$\frac{\partial M^\kappa}{\partial t} + \text{div} \vec{F}^\kappa = q^\kappa \quad \kappa \in \{H_2O, H_2\} \quad (1.18)$$

- **Le Code TOUGH2**

Dans cette étude, on va utiliser principalement le code de calcul TOUGH2 (ou iTOUGH2), ainsi que d'autres codes utilisés spécifiquement pour la validation des modifications effectuées dans le code TOUGH2 (tests de validation et de benchmark). TOUGH2 est un code qui résout par la méthode des volumes finis les équations des écoulements non isothermes de fluides à plusieurs composants dans des milieux poreux ou fracturés à une, deux ou trois dimensions [111]. Les principales applications pour lesquelles TOUGH2 est conçu sont l'ingénierie des réservoirs géothermiques, le stockage des déchets nucléaires, l'évaluation environnementale et l'assainissement, ainsi que l'hydrologie des zones non saturées et saturées.

L'architecture de TOUGH2 repose sur un système modulaire (figure 1.15). Cette présente étude repose sur l'utilisation du module EOS3 (*Equation Of State 3*) pour les composants air et eau. Les modifications apportées au module EOS3 sont appliquées au module EOS5 afin de réaliser des calculs à l'échelle d'une alvéole (chapitre 5) et d'expertise par l'IRSN sur les grandes échelles (spatiales et temporelles). Le module EOS10 a été utilisé dans le chapitre (4), afin de réaliser des simulations d'injection d'un fluide non-mouillant spécifique (Soltrol 220).



**Figure 1.15** : Schématisation de l'architecture du code TOUGH2 et mise en évidence du principe modulaire. Traduite à partir de Pruess et al. (2011) [111].

Plusieurs bibliothèques Python ont été utilisées et des scripts ont été rédigés pour permettre de générer les fichiers d'entrée de TOUGH2 et la visualisation sous format vtk. Les deux bibliothèques Python (PyTOUGH, Croucher (2011) [33]) et (toughio, Luu (2020)[88]) ont été utilisées dans cette étude.

## 1.3 Description des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées

Le stockage profond des déchets radioactifs repose sur le principe des multi-barrières afin de limiter le transport des radionucléides. Ces barrières ouvragées sont choisies à la base de leurs capacités à retenir des radionucléides dans l'environnement, elles se caractérisent par de faibles perméabilités à l'eau et au gaz, et une forte capacité de rétention d'eau. Dans cette partie, nous présentons une synthèse sur les mesures expérimentales des propriétés hydrauliques des différents matériaux de barrières ouvragées et de la roche hôte. Ces mesures sont de grande importance pour comparer la performance des modèles de propriétés hydrauliques et pour réaliser des études de sensibilité et d'éva-

luation des incertitudes dans la modélisation des transferts de gaz au voisinage du site de stockage des déchets radioactifs.

### 1.3.1 Argile du COx (roche hôte de Cigéo)

L'argile du Callovo-Oxfordien (COx) est une roche sédimentaire qui date du Jurassique, elle est présente sur au moins 130 m d'épaisseur à une profondeur située entre -422 et -554m (figure 1.16).

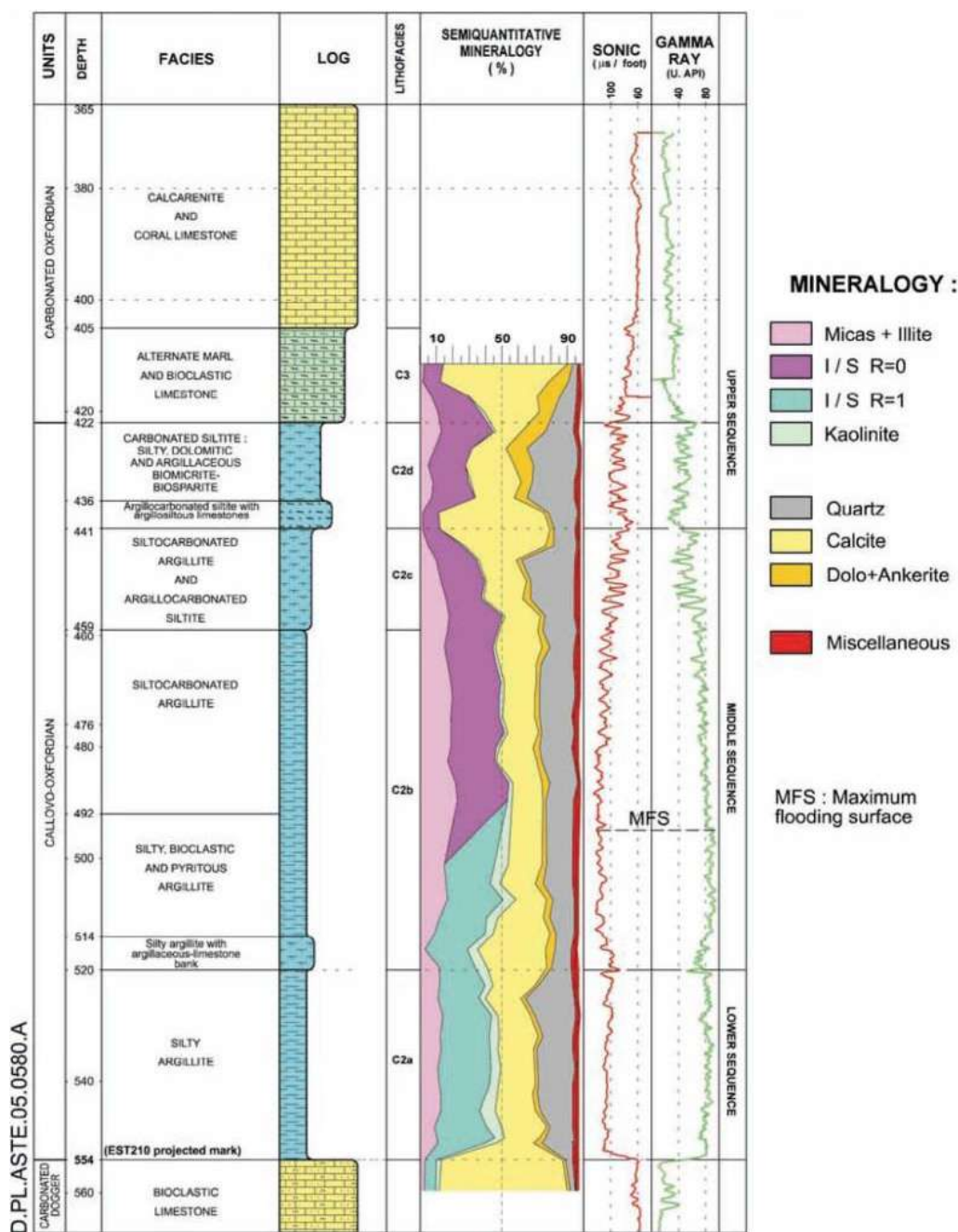


Figure 1.16 : Lithologie et minéralogie de l'argile du COx d'après Yven et al. (2007) [144].

L'argile du COx est considérée par l'ANDRA la roche hôte potentielle pour le stockage des déchets radioactifs. Elle est caractérisée par une forte capacité à ralentir le relargage des radionucléides dans l'environnement soit par advection (faible perméabilité) ou par la diffusion (faible coefficient de diffusion). La roche d'argile du COx s'étale sur une profondeur importante, se traduit par une composition minéralogique très variée. Par conséquent, les propriétés hydriques et mécaniques connaissent une variabilité très importante.

La figure (1.16) montre que l'argile du Callovo-Oxfordien présente une composition assez complexe qui varie le long de la couche géologique. On peut observer un gradient progressif des teneurs en argiles en profondeur et un gradient inverse pour les carbonates. La concentration maximale en minéraux argileux varie de 25% dans la partie supérieure à 60% au milieu de la formation. Les carbonates varient de 80% maximum dans la partie supérieure jusqu'à 15% et la pyrite est majoritairement présente au milieu de la couche avec une teneur maximale proche de 2%. La présence de carbonates permet de donner une bonne résistance mécanique à la roche face à la construction d'installations souterraines.

Composant	Teneur volumique moyenne
Argile	20% à 50% [24]
Quartz et Feldspath	10% à 40% [24]
Carbonate	22% à 37% [24]
Matières organiques	2% à 3% [93]

**Tableau 1.2 :** Intervalles de variation de la composition minéralogique de l'argile du COx.

Le Tableau (1.2) présente l'estimation des proportions des minéraux présents au sein de la couche du Callovo-Oxfordien. Ces données sont obtenues à partir des résultats de diffraction des rayons X et d'analyses chimiques telles que la calcimétrie, l'analyse élémentaire et la mesure de la capacité d'échange cationique (CEC) (Gaucher et al. (2004) [51]).

La porosité par injection de mercure, la résonance magnétique, l'adsorption de gaz, la densitométrie à l'hélium, et l'imagerie directe sont des méthodes utilisées par plusieurs auteurs (M'jahad (2012)[93], Robinet et al. (2008) [116], et Boulin et al. (2008) [18]) afin de caractériser le réseau poreux de l'argile du COx, pour une compréhension de la capacité de scellement, de rétention d'eau, et de migration de gaz. Le tableau (1.3) résume les principales informations retenues de ces études.

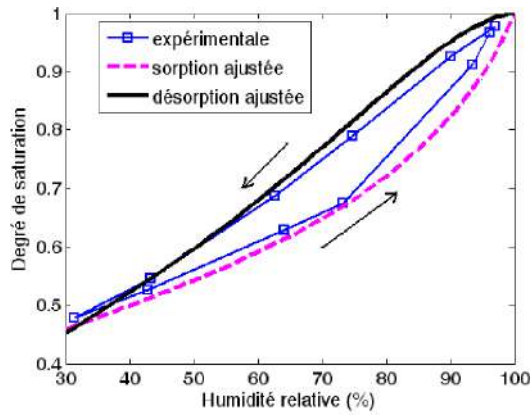
Auteur	Propriétés porales
Boulin (2008) [18]	Diamètre des pores allant de 2 nm à 100 nm, avec un pic de 20 nm en désorption. Porosité à l'eau : $\phi_{eau} \in [10.55\%, 13.65\%]$ Porosité au gaz : $\phi_{calculée} \in [16.48\%, 19.02\%]$
M'jahad (2012) [93])	Diamètres de pores allant de 2 nm à 500 nm, avec trois pics (13 nm, 106 nm en adsorption ; 6 nm en désorption). Porosité à l'eau : $\phi_{eau} \in [10.55\%, 13.65\%]$ Porosité au gaz : $\phi_{calculée} \in [16.48\%, 19.02\%]$
Song (2014) [123]	Diamètre de pores allant de 10 nm à 300 nm. Porosité au gaz : $\phi_{gaz} \in [19\%, 25\%]$ Porosité à l'eau : $\phi_{eau} \in [14\%, 19\%]$ Porosité par imagerie : $\phi_{FIB/MEB} \in [10\%, 25\%]$
YUAN (2017) [143])	Porosité à l'eau : $\phi_{gaz} \in [14.5\%, 16\%]$ Porosité au gaz : $\phi_{eau} \in [15.2\%, 16.5\%]$

**Tableau 1.3** : Synthèse des propriétés porales de l'argile du COx à partir de plusieurs travaux.

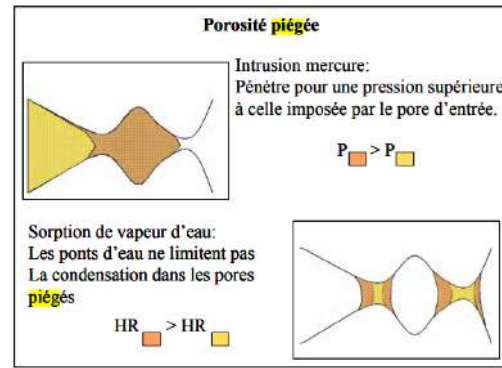
Les propriétés porales de l'argile du COx dépendent de la composition en minéraux, et au fluide utilisé. Yuan (2017) [143] et Song (2014) [123] ont observé une différence entre la porosité au gaz et la porosité à l'eau, qui peut être due à la difficulté d'obtenir une saturation à l'eau à 100% d'humidité relative. Zhang (2010) [145] a montré également, que l'hydratation de l'argile du COx à 100% d'humidité relative se poursuit sur une longue durée. Cela peut être expliqué par l'augmentation de l'espace disponible à l'eau à cause de la présence de smectite (M'jahad (2012) [93]).

Plusieurs auteurs ont travaillé sur la caractérisation des courbes de rétention des barrières ouvragées et sur la mise en évidence des propriétés de rétention de l'eau. Pham et al. (2006) [103] ont mené des mesures expérimentales sur les isothermes de sorption-désorption de l'argile de COx (figure 1.17a). Boulin, P. (2008) [17] a étudié aussi l'hystérésis sur les argiles de COx, il a mis en évidence le phénomène de piégeage de l'air à travers l'injection et l'extrusion de mercure. Il a constaté que le piégeage de l'air dans l'argile du COx est dû à l'existence de gros pores appelés « pores bouteilles » connectés à des petits pores (1.17b).





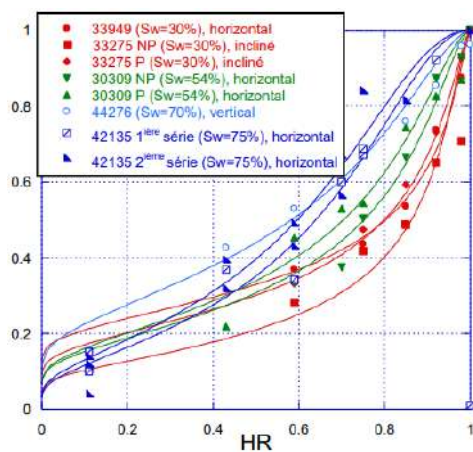
(a)



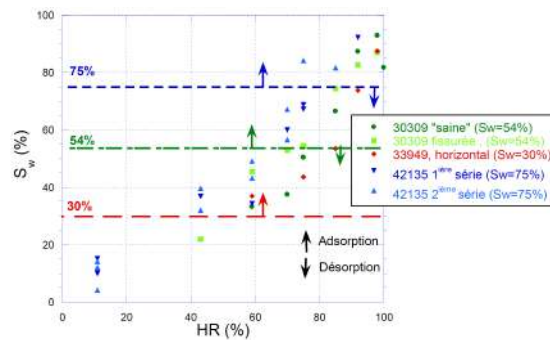
(b)

**Figure 1.17 :** Mise en évidence du phénomène d’hystérésis. (a) Courbe de rétention de l’argile du COx par Pham (2006) [103]. (b) Schématisation du phénomène de piégeage de gaz par Boulin, P. (2008) [17].

M’jahad [93] a étudié l’impact de la saturation initiale, du temps de séchage, et de l’effet de l’endommagement mécanique sur les courbes de rétention de l’argile du COx, comme illustré dans les figures (1.18a) et (1.18b)). Elle a montré que les courbes de rétention de l’argile du COx sont très sensibles à l’état initial de l’échantillon, et cela est dû au phénomène de l’hystérésis. Ses mesures expérimentales montrent que l’endommagement de l’argile du COx réduit sa capacité de rétention de l’eau. Les travaux de M’jahad (2012) [93] fournissent une caractérisation des courbes de rétention et de perméabilités à l’eau et au gaz de différents échantillons sains et fissurés. Cette caractérisation peut être généralisée dans la description de la roche saine et de la zone endommagée (EDZ).



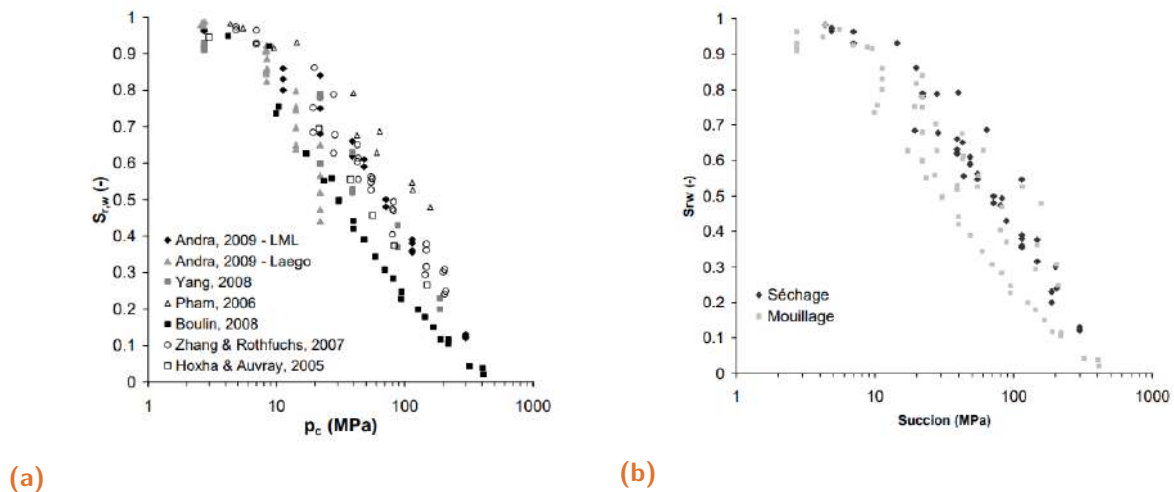
(a)



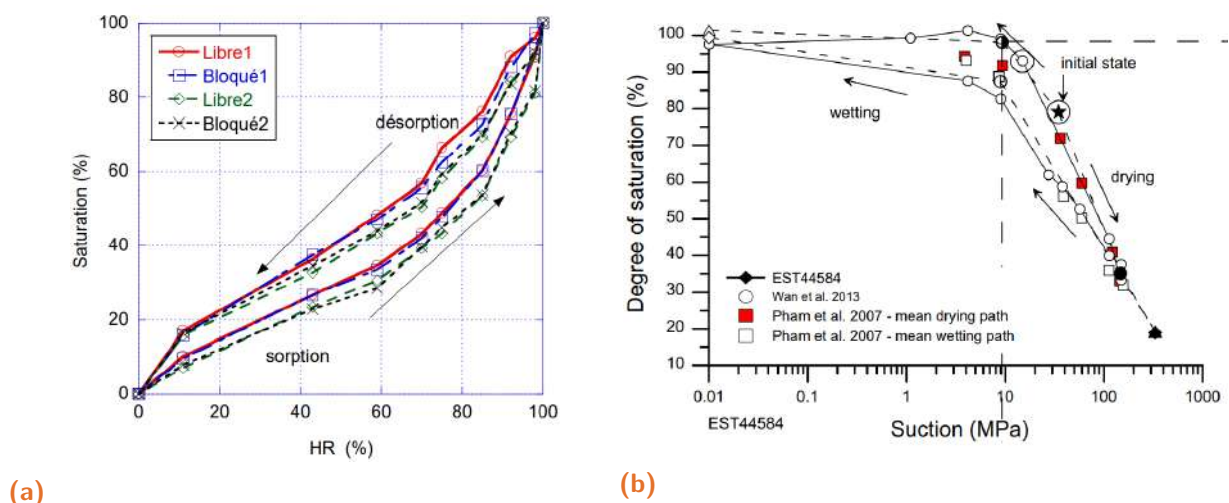
(b)

**Figure 1.18 :** Isothermes de sorption et de désorption de l’argile du COx, d’après M’jahad (2012) [93]. (a) Effet de la saturation initiale sur l’argile de COx. (b) Effet de la fissuration sur l’argile de COx.

Gérard (2011) [52] a effectué une synthèse des données mesurées sur l'argile du COx à partir des travaux de plusieurs auteurs (figure 1.19). Il a mis en évidence de l'hystérésis dans ces mesures expérimentales. Il faut noter que les deux chemins de séchage et de drainage ne reflètent pas un chemin hydrique principal, mais à partir d'une saturation donnée chaque auteur a suivi un chemin de mouillage ou de séchage, ce qui peut poser des difficultés sur l'exploitation de ces données pour caractériser les paramètres d'entrée des modèles pour la modélisation numérique de l'hystérésis. Toutefois, l'ampleur des phénomènes est largement observée.



**Figure 1.19 :** Données expérimentales de courbes de rétention de l'argile du COx synthétisées par Gérard (2011) [52]. (a) Courbes de rétention issues des différentes études. (b) Mise en évidence de l'hystérésis.

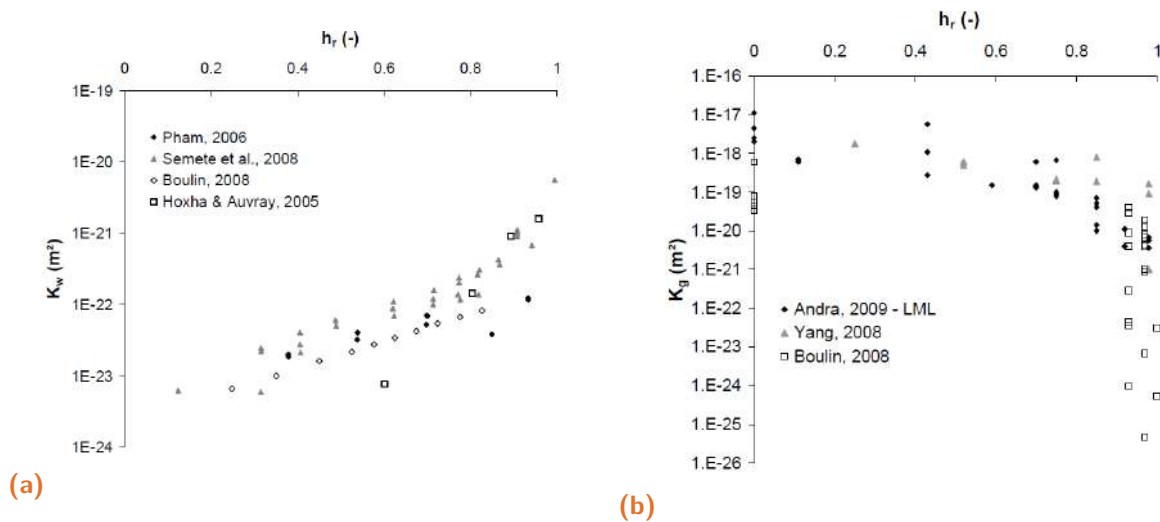


**Figure 1.20 :** Données expérimentales de l'hystérésis des courbes de rétention de l'argile du COx. (a) Hystérésis des courbes de rétention sous différentes conditions (échantillon bloqué ou libre) d'après Song (2014) [123]. (b) Mise en évidence de l'hystérésis dans les mesures de Meunacer et al. (2014) [91] comparées avec celles de Wan et al. (2013) [136] et Pham et al. (2007) [104].



Des études plus récentes sur l'hystérésis ont été menées par Song (2014) [123], Wang et al. (2013) [136], Meunacer et al. (2014) [91] et Yuan (2017) [142], qui ont confirmé expérimentalement l'importance du phénomène de l'hystérésis sur les courbes de rétention de l'argile du COx (1.20). Les mesures de l'hystérésis ont été effectuées sous différentes conditions (état sec, état saturé, échantillon bloqué, échantillon libre). Ces récentes études ont fourni des données exploitables pour la préparation des données d'entrée pour la modélisation numérique de l'hystérésis.

Plusieurs auteurs ont travaillé sur la caractérisation de la perméabilité à l'eau et au gaz des matériaux de barrières ouvragées. Pour la perméabilité 'intrinsèque' (mesurée à l'eau et au gaz), le tableau (1.1) présente les différentes valeurs obtenues par plusieurs auteurs. Gérard (2011) [52] a réalisé une étude de synthèse des mesures de la perméabilité à l'eau et au gaz sur l'argile du COx comme présenté dans la figure (1.21). Plus récemment Yuan (2017) [142] a étudié la perméabilité au gaz pour différentes valeurs de l'humidité relative et sous différentes pressions de confinement. Autres auteurs ont travaillé sur la caractérisation de la perméabilité en régime non saturé. Toutefois, on a fait le choix ici de présenter les valeurs qui ont été représentées en fonction de la pression capillaire afin de mieux caractériser les échantillons et exhiber une pression d'entrée non nulle dans les données de perméabilités et celles des courbes de rétentions.



**Figure 1.21 :** Données expérimentales du COx. (a) Perméabilité à l'eau en fonction de l'humidité relative. (b) Perméabilité au gaz en fonction de l'humidité relative d'après Gérard (2008) [52].

## Conclusion

Les figures (1.22, 1.23, 1.24 1.25) présentent une synthèse des données expérimentales collectées de la littérature au delà des travaux de Gérard (2011) [52] pour les courbes de rétention, la perméabilité à l'eau, et la perméabilité au gaz pour l'argile du

COx. On constate que les données expérimentales présentent une grande dispersion qui peut aller jusqu'à un ordre de grandeur en terme de pression capillaire. Cette dispersion est due aux différents protocoles expérimentaux considérés par les auteurs et l'état de l'échantillon (sain ou fissuré). Elle peut être aussi expliquée par le phénomène d'hystérésis mis en évidence dans la figure (1.22). Bien que nous disposions d'une grande base de données des courbes de rétention de l'argile du COx, il est très difficile d'exploiter ces données avec une haute précision. En effet, la plupart des chemins hydriques ne représentent pas un chemin principal de mouillage ou de séchage, mais une courbe intermédiaire, réalisée à partir d'un état de saturation donné.

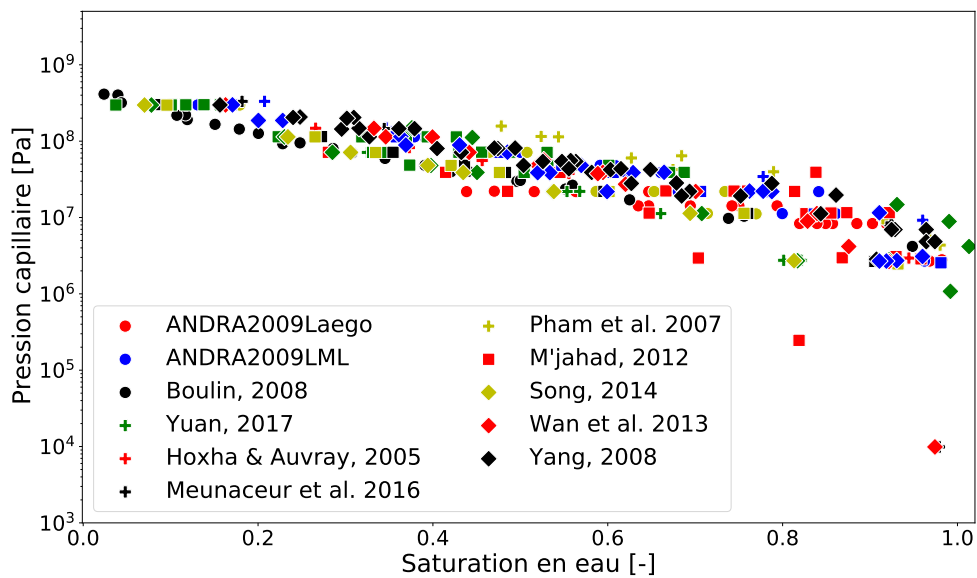


Figure 1.22 : Synthèse des données expérimentales de courbes de rétention de l'argile du COx.

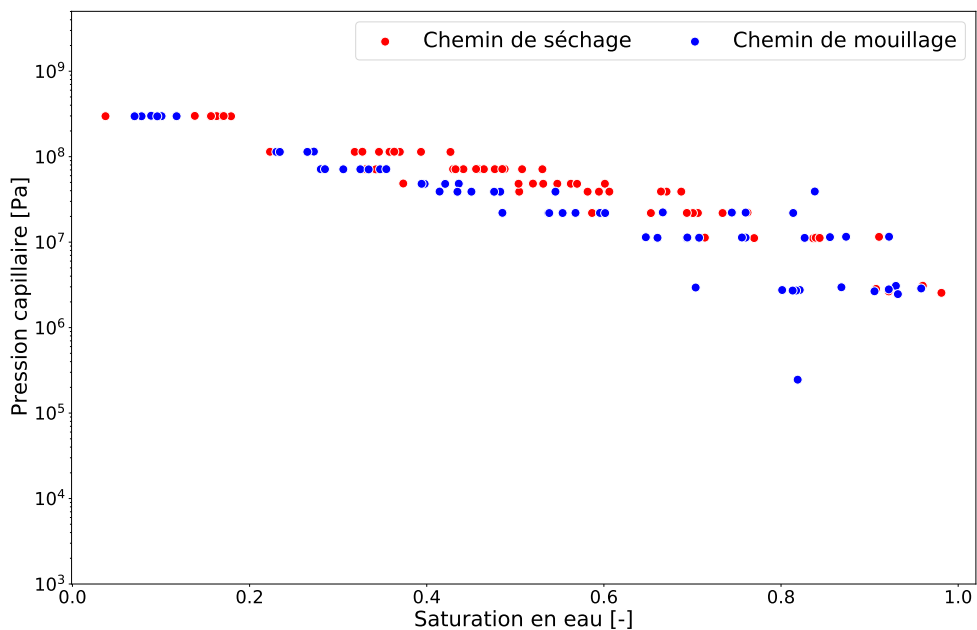


Figure 1.23 : Mise en évidence de l'hystérésis dans les courbes de rétention de l'argile du COx.

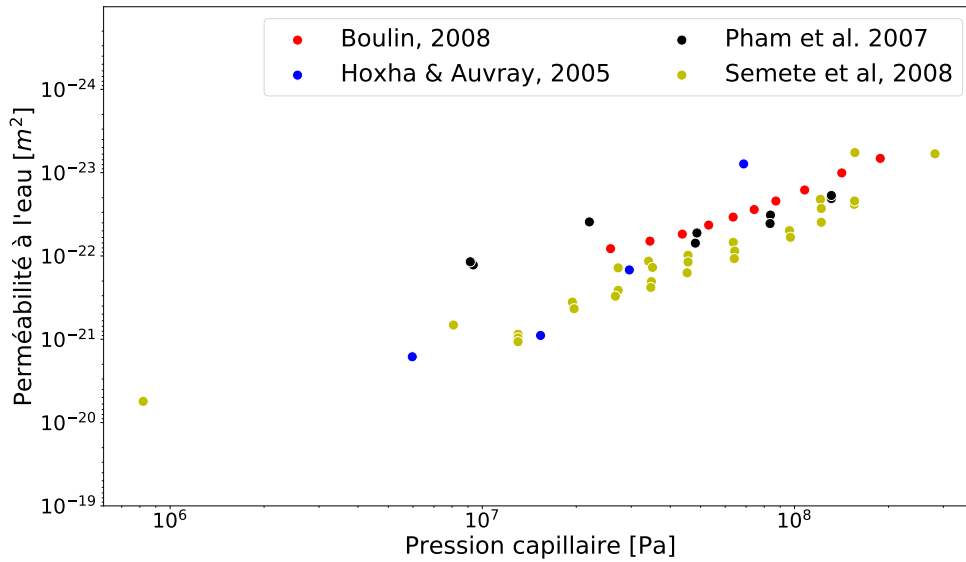


Figure 1.24 : Synthèse des données mesurées de la perméabilité de l'eau en fonction de la pression capillaire  $k_w(P_c)$ .

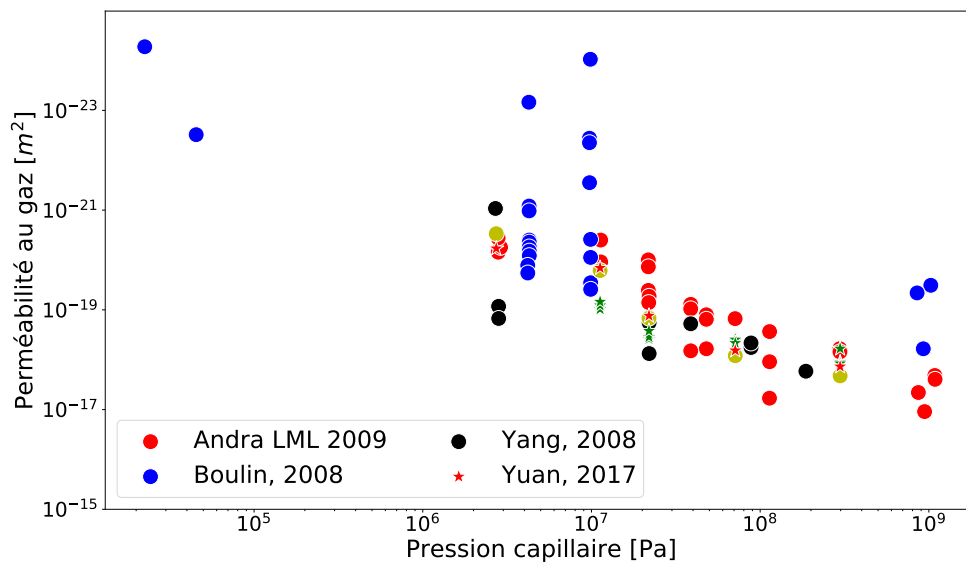
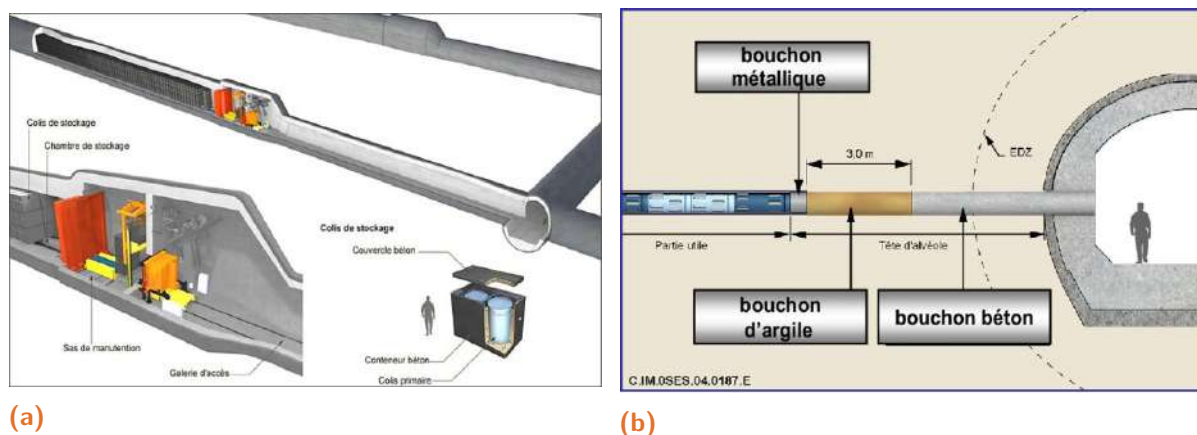


Figure 1.25 : Synthèse des données mesurées de la perméabilité au gaz en fonction de la pression capillaire  $k_g(P_c)$ .

### 1.3.2 Bétons de l'ANDRA (CEM I, CEM V)

Plusieurs matériaux à base de béton sont prévus par l'ANDRA pour le projet de stockage des déchets radioactifs à cause de leurs fortes capacités de rétention d'eau, leurs faibles perméabilités, et leurs hautes performances mécaniques. Le béton CEM I sera utilisé pour le soutènement et le revêtement des galeries et des alvéoles MAVL (figure 1.26a), et le béton CEM V sera utilisé pour les conteneurs de stockage MAVL. Pour les

déchets HA, un béton dit bas-pH est prévu pour le confinement mécanique du bouchon d'alvéole HA (figure 1.26b).



**Figure 1.26 :** Utilisation du béton dans le projet Cigéo (a) les alvéoles en béton contenant les colis de stockage de déchets MAVL, d'après ANDRA (2015) [10]. (b) Concept de stockage des déchets HA, d'après Libert et al. (2011) [83].

Ces matériaux cimentaires seront les premières barrières ouvragées pour limiter le transfert des radionucléides. Ils connaîtront plusieurs cycles de désaturation et de resaturation. En effet, une désorption sous une humidité relative donnée lors de l'utilisation de la ventilation pendant l'exploitation de l'ouvrage, puis une resaturation par l'eau de site provenant des argiles du COx durant la phase post-fermeture du stockage.

La durabilité des matières cimentaires est fortement conditionnée par leur capacité de transfert de l'eau et de gaz. Plusieurs auteurs ont travaillé sur la caractérisation hydraulique des bétons. Le tableau (1.4) présente une synthèse des mesures de perméabilités à l'eau et au gaz et de la porosité des deux bétons CEM I et CEM V dans les études de M'jahad (2012) [93], Liu (2011) [85], et Chen (2011) [28].

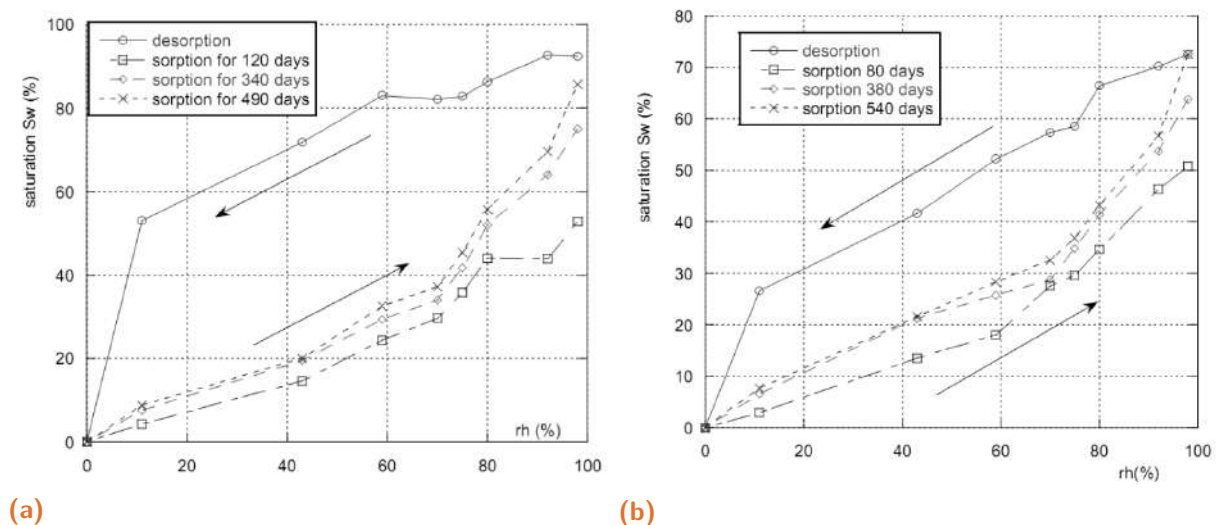
	CEM I	CEM V
Porosité	9.1%-11.6% [28] 7.59% +0.37 [93]	7.5%-8.9% [28] 10.8%-12.4% [85] 12.08% ±0.49%[93]
Perméabilité à l'eau	$2.2 \times 10^{-21} \pm 49\%$ [85]	$5.1 \times 10^{-21} \pm 59\%$ [85]
Perméabilité au gaz	$4.31 \times 10^{-18}$ (sain)[93] $6.03 \times 10^{-18} - 5.4 \times 10^{-18}$ (fissuré) [93]	$5.39 \times 10^{-18}$ (sain)[93] $6.44 \times 10^{-18} - 3.8 \times 10^{-17}$ (fissuré) [93]

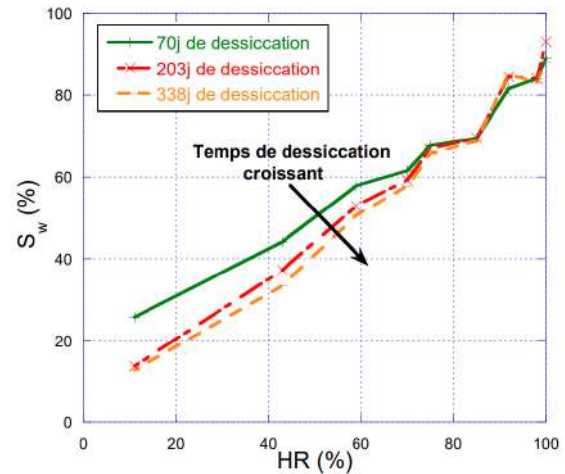
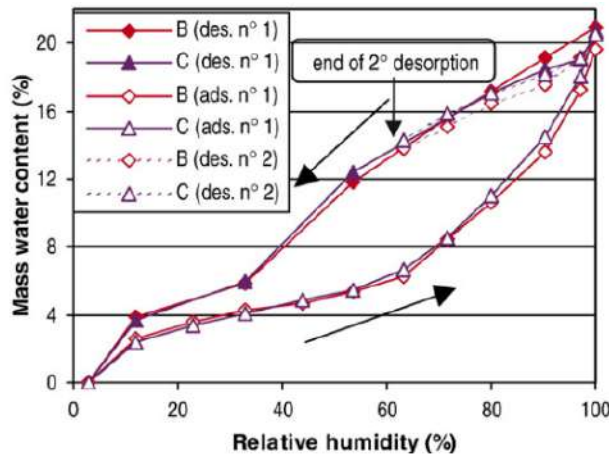
**Tableau 1.4 :** Synthèse des intervalles de variation de la porosité, la perméabilité à l'eau, et la perméabilité au gaz pour les bétons de type CEM I et CEM V.

Les courbes de rétention du béton ont été également caractérisées lors de ces études. Parmi les conclusions obtenues sur les propriétés de rétention de l'eau, on peut citer :

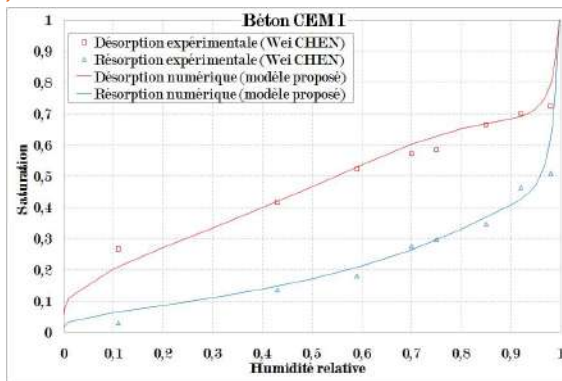
- Une importante hystérésis dans les courbes de rétention des bétons CEM I et CEM V, et que le temps de dessiccation a un impact significatif sur l'amplitude de cet hystérésis. Comme la cinétique de production de gaz et la resaturation des barrières ouvragées sont très lentes, on a choisi les données avec le temps de dessiccation le plus long ;
- la saturation totale des bétons à humidité relative  $H_R = 100\%$  est loin de la valeur théorique de 1.0. Cela est dû à la quantité d'air piégée lors du mélange et de compactage. Malgré que le matériau soit en équilibre avec le milieu extérieur à  $H_R = 100\%$ , l'humidité relative à l'intérieur de certains pores est inférieure à 100%. Ce vide rempli d'air peut être saturé en eau s'il y a suffisamment de temps pour l'évacuation de l'air par diffusion ;
- Une grande dépendance des propriétés de rétention d'eau avec la température. En effet, les bétons seront en contact avec les alvéoles qui génèrent des flux thermiques à cause de réactions exothermiques attendues dans les colis.

La figure (1.27) présente une synthèse des résultats de mesures des propriétés de rétention en eau des bétons (CEM I et CEM V) :



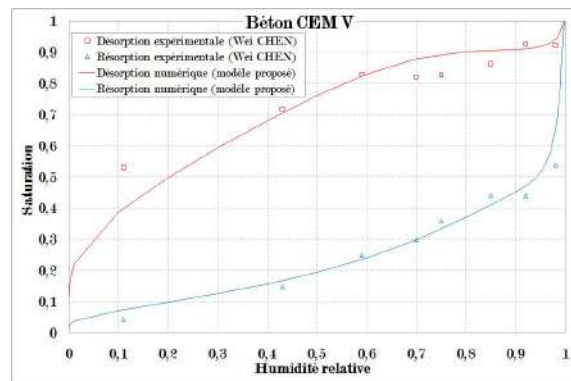


(c)



(e)

(d)



(f)

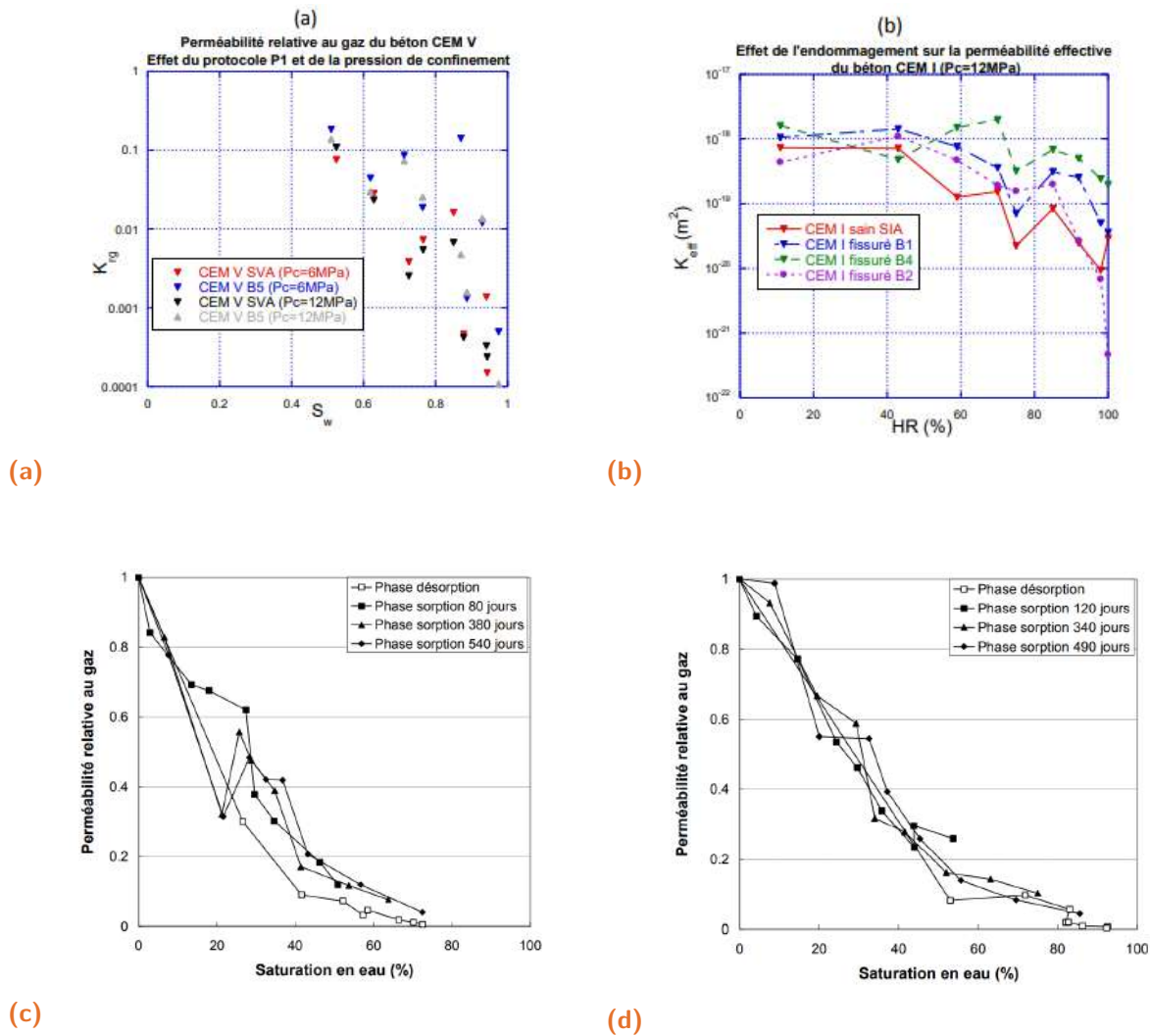
**Figure 1.27 :** Isothermes de sorption et de désorption du béton (a) et (b) Effet de temps de dessiccation sur les bétons CEM V et CEM I respectivement, d'après Chen et al. (2011) [29] (c) Mise en évidence de l'hysteresis sur CEM I, d'après Chen (2011) [28]. (d) Effet du temps de dessiccation sur CEM V, d'après M'jahad (2012) [92]. (e) et (f) Mise en évidence de l'hysteresis dans les bétons CEM I et CEM V, respectivement, et ajustement par le modèle de double porosité réalisé par Liu (2011) [85].

Liu (2011) [85] a réussi à avoir un bon ajustement des courbes de rétention des bétons (CEM I, CEM V) à l'aide d'un modèle capillaire à double porosité (figures 1.27.e et 1.27.f). Toutefois, cette utilisation du modèle de double porosité par Liu (2011) [85] est un peu douteuse, elle néglige la prise en compte du piégeage de l'air dans le milieu poreux. En effet, un modèle à double porosité considère une saturation totale égale à 1 pour une humidité relative  $H_R = 100\%$ , ce qui n'est pas expérimentalement le cas. Pour cela, un modèle qui prend en compte le piégeage de l'air sera adapté pour l'ajustement de ces courbes de rétention.

Suivant le modèle de Lenhard et al. (1991) [80], l'existence d'une quantité d'air piégée dans les bétons (CEM I, CEM V) induit une hystérésis dans les perméabilités à l'eau et au gaz. Chen (2011) [28] a mis en évidence cet hystérésis de la perméabilité relative au gaz à travers sa mesure en phase de désorption et de sorption (figures (1.28c)



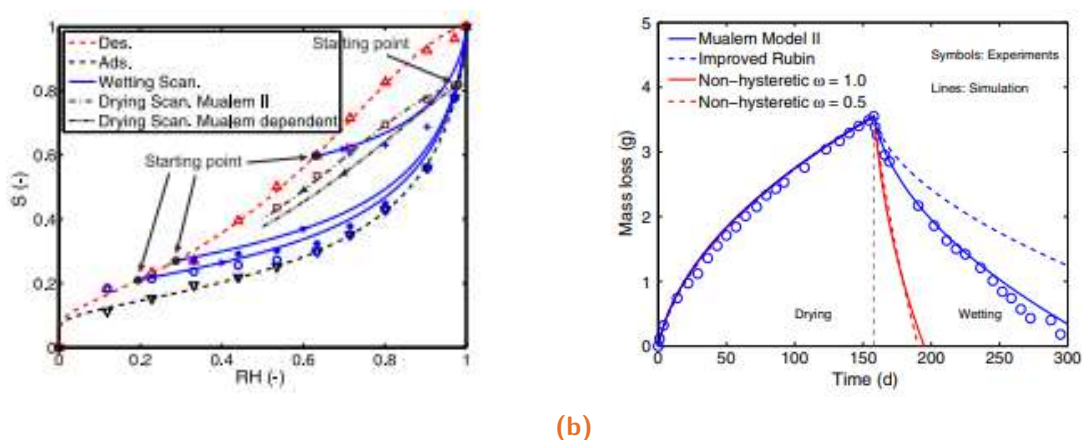
et )1.28d)). Le temps d'attente expérimental influence l'amplitude de l'hysteresis dans les courbes de perméabilités relatives au gaz (figures (1.28c) et (1.28d)) et dans les courbes de rétention d'eau (figure 1.27e). M'jahad 2012 [93] a étudié l'impact de la fissuration sur l'évolution des propriétés hydrauliques des bétons (CEM I et CEM V). Elle a montré à l'aide de différents protocoles d'endommagement que la fissuration des bétons augmente leur capacité de transfert de gaz (figures (1.28a) et (1.28b)).



**Figure 1.28 :** Synthèse des mesures de la perméabilité au gaz du Béton (CEM I et CEM v). (a) Evolution de la perméabilité relative avec la saturation en eau pour le béton (CEM V) et (b) Evolution de la perméabilité relative avec l'humidité relative pour le béton (CEM I) à l'état sain et fracturée avec une mise en évidence de l'effet du pression de confinement, d'après M'jahad (2012) [93]. (c) et (d) Evolution de la perméabilité relative avec la saturation en eau pour le béton CEM I et CEM V respectivement, d'après Chen (2011) [28].

Zhang (2014) [146] a étudié le phénomène d'hystérésis sur les matériaux cimentaires à travers des mesures expérimentales et de modélisation 1D des cycles d'humidification-séchage d'un échantillon de béton (figure ??). Il a montré la nécessité

de prendre en compte le phénomène d'hystérésis dans la modélisation de transfert d'eau dans les matériaux cimentaires. Ses résultats de modélisation ont montré que les modèles "conceptuels" sont plus performants et plus stables par rapport aux modèles "empiriques" qui présentent des erreurs de fermeture des courbes intermédiaires (*scanning curves*).



**Figure 1.29 :** Synthèse des travaux de Zhang (2014) [146] sur l'hystérésis. (a) Résultats de prédiction des courbes intermédiaires sur une pâte de ciment CEM I. (b) Modélisation d'un cycle d'humidification-séchage d'une pâte de ciment CEM I.

Malgré que les données de courbes de rétention mesurées sur le béton présentent une valeur significative de la quantité d'air piégée, Zhang (2014) [146] a procédé à une normalisation des données expérimentales afin de considérer une saturation totale théorique égale à 1, ce qui conduit à négliger l'hystérésis dans les perméabilités à l'eau et au gaz.

## 1.4 Conclusion

Le stockage de déchets radioactifs HA et MAVL en couche géologique profonde est la solution de référence en France. Le concept de multi-barrières repose sur la succession de barrières hydrauliques afin de limiter le plus possible le transfert des radionucléides dans l'environnement naturel : barrières constituées par les matériaux ouvragés, et barrière constituée par le milieu géologique naturel. La compréhension des mécanismes de transfert repose en partie sur la caractérisation des propriétés hydrauliques des matériaux de barrières ouvragées (*engineered barriers*). Les études récentes sur leurs propriétés hydrauliques ont souligné l'importance de l'hystérésis et de la pression d'entrée. Toutefois, ces deux phénomènes ont été négligés dans la plupart des études précédentes, ce qui peut conduire à des incertitudes sur l'évaluation de la sûreté de l'installation, particulièrement sur la capacité des barrières ouvragées à retenir les radionucléides. Les mesures expérimentales de ces propriétés, qui ont été passées en revue et collectées dans ce chapitre, seront l'objet d'une étude dans les deux prochains chapitres ayant pour



objectif de prendre en compte la pression d'entrée (chapitre 2) et de prendre en compte le phénomène d'hystéresis (chapitre 4), afin d'améliorer la modélisation des transferts de gaz (hydrogène) en milieu quasi-saturé.



# Prise en compte de la pression d'entrée dans la modélisation des transferts de gaz dans un milieu argileux

## Overview :

Ce chapitre a pour objectif de fournir une étude de sensibilité de l'écoulement biphasique à la pression d'entrée de gaz. Le modèle de Vogel et al. (2001) [134], et d'Ippish et al. (2006) [63] noté 'VGM modifié' a été choisi pour l'établissement d'un modèle de pression d'entrée pour les courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz. Ce nouveau modèle a été implémenté dans le code RETC [132] qui a été modifié pour prendre en compte la perméabilité au gaz en plus des courbes de rétention et de perméabilité à l'eau dans l'ajustement des données expérimentales. Une autre approche d'ajustement basée sur une fonction multi-objectif a été testée. Le nouveau modèle a été implémenté dans le code iTOUGH2 à l'aide de deux méthodes de résolution numérique du problème mathématique du transfert (Méthode  $P_c$ , Méthode  $S_g$ ). Après des tests de non-régression et de vérification des nouvelles fonctionnalités du code, l'impact de la pression d'entrée a été démontré sur un exemple d'infiltration de l'eau. Enfin, l'expérience in-situ PGZ1-GAZ [55] d'injection de gaz dans la roche du COx a été modélisée, et l'effet de la pression d'entrée sur la migration de gaz dans l'argile du COx est discuté.

## 2.1 Modèles de courbes de rétention et de perméabilités relatives

Plusieurs modèles ont été utilisés dans la littérature pour décrire les courbes de rétention et des perméabilités relatives à l'eau et au gaz des milieux poreux non saturés. Le tableau (2.1) présente les modèles capillaires les plus utilisés dans la littérature. Carlier et al. (2012) [25] ont appliqué ces modèles sur 4 types de matériaux cimentaires, le modèle de Van Genuchten-Mualem (VGM) présente une bonne adéquation avec les mesures expérimentales. Il faut noter que le modèle de Brooks & Corey (1966) [22] permet de prendre en compte la pression d'entrée dans sa formulation. Cependant, il ne permet

pas d'obtenir une bonne caractérisation des propriétés hydrauliques dans une gamme importante de la courbe dès que la pression capillaire seuil  $P_{c,e}$  est dépassée.

Modèle	Courbe de rétention	Perméabilités relatives
van Genuchten (VG/VG) [131]	$S_{le} = \frac{1}{(1 + (\frac{P_c}{P_{c0}})^n)^m} \quad (2.1)$ <p>(m,n) indépendants</p>	$k_{r,l}(S_{le}) = S_{le}^\sigma [I_\zeta(m + \frac{1}{n}, 1 - \frac{1}{n})]^2 \quad (2.2)$ $k_{r,g} = S_{le}^\sigma [1 - I_\zeta(m + \frac{1}{n}, 1 - \frac{1}{n})]^2 \quad (2.3)$ <p>I : la fonction Bêta incomplète</p>
van Genuchten Mualem (VG/VGM) [95]	$m = 1 - \frac{1}{n} \quad (2.4)$	$k_{r,l}(S_{le}) = S_{le}^{0.5} [\frac{1 - F(S_{le})}{1 - F(1)}]^2 \quad (2.5a)$ $F(S_{le}) = (1 - S_{le}^{\frac{1}{m}})^m \quad (2.5b)$ $k_{r,g} = (1 - S_{le})^{0.5} * [1 - S_{le}^{\frac{1}{m}}]^{2m} \quad (2.6)$
van Genuchten Burdine (VG/VGB) [23]	$m = 1 - \frac{2}{n} \quad (2.7)$	$k_{r,l}(S_{le}) = S_{le}^2 [\frac{1 - F(S_{le})}{1 - F(1)}]^2 \quad (2.8a)$ $F(S_{le}) = (1 - S_{le}^{\frac{1}{m}})^m \quad (2.8b)$ $k_{r,g} = (1 - S_{le})^2 * [1 - S_{le}^{\frac{1}{m}}]^m \quad (2.9)$
Brooks and Crorey (BC) [22]	$S_{le}(P_c) = \begin{cases} (\frac{P_c}{P_{c,e}})^{-\lambda} & \text{si } P_{c,e} < P_c \\ 1 & \text{si } P_c \geq P_{c,e} \end{cases}$	$k_{r,l}(S_{le}) = S_{le}^{\frac{2+3\lambda}{\lambda}} \quad (2.10)$ $k_{r,g} = (1 - S_{le})^2 * [1 - S_{le}^{\frac{2+\lambda}{\lambda}}] \quad (2.11)$

**Table 2.1 :** Équations des différents modèles de propriétés hydrauliques utilisés dans cette étude.

### 2.1.1 Modèle classique de van Genuchten-Mualem (VGM)

Le modèle de Van Genuchten-Mualem est un modèle regroupant la courbe de rétention de Van Genuchten (VG) et de la perméabilité relative obtenue par l'intégration de cette courbe de rétention suivant le modèle de Mualem (1976) [95]. Basé sur la loi

de Poiseuille pour chaque pore et la représentation de la tortuosité comme une fonction puissance de la saturation, Mualem (1976) [95] a établi une formule pour exprimer la relation perméabilité-saturation comme suit :

$$k_{r,l}(P_c) = S_{le}^\tau \left[ \frac{\int_0^{S_{le}} \frac{1}{P_c(S)} dx}{\int_0^1 \frac{1}{P_c(S)} dx} \right]^2 \quad (2.12)$$

Parker et al. (1987) [78] ont étendu le modèle de Mualem (1976) [95] pour la perméabilité au gaz :

$$k_{r,g}(P_c) = (1 - S_{le})^{\tau'} \left[ \frac{\int_{S_{le}}^1 \frac{1}{P_c(x)} dx}{\int_0^1 \frac{1}{P_c(x)} dx} \right]^2 \quad (2.13)$$

où  $S_{le}$  désigne la saturation effective,  $\tau$  et  $\tau'$  sont les paramètres représentant la tortuosité pour les perméabilités à l'eau et au gaz respectivement. Lorsque le modèle de Van Genuchten (VG) [131] est utilisé, la saturation effective à l'eau peut être exprimée comme :

$$S_{le}(P_c) = \frac{S(P_c) - S_{lr}}{S_{ls} - S_{lr}} = \frac{\theta_l(P_c) - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = [1 + (\alpha P_c)^n]^{-m} \quad (2.14)$$

Avec  $n$ ,  $m$ , et  $\alpha$  [ $Pa^{-1}$ ], sont des paramètres du modèle à ajuster sur les données expérimentales. On note que l'interprétation du paramètre  $1/\alpha$  comme une pression d'entrée d'air est ambiguë. En effet, si on considère la fonction  $S_{le}(P_c)$ , son point d'inflexion  $\lambda_{cap}$  est de la même ordre de grandeur que  $\frac{1}{\alpha}$ , plus précisément, ce point d'inflexion est donné par l'expression suivante :

$$\lambda_{cap} = \frac{1}{\alpha} \left( \frac{n-1}{nm+1} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (2.15)$$

Lorsque  $m = 1 - \frac{1}{n}$ , cette équation se réduit à :

$$\lambda_{cap} = \frac{1}{\alpha} \left( 1 - \frac{1}{n} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (2.16)$$

De plus, pour ces deux grandeurs caractéristiques, la valeur de la saturation est donnée par :

$$S_{le}\left(\frac{1}{\alpha}\right) = \frac{1}{2^{1-\frac{1}{n}}} \quad (2.17a)$$

$$S_{le}(\lambda_{cap}) = \left( 2 - \frac{1}{n} \right)^{1-\frac{1}{n}} \quad (2.17b)$$

Comme dans la majorité des cas avec une pression d'entrée significative ( $1 < n < 2$ ), l'équation (2.15) permet d'écrire que  $\lambda_{cap} < \frac{1}{\alpha}$ , alors la valeur  $S_{le}(\frac{1}{\alpha})$  est loin de la saturation totale égale à 1 que celle en point d'inflexion  $S_{le}(\lambda_{cap})$ . ces deux caractéristiques globales de la courbe de rétention s'avèrent importantes pour la description de cette courbe. Toutefois la pression d'entrée est une caractéristique locale de la courbe qui définit le début de la désaturation de milieu, et elle sera notée  $P_{c,e}$  :

$$P_{c,e} = \max_{P_c \in R} \{P_c / S_{le}(P_c) = 1\} \quad (2.18)$$

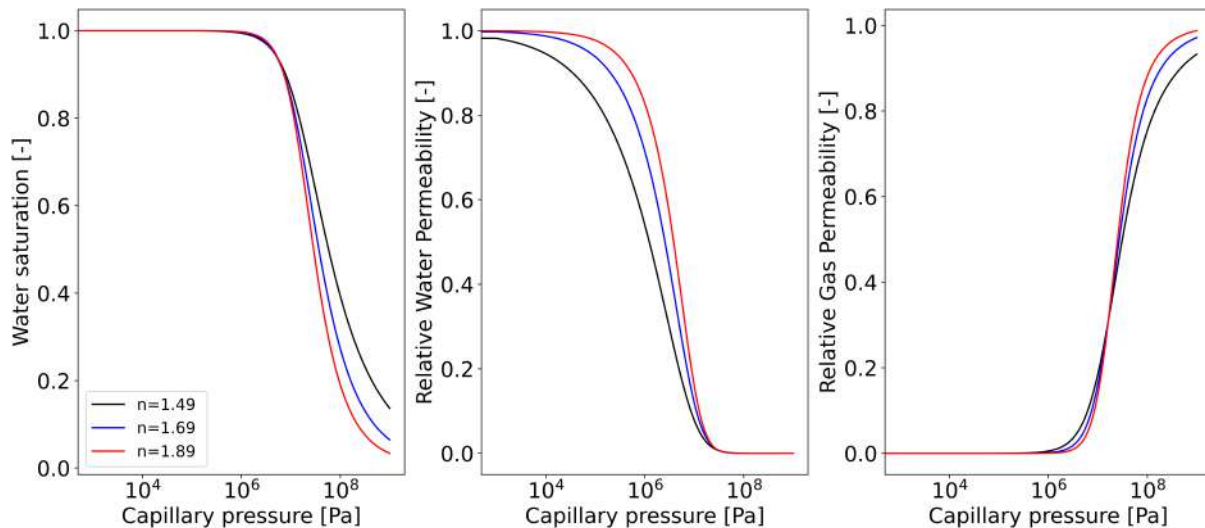
l'intégration des équations (2.12) et (2.13) avec le modèle  $P_c(S)$  de Van Genuchten (equation (2.14)) avec  $m = 1 - \frac{1}{n}$  permet d'écrire explicitement les perméabilités à l'eau et au gaz en fonction de la saturation selon le système d'équations suivant :

$$S_l(P_c) = S_{lr} + \frac{S_{ls} - S_{lr}}{[1 + (\alpha P_c)^n]^m} \quad (2.19a)$$

$$k_{r,l}(P_c) = S_{le}^{\tau} [1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m]^2 \quad (2.19b)$$

$$k_{r,g}(P_c) = (1 - S_{le})^{\tau'} [1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}}]^{2m} \quad (2.19c)$$

Stephans et Rehfeldt (1985) [124], Van Genuchten et al. (1991) [132], et Vogel et al. (2001) [134] ont montré par une étude de sensibilité que le modèle VGM présente une forte sensibilité de la perméabilité à l'eau à la courbe de rétention, particulièrement au voisinage de la saturation (figure 2.1)

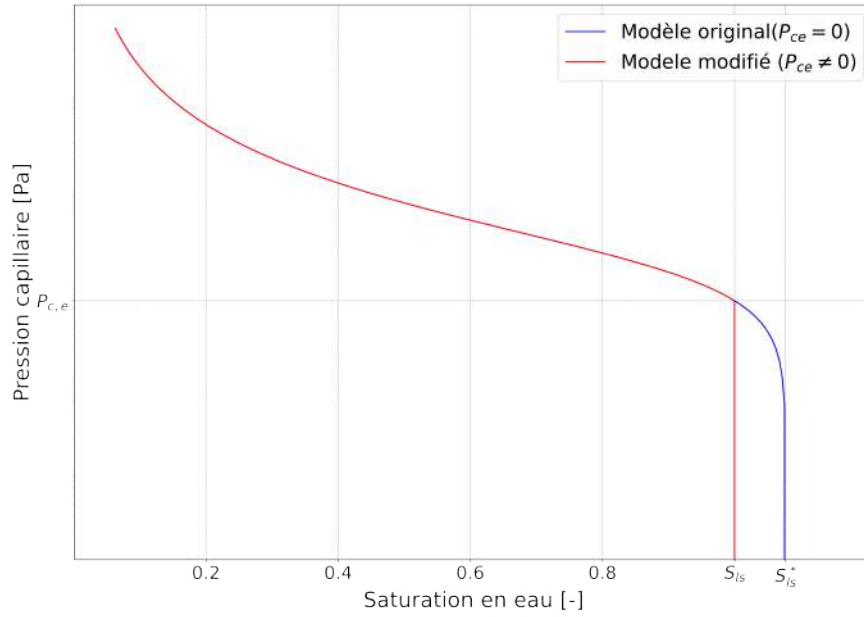


**Figure 2.1** : Étude de sensibilité des perméabilités à l'eau et au gaz à des faibles perturbations de la courbe de rétention au voisinage de la saturation à travers le changement du paramètre  $n$ .  $S_{ls} = 1$ ,  $S_{lr} = 0$ , et  $\alpha^{-1} = 15$  MPa.

En effet, dans l'intervalle  $[0, P_{c,e}]$ , plusieurs combinaisons de paramètres  $n$  et  $\alpha$  permettent d'ajuster et reproduire une pseudo-pression d'entrée dans les courbes de rétention. Mais la perméabilité à l'eau sera très sensible à une faible variation de  $P_c$  (figure 2.1). Selon Ippish et al. (2006) [63] cette sensibilité des courbes de perméabilités au voisinage de la saturation peut affecter le mécanisme de transfert de l'eau et induire des problèmes numériques de convergence et de stabilité. Ils ont suggéré d'introduire une pression d'entrée non nulle. Particulièrement, lorsque  $n \leq 2$  ou  $\alpha \times P_{c,e} \geq 1$ , cela correspond à des sols fins avec de larges valeurs de pression capillaire d'entrée  $P_{c,e}$ .

## 2.1.2 Prise en compte de la pression d'entrée dans le modèle de Van Genuchten-Mualem (VGM)

L'introduction d'une pression capillaire d'entrée non nulle  $P_{c,e}$  dans le modèle VG a été proposée par Vogel et al. (2001) [134] puis par Ippich et al. (2005) [63]. Ces auteurs ont obtenu explicitement des formulations de courbes de rétention et de perméabilité à l'eau en fonction de la saturation sans donner une base théorique derrière ces formulations. Dans cette partie, le modèle de courbe de rétention de Vogel et al. (2001) [134] sera adopté. Ensuite, la formule de la perméabilité à l'eau proposée par Vogel et al. (2001) [134] et par Ippich et al. (2005) [63] sera vérifiée, et une expression de la perméabilité au gaz avec une pression d'entrée non nulle sera dérivée à travers l'intégration du modèle capillaire (VGM).



**Figure 2.2 :** Illustration de la modification de Vogel et al. (2001) [134] pour prendre en compte la pression d'entrée  $P_{c,e}$  dans le modèle de Van Genuchten VG.

La modification de Vogel et al. (2001) [134] consiste à prolonger la courbe de rétention au-delà de la saturation totale  $S_{ls}$ , par l'introduction d'un paramètre  $S_{ls}^* \geq S_{ls}$  dans le modèle capillaire (VG) comme illustré dans la Figure (2.2).

Le nouveau modèle peut s'écrire sous la forme suivante :

$$S_l(P_c) = \begin{cases} S_{lr} + \frac{S_{ls}^* - S_{lr}}{[1 + (\alpha P_c)^n]^m} & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ S_{ls} & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (2.20)$$

Le paramètre introduit  $S_{ls}^*$  peut s'écrire en fonction de la pression d'entrée capillaire  $P_{c,e}$  et des autres paramètres du modèle sous la forme :

$$S_{ls}^* = S_{lr} + (S_{ls} - S_{lr}) \times [1 + (\alpha P_{c,e})^n]^m \quad (2.21)$$

Avec cette nouvelle version de la relation pression capillaire-saturation en eau, la perméabilité à l'eau suivant le modèle capillaire de Mualem (1976) [95] s'écrit sous la forme :

$$k_{r,l}(P_c) = \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^\tau \left[ \frac{\int_0^{S_{le}} \frac{1}{P_c(x)} dx}{\int_0^{S_{le}^*} \frac{1}{P_c(x)} dx} \right]^2 = \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^\tau \left[ \frac{I_{S_{le}^{\frac{1}{m}}}(p, q)}{I_{S_{le}^{\frac{1}{m}}}(p, q)} \right]^2 \quad (2.22)$$



avec  $S_{le} = \frac{S_l(P_c) - S_{lr}}{S_{ls}^* - S_{lr}}$  est la nouvelle expression de la saturation effective, elle atteint une valeur maximale  $S_{le}^*$  lorsque  $S_l = S_{ls}$ ;  $p = m + \frac{1}{n}$ ;  $q = 1 - \frac{1}{n}$ ; et  $I(p, q)$  est la fonction bêta incomplète.

Le modèle de Parker et al. (1987) [78] permet d'écrire la perméabilité au gaz sous la forme :

$$k_{r,g}(P_c) = \left(1 - \frac{S_{le}}{S_{ls}^*}\right)^{\tau'} \left[ \frac{\int_0^{S_{le}^*} \frac{1}{P_c(x)} dx}{\int_0^{S_{le}^*} \frac{1}{P_c(x)} dx} \right]^2 = \left(1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*}\right)^{\tau'} \left[ 1 - \frac{\int_0^{S_{le}} \frac{1}{P_c(x)} dx}{\int_0^{S_{le}^*} \frac{1}{P_c(x)} dx} \right]^2 \quad (2.23)$$

En insérant l'équation (2.20) dans l'équation (2.23) on écrit :

$$k_{r,g}(P_c) = \left(1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*}\right)^{\tau'} \left[ 1 - \frac{I_{S_{le}^*}^{\frac{1}{m}}(p, q)}{I_{S_{le}^*}^{\frac{1}{m}}(p, q)} \right]^2 \quad (2.24)$$

avec  $p = m + \frac{1}{n}$  et  $q = 1 - \frac{1}{n}$

Si  $m = 1 - \frac{1}{n}$ , les intégrales dans les équations (2.23,3.8) sont analytiquement intégrables, ce qui permet d'écrire les trois équations de ce nouveau modèle noté VGMPE :

$$S_l(P_c) = \begin{cases} S_{lr} + \frac{S_{ls}^* - S_{lr}}{[1 + (\alpha P_c)^n]^m} & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ S_{ls} & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (2.25a)$$

$$k_{r,l}(P_c) = \begin{cases} \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^{\tau} \left[ \frac{1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m}{1 - (1 - (S_{le}^*)^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ 1 & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (2.25b)$$

$$k_{r,g}(P_c) = \begin{cases} \left[ 1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^{\tau'} \left[ 1 - \frac{1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m}{1 - (1 - (S_{le}^*)^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ 0 & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (2.25c)$$

Il faut noter que lorsque  $P_{c,e} = 0$ , le modèle VGMPE décrit par le système d'équations (2.25) est équivalent à la version originale VGM décrite par le système d'équations (2.19).

### 2.1.3 Analyse et traitement des données expérimentales

La caractérisation des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées et de la roche hôte suivant le nouveau modèle nécessite une représentation des courbes de

rétenion et de perméabilités à l'eau et au gaz avec le même vecteur de paramètres  $\mathbf{P} = (n, m, \alpha, S_{ls}, S_{lr}, k_{0,l}, \tau, k_{0,g}, \tau', P_{c,e})$ , tout en respectant les données mesurées dans chaque fonction objective de  $S_l(P_c)$ ,  $k_l(P_c)$ , et  $k_g(P_c)$ . En effet, dans les études précédentes [40] [52], les données expérimentales des courbes de rétenion et des perméabilités à l'eau et au gaz ont été ajustées par des paramètres différents, et parfois en utilisant des modèles différents, par exemple le modèle VGM pour les courbes de rétenion et la loi cubique pour la perméabilité au gaz. Cette méthode d'ajustement n'a aucune base théorique et parfois contredit les modèles capillaires conventionnels. Dans cette partie, deux méthodes pour l'optimisation des paramètres à partir des données expérimentales seront présentées. La première méthode consiste en une optimisation simultanée mono-objectif avec une seule fonction coût, cette méthode sera notée (SOF; une Seule Fonction Objective) et sera implémentée dans le code RETC [132]. La deuxième méthode consiste en une optimisation multiobjectif des trois courbes de propriétés hydrauliques basée sur le principe d'optimalité de Pareto [61].

Une valeur de pression d'entrée est commune entre les courbes de rétenion et des perméabilités relatives. Alors, un ajustement simultané des propriétés hydrauliques sera étudié.

### 2.1.3.1 Optimisation mono-objectif

Le code RETC [132], est un code qui a été développé pour l'ajustement simultané des courbes de rétenion et de perméabilité à l'eau avec une seule fonction coût à optimiser  $O_{bj}(\mathbf{P})$  en fonction d'un vecteur de paramètre  $\mathbf{P}$ . Cette fonction coût est définie comme une somme de deux erreurs quadratiques normalisées de l'ajustement des deux fonction  $P_c(S_l)$  et  $k_{r,l}(S_l)$ . Nous avons ajouté le coût de la fonction perméabilité au gaz  $k_{r,g}(S_l)$  afin de permettre un ajustement simultané des trois courbes. La nouvelle version de la fonction coût à minimiser suivant un vecteur de paramètre  $\mathbf{P} = (n, m, \alpha, S_{ls}, S_{lr}, k_{0,l}, \tau, k_{0,g}, \tau', P_{c,e})$ , et en considérant les mesures  $(S_{l,i})_{i \in [1, N_{data_S}]}$ ,  $(k_{l,i})_{i \in [1, N_{data_{k_l}]}}$ , et  $k_{g,ii} \in [1, N_{data_{k_g}}]$  s'écrit sous la forme :

$$O_{bj}(\mathbf{P}) = O_{bj}(\mathbf{P})_{K_l} + O_{bj}(\mathbf{P})_{S_l} + O_{bj}(\mathbf{P})_{K_g} \quad (2.26a)$$

Avec

$$O_{bj}(\mathbf{P})_{S_l} = \frac{MSE([\hat{S}_{l,i}(\mathbf{P}), S_{l,i}]_{i \in [1, N_{data_S}]})}{S_{l,data}^2} \quad (2.26b)$$

$$O_{bj}(\mathbf{P})_{k_l} = \frac{MSE([\text{Log}(\hat{k}_{l,i}(\mathbf{P})), \text{Log}(k_{l,i})]_{i \in [1, N_{data_{k_l}]})}{\overline{\text{Log}(k_{l,data})}^2} \quad (2.26c)$$

$$Obj(\mathbf{P})_{k_g} = \frac{MSE([Log(\hat{k}_{g,i}(\mathbf{P})), Log(k_{g,i})]_{i \in [1, N_{data_{k_g}}]})}{Log(k_{g,data})^2} \quad (2.26d)$$

$N_{data_S}$ ,  $N_{data_{k_g}}$ , and  $N_{data_{k_l}}$  désignent respectivement le nombre des données mesurées pour les courbes de rétention, la perméabilité relative à l'eau, et la perméabilité au gaz. Les fonctions  $\hat{S}(\mathbf{P})$ ,  $\hat{K}(\mathbf{P})$ , et  $\hat{K}(\mathbf{P})$  désignent respectivement les modèles ajustés des courbes de rétention, de la perméabilité à l'eau et de la perméabilité au gaz, et  $W_{k_l}$ ,  $W_{k_g}$  sont des facteurs de pondération qui permettent de donner plus ou moins de poids à une propriété hydraulique spécifique par rapport aux deux autres propriétés.

Les deux paramètres  $k_{0,l}[m^2]$  et  $k_{0,g}[m^2]$  ont été utilisés pour distinguer entre la perméabilité intrinsèque mesurée par l'eau et la perméabilité intrinsèque mesurée par le gaz. Dans le cas des matériaux argileux et cimentaires, la perméabilité dépend de fluide utilisé (voir section 1.2.4.1).

En réalité, le problème consiste en une optimisation multi-objectif. Ces différents objectifs peuvent parfois apparaître antagonistes. C'est pour cette raison, que nous avons également utilisé une technique d'optimisation multi-objectif pour caractériser les paramètres hydrauliques du COx basée sur l'algorithme NSGA-II (Kalyanmoy et al., 2002) [69], qui est disponible dans la bibliothèque Python Platypus de Hadka (2015) [53].

### 2.1.3.2 Optimisation multi-objectif

Le problème d'optimisation multi-objectif consiste à prendre en compte les 3 fonctions objectives définies par le système (2.26) sous un ensemble de  $m \in \mathbb{N}$  contraintes sur les paramètres. En conséquence, le problème peut être écrit sous la forme :

$$\begin{aligned} \min_{P \in R^q} \quad & y = f(P) = (f_1(P), f_2(P), f_3(P)) \\ \text{sous contraintes} \quad & g(P) = (g_1(P), g_2(P) \dots g_m(P)) \leq 0 \\ \text{où} \quad & P = (n, \alpha, S_{ls}, S_{lr}, k_{0,l}, \tau, k_{0,g}, \tau', P_{c,e}) \in X \subseteq IR^q \end{aligned} \quad (2.27)$$

$f_1, f_2, \text{ et } f_3$  désignent respectivement les fonctions de coût des courbes de rétention, de la perméabilité à l'eau et de la perméabilité au gaz. La fonction  $g$  traduit les contraintes sur les  $q$  paramètres du vecteur  $P$ , et  $X$  désigne l'espace de décision de la solution  $P$ . La définition de la solution optimale dans le cas de ce problème multiobjectif dépend de la façon dont les objectifs sont comparés et ordonnés. Contrairement à un problème mono-objectif où les solutions peuvent être totalement ordonnées, pour un

problème multi-objectif la solution dépend de la façon dont les possibilités sont comparées [64]. Dans cette partie nous utilisons le principe d'optimalité de Pareto :

**La dominance au sens Pareto** On définit sur  $R^3$  avec la relation  $\geq$  par :

$$a \geq b \iff \forall i \in [1, 2, 3] \ a_i \geq b_i$$

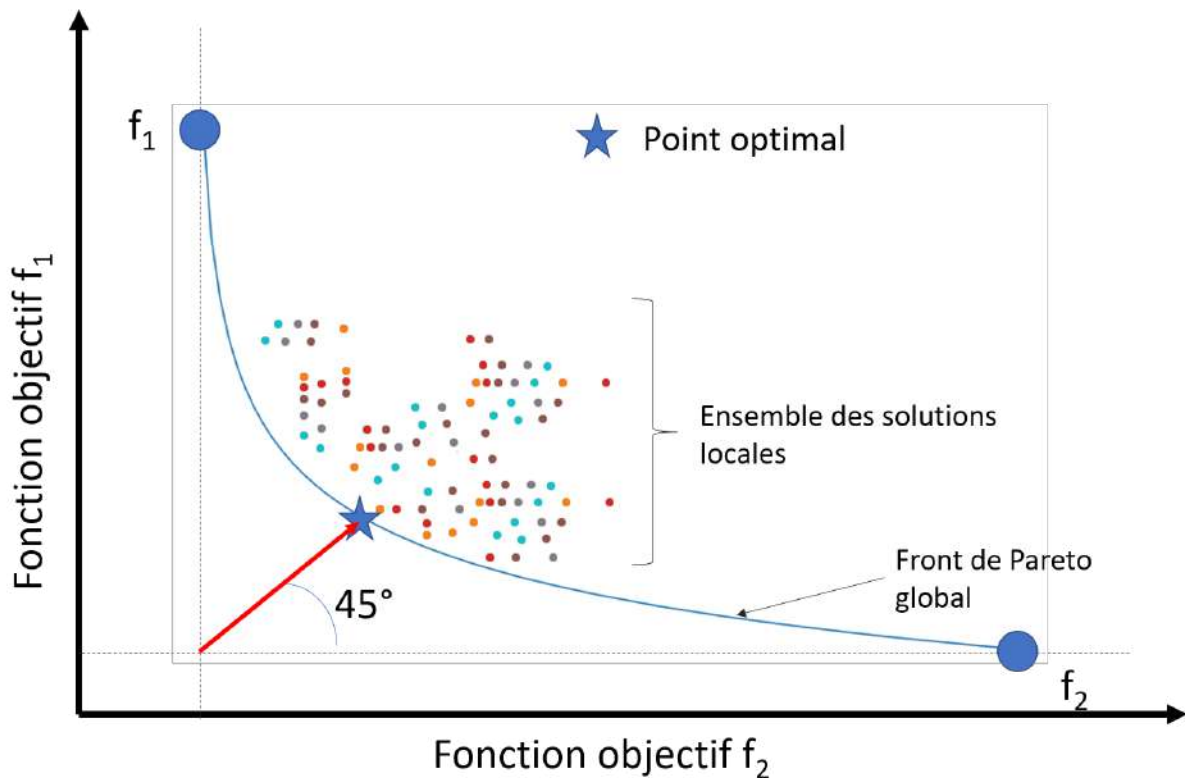
Les relation  $>$ ,  $\leq$ ,  $<$  peuvent être définies de la même façon. En conséquence, la relation  $>$  constitue une relation d'ordre partiel, ce qui va mener à l'incompatibilité entre des solutions réalisables. Cette relation d'ordre partiel va nous permettre d'introduire la notion de dominance sur  $\mathbb{R}^3$ . Ainsi, pour un couple  $(x,y) \in \mathbb{R}^3$  alors on dit que :

$$x \text{ domine } y \quad \text{si seulement si} \quad f(x) > f(y)$$

$$x \text{ domine faiblement } y \quad \text{si seulement si} \quad f(x) \geq f(y)$$

$$x \text{ et } y \text{ sont incomparables} \quad \text{si seulement si} \quad f(x) \not\geq f(y) \text{ et } f(y) \not\geq f(x)$$

Avec cette dominance au sens de Pareto, la solution optimale ne sera pas unique mais plutôt un espace de solutions maximales non dominées. Ce problème de non unicité de la solution est une caractéristique des problème multi-objectif. Dans notre étude, on a choisi la méthode utilisée par Twarakavi et al. (2008) [130] pour déterminer la solution optimale qui satisfait le compromis entre les objectifs. Ce point correspond à la distance entre l'espace des solutions optimales et le centre du plan des objectifs normalisés comme expliqué dans la Figure (2.3).

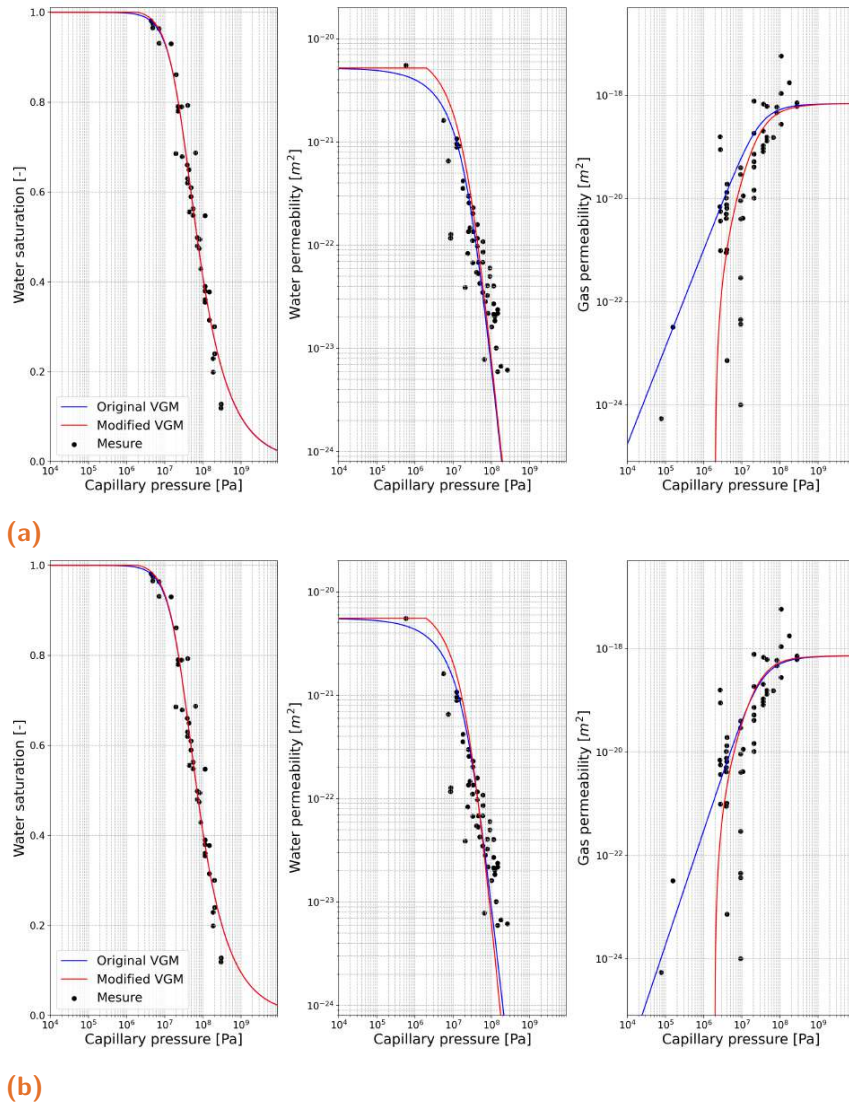


**Figure 2.3 :** Schématisation du choix de la solution optimale de Pareto dans un espace de deux objectifs  $f_1$  et  $f_2$ .

Les deux méthodes SOF et MOF seront appliquées aux données de COx dans le paragraphe suivant afin de démontrer l'ajustement des paramètres des modèles avec ces deux méthodes. Ces deux méthodes constitueront un outil de caractérisation des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées, dans le cadre des simulations de grandes échelles spatiales et temporelles pour les travaux des expertises de l'IRSN.

### 2.1.3.3 Application aux données de l'argile du COx

Dans ce paragraphe, les données expérimentales de courbes de rétention et des perméabilités relatives à l'eau et au gaz de l'argile du COx issues de Gérard (2011) [52] ont été ajustées par les modèles VGMPE et VGM. La figure (2.5) présente les résultats d'ajustement par les deux modèles et les méthodes SOF et MOF.



**Figure 2.5 :** Optimisation simultanée des propriétés hydrauliques de l’argile du COx (courbes de rétention  $S_l(P_c)$ , la perméabilité absolue à l’eau  $k_l(P_c)$ , et la perméabilité absolue au gaz  $k_g(P_c)$ ) avec les deux modèles VGM et VGMPE et par les deux méthodes d’ajustement (a) fonction mono-objectif (RETC), et (b) fonction multi-objectif. Les données mesurées sont issues de Gérard (2011) [52].

Les deux méthodes donnent des résultats presque semblables. L’espace des objectifs présenté dans la figure (2.6) montre que la méthode multi-objectif permet d’avoir un bon ajustement sur les trois objectifs de perméabilités relatives et de courbes de rétention. La méthode SOF donne un score de courbe de rétention  $NRMSE(S_l(P_c))$  semblable à celui de la fonction multi-objectif mais fournit un score médiocre sur  $NRMSE(\log(k_l(P_c)))$ ,  $NRMSE(\log(k_g(P_c)))$ . Cette différence peut être due aux poids considérés sur les termes de la fonction mono-objectif. Le nombre de données important des perméabilités par rapport à celui des courbes de rétention peut aussi influencer le processus de minimisation. Les paramètres issus de l’ajustement sont présentés dans le tableau (2.2).

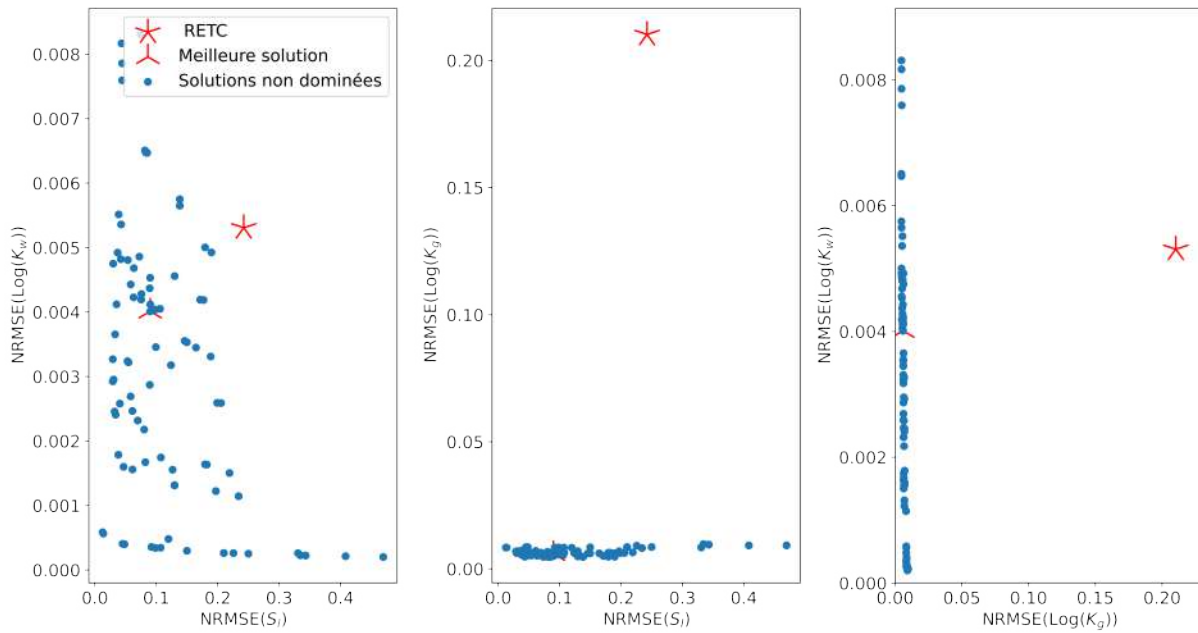


Figure 2.6 : Comparaison des deux méthodes d'ajustement dans l'espace de Pareto.

Paramètre \ Méthode	Optimisation mono-objectif		Optimisation multi-objectif	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
$P_{c,e} (MPa)$	0	1.997	0	1.962
n	1.636	1.630	1.648	1.648
$\alpha (Pa^{-1})$	$3.76 \times 10^{-08}$	$3.86 \times 10^{-08}$	$3.63 \times 10^{-08}$	$3.747 \times 10^{-08}$
$S_{ls}$	1.00	1.00	1.00	1.00
$S_{lr}$	0	0	0	0
$\tau'$	0.517	0.482	0.553	0.398
$\tau$	0.373	0.574	0.107	0.904
$k_{0,g} [m^2]$	$2.12 \times 10^{-19}$	$2.12 \times 10^{-19}$	$7.35 \times 10^{-19}$	$7.35 \times 10^{-19}$
$k_{0,l} [m^2]$	$5.22 \times 10^{-21}$	$5.22 \times 10^{-21}$	$5.56 \times 10^{-21}$	$5.56 \times 10^{-21}$

Tableau 2.2 : Paramètres des deux méthodes d'ajustement des propriétés hydrauliques du COx.

## 2.1.4 Conclusion

Dans cette partie un modèle capillaire bi-phasique a été développé pour prendre en compte une pression d'entrée non nulle à partir des modèles de perméabilités relatives de Mualem [95] et de la courbe de rétention de Van Genuchten [131]. Deux méthodes d'ajustement ont été présentées et implémentées dans le code RETC pour la méthode



mono-objectif puis avec un script python pour la méthode multi-objectif. La comparaison de ces deux approches d'ajustement montre que l'optimisation multi-objectif fournit un ajustement plus adapté que l'optimisation mono-objectif implémentée dans le code RETC. Cette différence est due au problème classique de la représentation de la contribution de chaque objectif à la seule fonction coût dans le cas mono-objectif.

## 2.2 Implémentation dans le code TOUGH2

Le modèle capillaire VGMPE développé dans la partie précédente sera implémenté dans le code iTOUGH2 [47]. Dans un premier temps, l'architecture du code TOUGH2 sera présentée. Dans un second temps, les deux approches numériques développées pour la prise en compte de la pression d'entrée dans le code iTOUGH2 seront présentées. La première approche consiste en un changement des variables primaires. La deuxième approche repose sur l'introduction de la pression d'entrée d'une manière implicite à travers les conditions d'équilibre thermodynamiques sans changement des variables primaires.

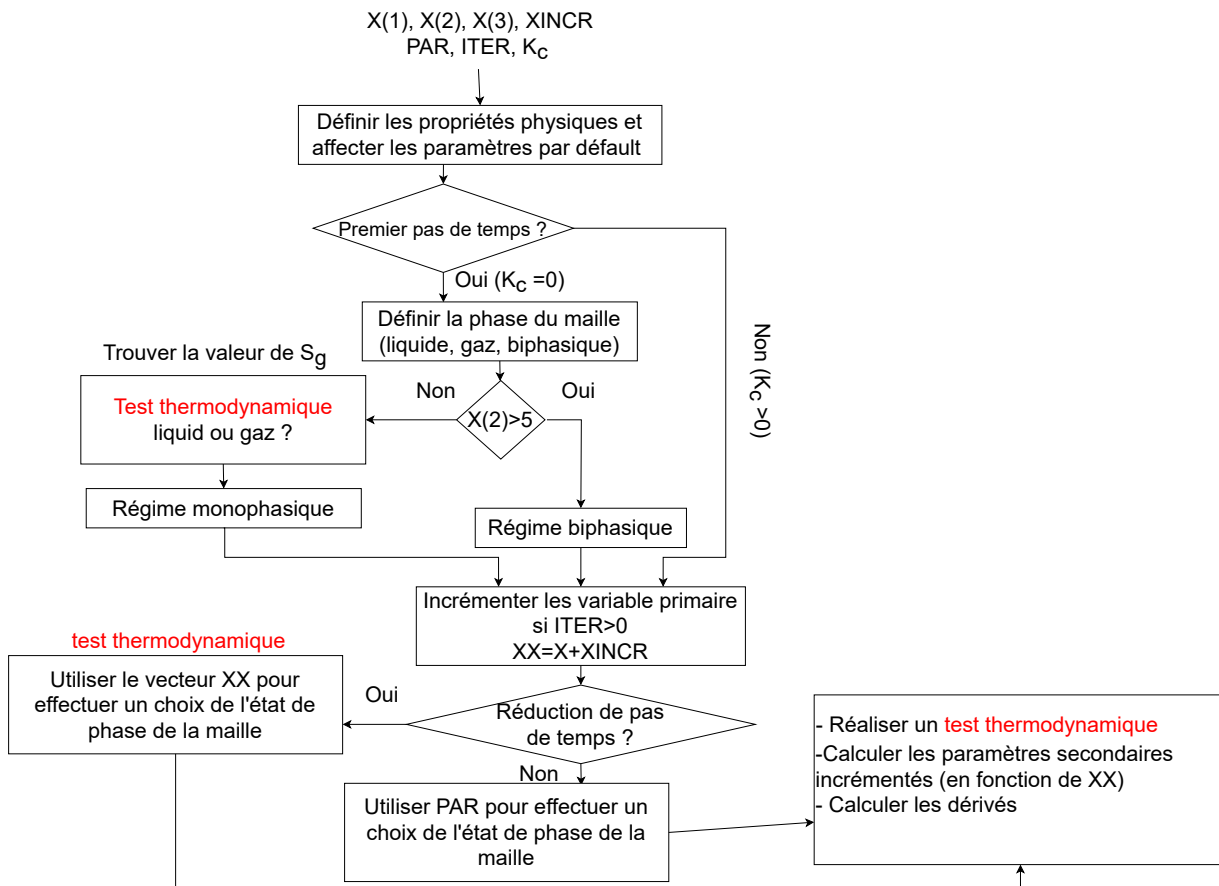
### 2.2.1 Présentation générale du TOUGH2 Code

Le code TOUGH2 (**T**ransport **O**f **U**nsaturated **G**roundwater and **H**eat) est un code développé par le laboratoire Nationale de Lawrence Berkeley au États-Unis dans le début des années 1980. Il est basé sur la méthode des différences finies avec un schéma explicite. La résolution du système d'équation est basée sur la minimisation du résiduel en dessous d'une certaine tolérance à l'aide des itérations de Newton-Raphson. Plus de détails sur la discrétisation et les schémas numériques sont donnés dans le paragraphe 3.3.1 et dans l'appendix B de manuel d'utilisateur Pruess et al. (1999) [112].

L'architecture du code TOUGH2 repose sur un système modulaire (figure 1.15). Pour chaque équation d'état, il existe un fichier nommé EOSX ( $X \in \{1, 2, 3, 4, 5, 7, 7R, 7Rn, 10, \dots\}$ ). Ce fichier contient toutes les conditions thermodynamiques et les propriétés physiques, il sert à définir des composants et des phases, et calculer les variables secondaires (Tableau 2.3) et leurs dérivées. Ce qui permet de calculer le résiduel du bilan de masse à minimiser et performer l'itération de Newton-Raphson.

Phase	Variables primaires	Variables secondaires
Monophasique	$(P_\alpha, X_l^{air}, T)$	$[k_{r,\alpha}, P_c, P_\alpha, S_\alpha, \mu_\alpha, \rho_\alpha, h,$
Biphasique	$(P_\alpha, S_g, T)$	$a, b, X_\alpha^\kappa, \alpha \in \{l, g\}, \text{ et } \kappa \in \{H_2O, \text{air}\}]$

**Table 2.3 :** Variables primaires et secondaires dans le code TOUGH2 pour le module EOS3.  $\mu_\alpha, \rho_\alpha$  désignent respectivement, la viscosité dynamique et la masse volumique de la phase  $\alpha$ .  $h$  est l'enthalpie,  $a$  et  $b$  sont des paramètres des coefficients de diffusion [111].



**Figure 2.7 :** Schéma simplifié du module EOS3.

Pour le module EOS3, les variables primaires et secondaires sont décrites dans le tableau (2.3). La détermination de l'état du système biphasique, et du changement de phase au cours du processus de résolution, s'effectue dans EOS3 suivant deux conditions, comme expliqué sur la figure (2.7). La première consiste en une condition sur la valeur de la deuxième variable primaire. En effet, dans le cas monophasique, la deuxième variable désigne la fraction molaire du gaz dissout dans l'eau (variable comprise entre 0 et 1), tandis que dans le cas biphasique, la deuxième variable représente dans EOS3 la saturation en gaz plus 10.0 ( $S_g + 10$ ) qui est une variable entre 10 et 11. La deuxième condition repose sur la connaissance de l'état thermodynamique de la cellule. Durant chaque pas

de temps, les fluides dans une cellule donnée peuvent connaître une transition d'un état thermodynamique à un autre. La détermination de l'état de phase peut s'effectuer en comparant la pression partielle de gaz et la pression de vapeur saturante, comme illustré dans la figure (2.7).

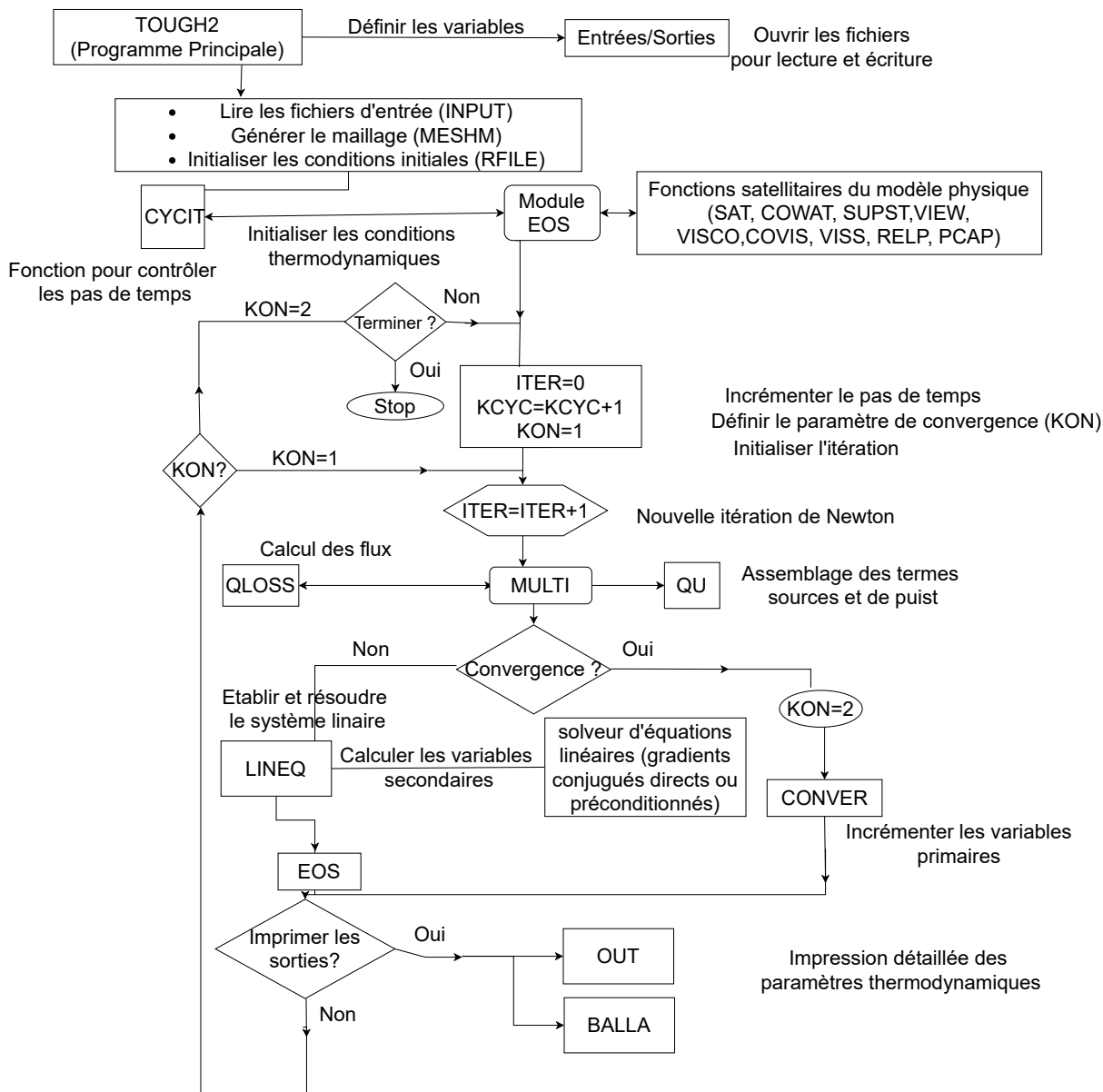


Figure 2.8 : Structure détaillée de code TOUGH2 adaptée d'après Pruess et al. (1996) [113].

## 2.2.2 Prise en compte de la pression d'entrée dans iTOUGH2-EOS3

Dans cette sous-section, on va présenter les deux approches qui nous ont permis d'introduire une pression d'entrée non nulle dans le code iTOUGH2-EOS3. Des tests de

"non régression"<sup>1</sup> et de vérification seront présentés afin de s'assurer de la validité des modifications apportées au code. Un test de référence sur la remontée capillaire dans une colonne d'argile a également été mis en oeuvre à travers un benchmark à l'aide de deux autres codes de calcul (pour comparaison avec iTOUGH2-EOS3) : le code Volumes Finis BIGFLOW 3D ([3]), et un script Matlab dénommé UNSAT 1D. Ces codes ont permis de valider, ou du moins confirmer, la bonne implémentation de la pression d'entrée dans le code iTOUGH2-EOS3.<sup>22</sup>

### 2.2.2.1 Méthode $P_c$ : nouvelles variables primaires (PCM)

Puisque le nouveau modèle de la pression d'entrée VGMPE introduit une courbe de rétention  $S(P_c)$  qui n'est pas une fonction inversible, il faut utiliser la pression capillaire comme l'une des variables primaires, afin de résoudre dans de bonnes conditions les équations de transfert en prenant en compte une pression d'entrée non nulle  $P_{c,e} > 0$ . Pour cela la variable  $P_c$  est utilisée comme variable primaire au lieu de  $S_g + 10$  dans le régime de transfert biphasique, comme expliqué dans le tableau (2.4).

Ce changement de variables sera à nouveau étudié en détail et utilisé dans le prochain chapitre 3 pourtant sur l'étude de l'effet de la pression d'entrée.

État thermodynamique	Version originale	Version modifiée
Monophasique	$(P_\alpha, X_l^{air}, T); \alpha \in \{l, g\}$	$(P_\alpha, X_l^{air}, T); \alpha \in \{l, g\}$
Biphasique	$(P_g, S_g + 10, T)$	$(P_g, P_c, T)$

**Tableau 2.4** : Changement des variables primaires implémenté dans le module EOS3 selon la méthode  $P_c$ .

#### Test de "non régression" et vérification numérique : infiltration de l'eau dans une colonne de sable

Afin de vérifier ce changement effectué dans le code, un test d'infiltration de l'eau dans une colonne de sable a été étudié. La solution de ce problème avec la nouvelle version du code a été comparée avec la version originale du code et la solution semi-analytique de Philip (1957) [105].

On considère initialement une colonne de sable homogène initialement en équilibre avec une pression capillaire  $h = -\frac{P_c}{\rho_w \times g} = -61.5$  cm. Puis, une pression capillaire de l'ordre de  $h = -23.73$  cm est appliquée en haut de la colonne, pour permettre

1. Un test de "non régression" est défini comme suit : il s'agit d'un test qui vise à vérifier que les modifications apportées au code n'impact en aucun cas le fonctionnement et les résultats précédents du code

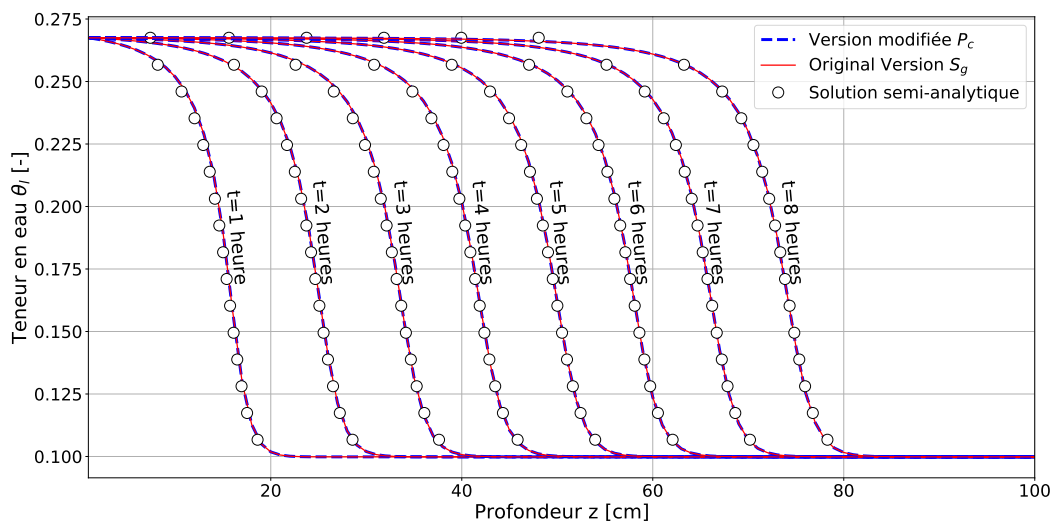
une infiltration capillaire de l'eau. Dans ce test, on considère que l'air est à pression atmosphérique constante avec un transfert libre de gaz ( $k_{r,g}=1.0$ ).

Les courbes de rétention et de perméabilité relative à l'eau sont issues de Haverkamp et al. (1977) [58] et décrites par les équations suivantes :

$$S_{le} = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \frac{a_3}{a_3 + h^{a_4}} \quad (2.28)$$

$$k_{r,l}(P_c) = \frac{a_1}{a_1 + h^{a_2}} \quad (2.29)$$

avec  $\theta_s = 0.287$ ,  $\theta_r = 0.075$ ,  $a_1 = 1.175 \times 10^6$ ,  $a_2 = 4.74$ ,  $a_3 = 1.611 \times 10^6$ ,  $a_4 = 3.96$ . La perméabilité intrinsèque est  $k_0 = k_{int} = 9.6273 \times 10^{-12} m^2$ . Les résultats de simulation avec la version originale du code, la version modifiée du code, et la solution semi-analytique de Philip (1957) [105] sont comparés dans la figure (2.9). L'accord entre les trois solutions est remarquable, ce qui valide les implémentations dans le code iTOUGH2-EOS3. Cette nouvelle version va permettre par la suite d'implémenter directement le modèle VGMPE dans la routine de pression capillaire dénotée PCAP [48].



**Figure 2.9 :** Comparaison des profils de teneur en eau  $\theta$  en fonction de la profondeur ( $z$ ) à différents temps  $t = 1, 2, \dots, 8$  heures, calculés à partir du test d'infiltration d'eau dans le sable de Grenoble avec la nouvelle version de iTOUGH2/EOS3, la version originale de iTOUGH2/EOS3, et la solution semi-analytique de Philip.

### 2.2.2.2 Méthode $S_g$ : prise en compte de la pression d'entrée dans l'équilibre thermodynamique (SGM)

En considérant à nouveau la question du choix des variables primaires, la seconde méthode pour implémenter la pression d'entrée dans le code iTOUGH2-EOS3 est basée sur la condition thermodynamique de changement de phase. Cette méthode a été implémentée par Batestilli et al. (2017)[14] pour introduire la formule de Brooks & Corey [22]. Comme illustré dans la figure (2.7), la condition thermodynamique régit la transition d'un régime monophasique en liquide à un régime Biphase liquide-gaz et vice versa. Ainsi, la transition d'un régime monophasique à un régime biphasique dans le cas d'une pression d'entrée non nulle,  $P_{c,e}$ , est exprimée par :

$$P_g \geq P_l + P_{c,e} \Leftrightarrow X_l^{air} \geq \frac{1}{H_c} \times (P_l + P_{c,e} - P_{sat}(T)) \quad (2.27)$$

où  $H_c [Pa^{-1}]$  est la constante de Henry,  $P_{sat}(T)$  est la pression de vapeur d'eau saturante, qui est une fonction de la température  $T [^\circ C]$ . La pression partielle de l'air dissout dans la phase liquide est exprimée par La loi de Henry (Eq1.15)

### 2.2.3 Benchmark entre codes de calcul

Vogel et al. (2001) [134] ont montré à travers des simulations numériques, l'impact d'une pression d'entrée non nulle sur l'infiltration et la remontée capillaire de l'eau dans une colonne d'argile. L'objectif dans cette partie est de reproduire ces simulations afin de vérifier les modifications implémentées dans le code iTOUGH2-EOS3 dans des cas qui peuvent faire intervenir la pression d'entrée. Les résultats de simulation seront comparés avec un code 1D dénommé UNSAT 1D développé sous Matlab à l'IMFT (R.Ababou et M.Renou, 2020). L'expérience numérique consiste en une remontée capillaire dans une colonne d'argile de 1 m de long. L'argile est initialement en équilibre hydraulique, avec une pression capillaire de -10 m imposée en bas de la colonne. Ensuite, une condition à la limite de pression capillaire nulle (saturation en eau totale) est imposée au bas de la colonne pour produire une remontée capillaire de l'eau. Le gaz (air) est supposé rester à pression atmosphérique ("phase libre"), avec  $k_{r,g} = 1$ .

Les propriétés hydrauliques de l'argile étudiée dans ce test sont issues de Vogel et al. (2001) [134] et présentées dans le tableau (2.5). Les courbes de rétention et de la perméabilité relative à l'eau sont illustrées dans la figure (2.10).

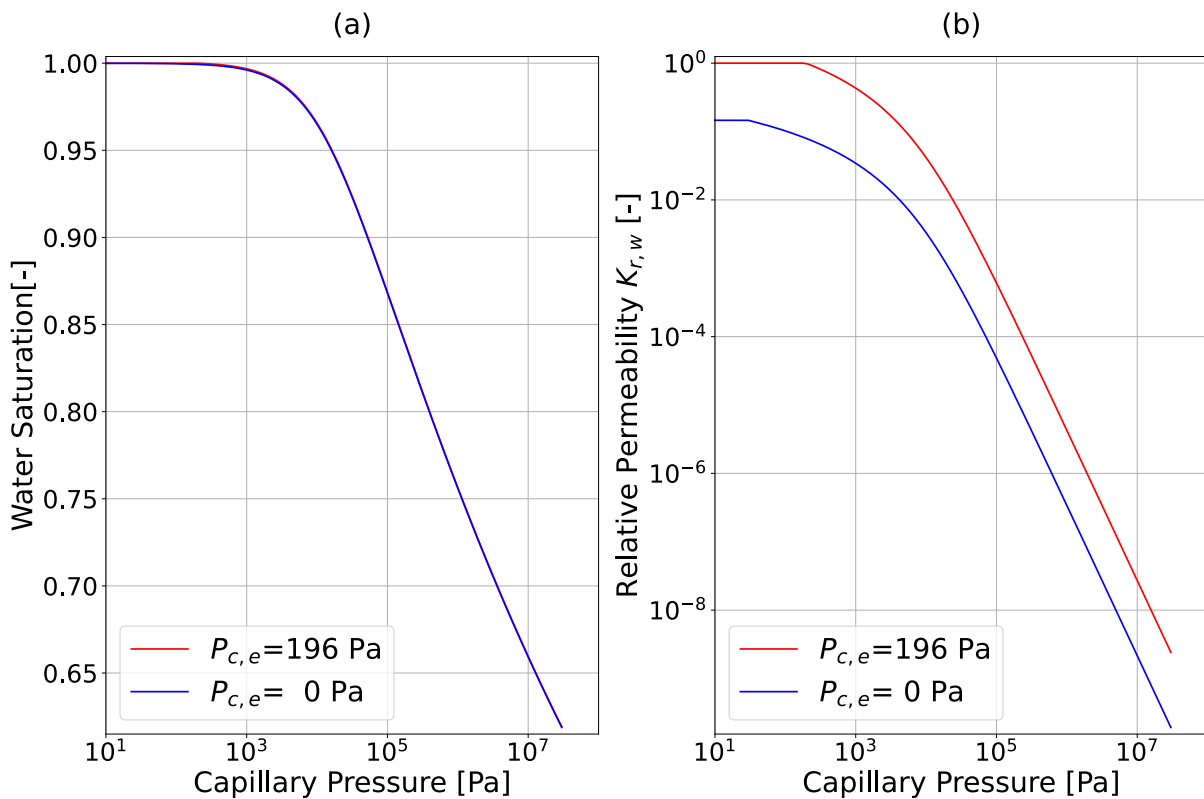
L'introduction d'une pression d'entrée non nulle dans le modèle de VGM n'affecte pas énormément les courbes de rétention. Tandis que la courbe de la perméabilité à l'eau est très sensible à l'introduction d'une pression d'entrée non nulle. Cela est dû à la grande

sensibilité de la formulation de la perméabilité à l'eau au voisinage de la saturation avec le modèle VGM comme illustré dans la figure (2.1)

$\theta_r[m^3/m^3]$	$\theta_s[m^3/m^3]$	$\alpha [Pa^{-1}]$	$n$	$\phi$	$k_0[m^2]$
0.068	0.38	$8.17 \times 10^{-5}$	1.09	0.38	$5.7 \times 10^{-14}$

**Tableau 2.5 :** Paramètres hydrauliques du modèle VGM pour le sol 'Clay-12' de Carsel et Parish (1988) [26] (d'après Vogel et al. (2001) [134]).

Numériquement, un maillage uniforme de d'épaisseur 0.1 cm a été utilisé, avec un pas de temps maximal de 100 secondes. Les résultats de la simulation présentés ci-dessous ont été obtenus à l'aide des trois codes iTOUGH2-EOS3, BIGFLOW 3D Ababou (1993) [3], et UNSAT 1D.



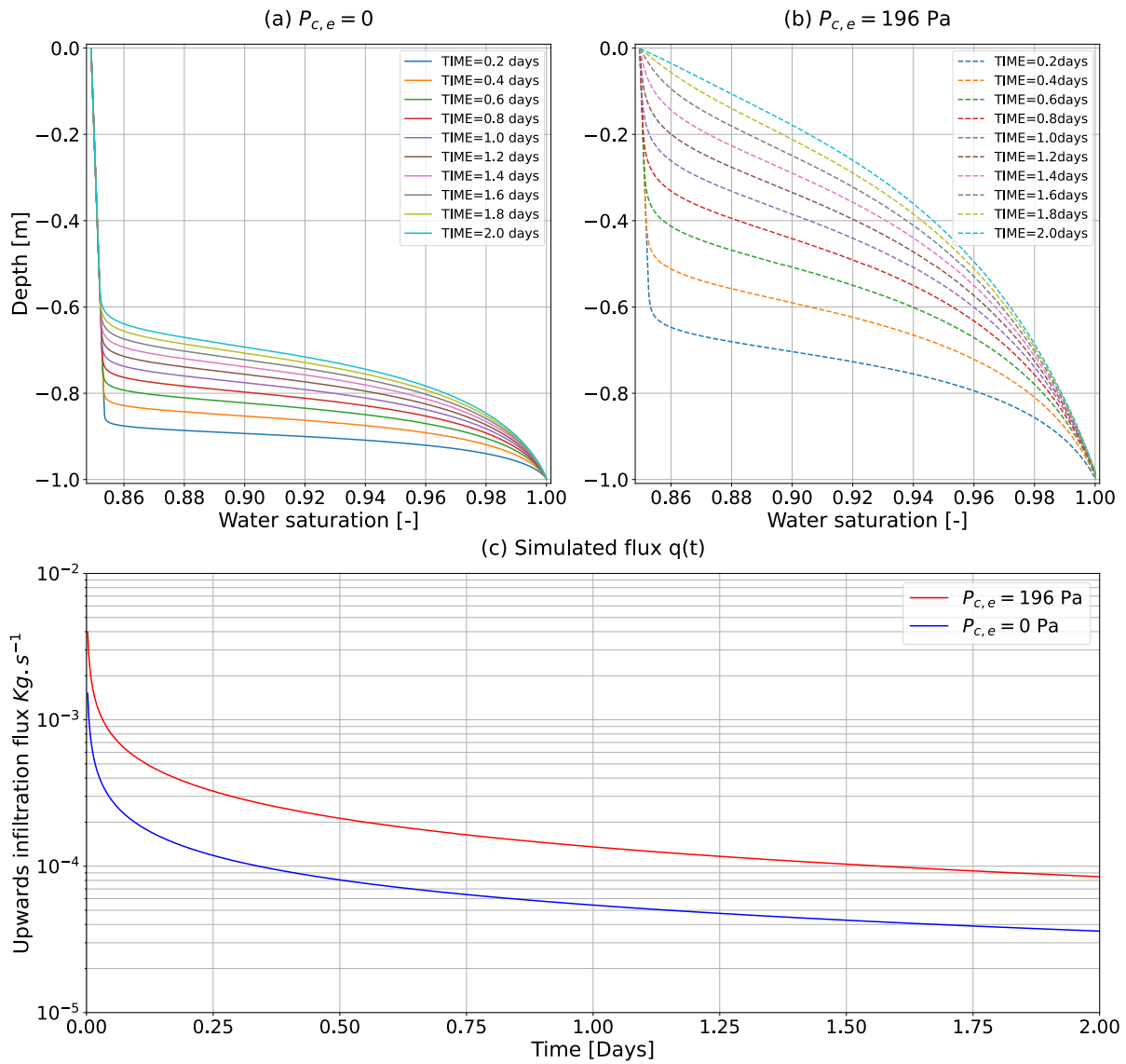
**Figure 2.10 :** Propriétés hydrauliques du sol argileux issues de Vogel et al. (2001) [134] avec  $P_{c,e} = 196 Pa$  et  $P_{c,e} = 0$  (a) Courbes de rétention. (b) Perméabilités à l'eau.

La figure (2.11) présente les résultats de la simulation avec le code iTOUGH2-EOS3 pour le modèle VGM et pour le modèle VGMPE (avec une pression d'entrée  $P_{c,e} = 196 Pa$ ). Une différence significative sur l'avancement du front de saturation tout au long de la colonne est observée. De même, on observe une grande différence entre les

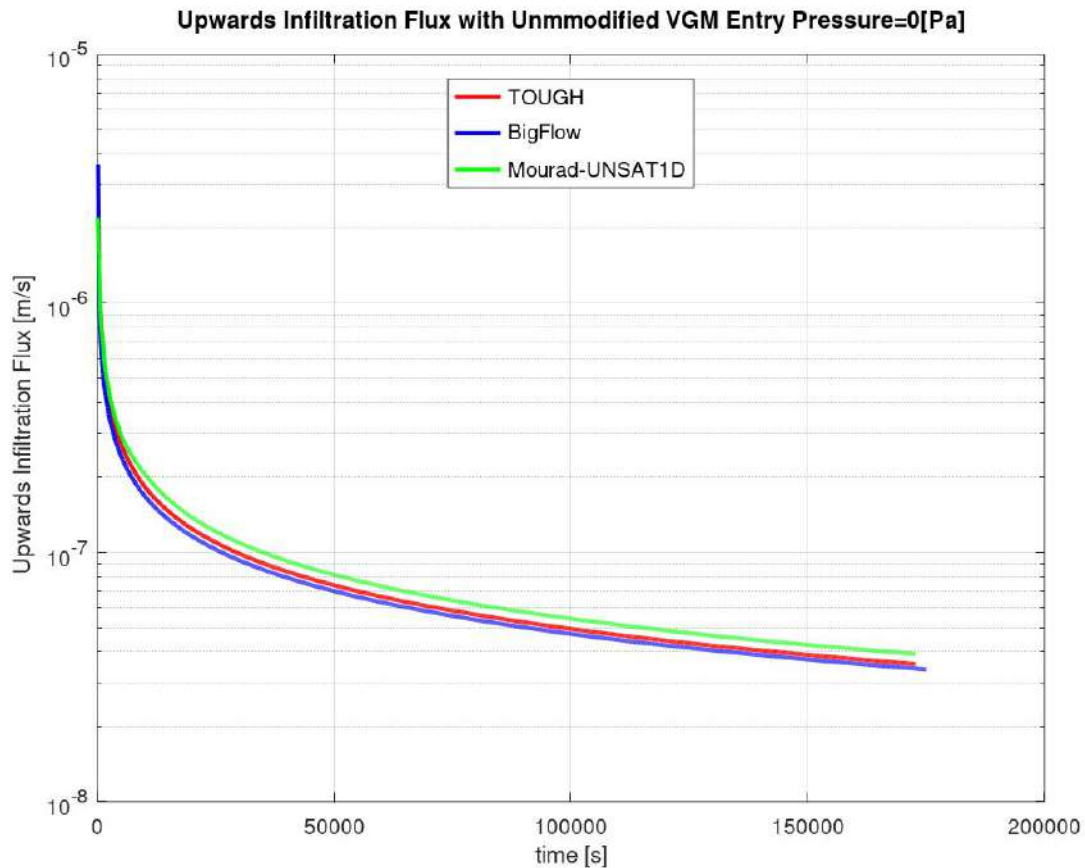
flux de la remontée capillaire de l'eau calculés par les deux modèles avec et sans pression d'entrée. Cette différence est la conséquence d'une perméabilité à l'eau plus grande pour le modèle VGMPE ( $P_{c,e} = 196$  Pa) que pour le modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ), elle est significative en particulier au voisinage de la saturation.

En raison de la forte sensibilité de la perméabilité à l'eau au voisinage de la saturation, il sera donc nécessaire de prendre en compte une pression d'entrée non nulle dans les propriétés hydrauliques pour l'étude de transport des fluides dans le milieu poreux. Plus particulièrement, il faut être très vigilant lorsque la courbe de la perméabilité relative à l'eau est prédite à partir des paramètres de VGM issus de l'ajustement des courbes de rétention.



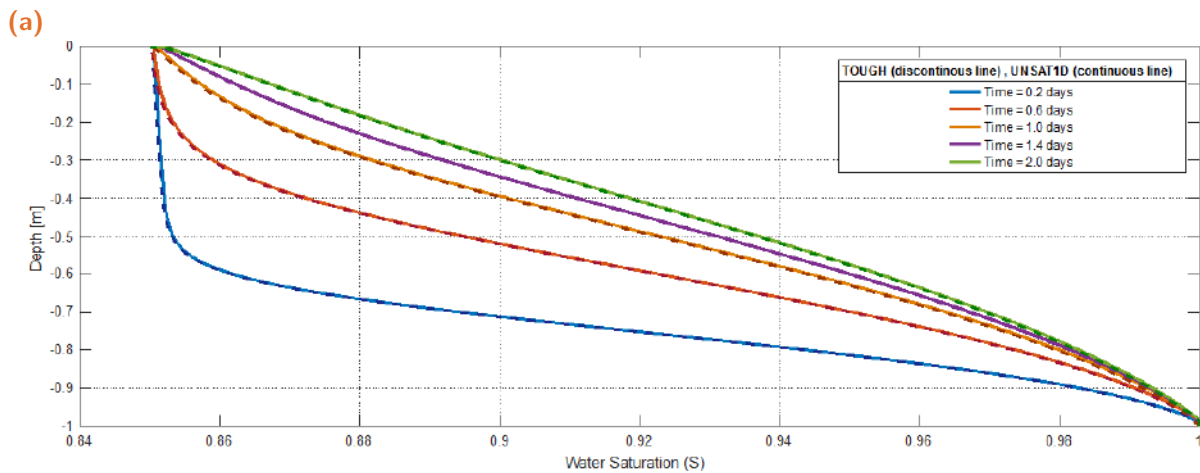
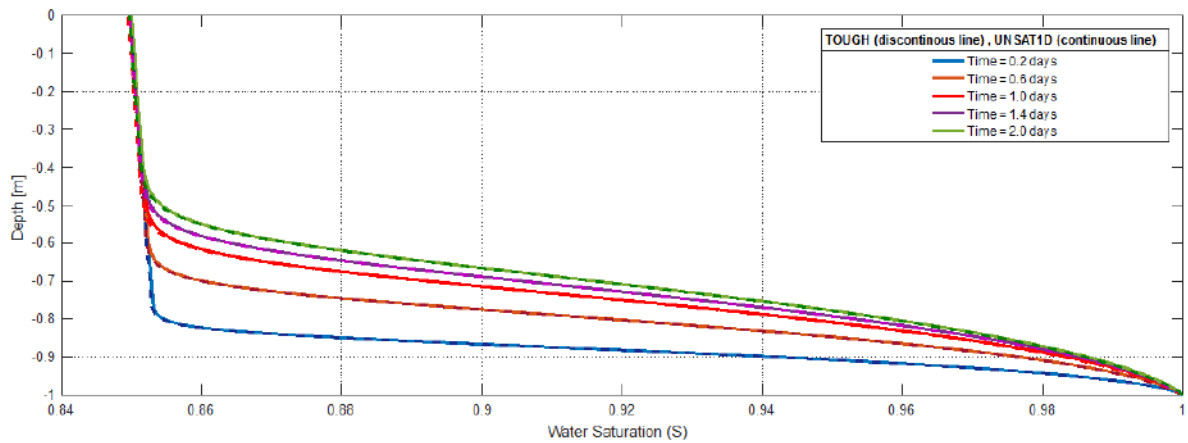


**Figure 2.11 :** Comparaisons des résultats des simulations de la remontée capillaire dans l'argile avec et sans pression d'entrée capillaire ( $P_{c,e} = 196$  Pa et  $P_{c,e} = 0$ ). (a,b) : comparaison des profils de saturation en eau  $S_l(z, t)$  aux temps  $t = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.2, 1.4, 1.6, 1.8, 2.0$  jours ; (a) Sans pression d'entrée, et (b) Avec pression d'entrée ; (c) Comparaison de l'évolution temporelle du flux de masse  $Q(t)$  [ $\text{kg}/\text{s}$ ] sans pression d'entrée et avec pression d'entrée.



**Figure 2.12 :** Comparaison de l'évolution du flux de la remonté capillaire  $Q(t)$  au fond de la colonne dans le sol "Clay 12". Trois jeux de simulations sont comparés (avec des couleurs différentes) : code BIGFLOW 3D, code Matlab UNSAT 1D, et code iTOUGH2-EOS3. La pression d'entrée capillaire est prise nulle dans ces trois simulations ( $P_{c,e} = 0$ ).

La figure (2.12) compare les flux  $Q(t)$  de remontée capillaire en bas de la colonne d'argile, simulés par les trois codes avec une pression d'entrée nulle  $P_{c,e} = 0$ . La différence entre les trois codes est acceptable. Les trois codes présentent la même tendance de décroissance cubique, qui tend vers une valeur finie du flux. Par ailleurs, les profils montrés dans la figure (2.14) présentent une comparaison entre les deux codes UNSAT1D et iTOUGH2-EOS3 pour des simulations avec et sans pression d'entrée :  $P_{c,e} = 0$ , et  $P_{c,e} = 196$  Pa. Les deux codes obtiennent les mêmes résultats : augmentation de la position du front de saturation dans le cas de la pression d'entrée non nulle. La comparaison entre les différentes courbes et les tendances observées sur l'effet d'une pression d'entrée non nulle confirment la bonne implémentation de la pression d'entrée dans le code iTOUGH2-EOS3.



(b)

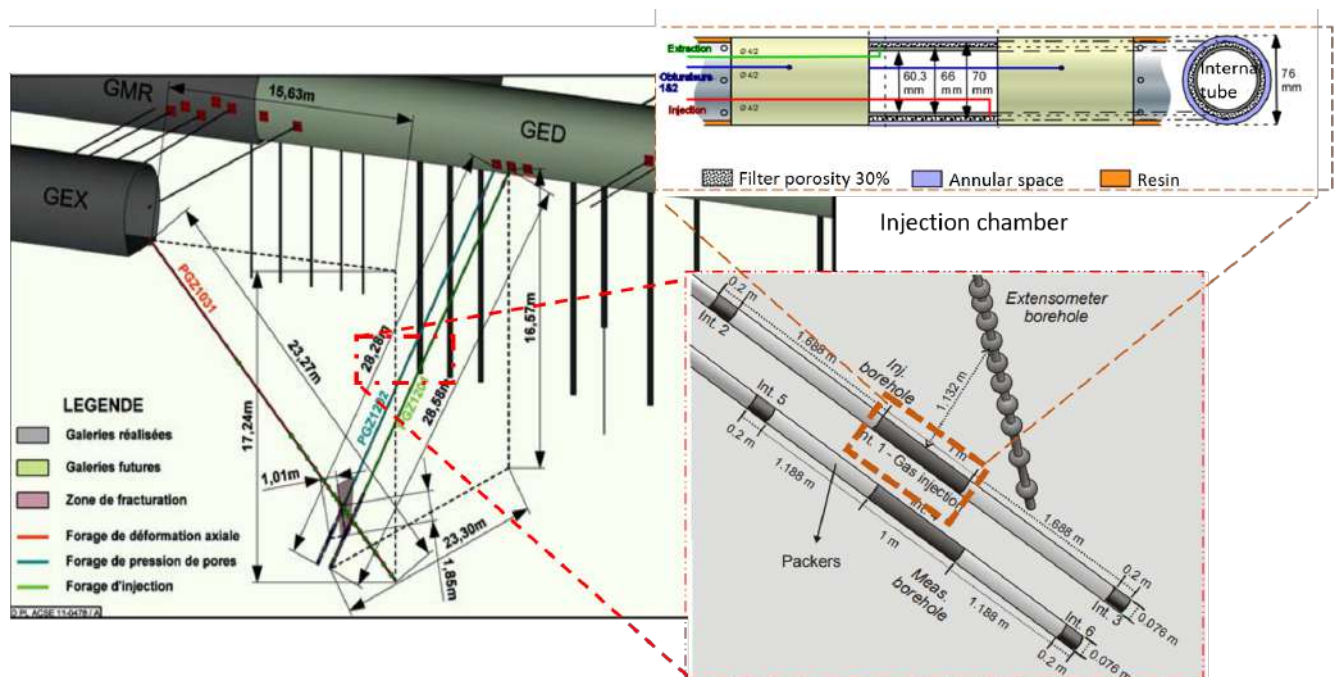
**Figure 2.14** : Comparaison des profils de saturation en eau  $S(z,t)$  pour  $t = 0.2, 0.6, 1.0, 1.4, 2.0$  jours issus des résultats de simulation par le code UNSAT1D et le code iTOUGH2-EOS3. (a) Simulations avec une pression d'entrée nulle. (b) Simulations avec une pression d'entrée non nulle ( $P_{c,e} = 196$  Pa).

## 2.2.4 Conclusion

Le modèle de pression d'entrée non nulle (VGMPE) formulé dans la section (2.1.2) a été implémenté dans les codes de calcul UNSAT1D et le code iTOUGH2-EOS3. Les tests de validation et de vérification ont montré la validité des nouvelles modifications apportées au code iTOUGH2-EOS3. Les résultats de simulation du test de Vogel et al. (2001) [134] ont confirmé l'effet non négligeable d'une pression d'entrée non nulle sur les résultats de simulation de transfert de l'eau en régime monophasique. Le calcul en milieu biphasique avec la nouvelle version du code EOS3-PE sera validée à travers la modélisation de l'expérience PGZ1–GAZ dans la section suivante.

## 2.3 Modélisation de l'expérience PGZ1-GAZ

Dans cette partie, on s'intéresse à l'effet de la pression d'entrée capillaire sur la modélisation de transfert des gaz dans les argiles du CO<sub>x</sub> saturées. Cette étude est basée sur la modélisation de l'expérience PGZ1-GAZ (De la Vaissière et al. (2014) [38]) conduite par l'ANDRA dans le laboratoire souterrain de Bure situé en Meuse/Haute-Marne (France). Cette expérience a pour objectif la caractérisation des mécanismes et des propriétés de transferts des gaz dans la formation argileuse du CO<sub>x</sub>. Il s'agit également de tester la validité et les limites du modèle de transfert biphasique bi-composant développé dans cette étude.



**Figure 2.15** : schématisation des galeries et des conduites dans le laboratoire souterrain de Bure avec un zoom sur la conduite de l'expérience PGZ1-GAZ et la chambre d'injection [37], [38].

Les simulations numériques avec les deux modèles de propriétés hydrauliques du CO<sub>x</sub> et de l'EDZ, VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et VGMPE ( $P_{c,e} = 1.997$  MPa) décrite dans le paragraphe 1.1.3.3 (Fig 1.5, Tableau 1.1), seront comparées, et l'effet de la pression d'entrée sur le transfert de gaz dans l'argile du CO<sub>x</sub> saturée (ou quasi-saturée) sera discuté.

### 2.3.1 Description du protocole expérimental

L'expérience PGZ1-GAZ consiste en 2 forages parallèles (PGZ1201, PGZ1202) et un forage incliné PGZ1031 comme illustré dans la figure (2.16) dont les caractéristiques sont décrites ci-dessous [55] :

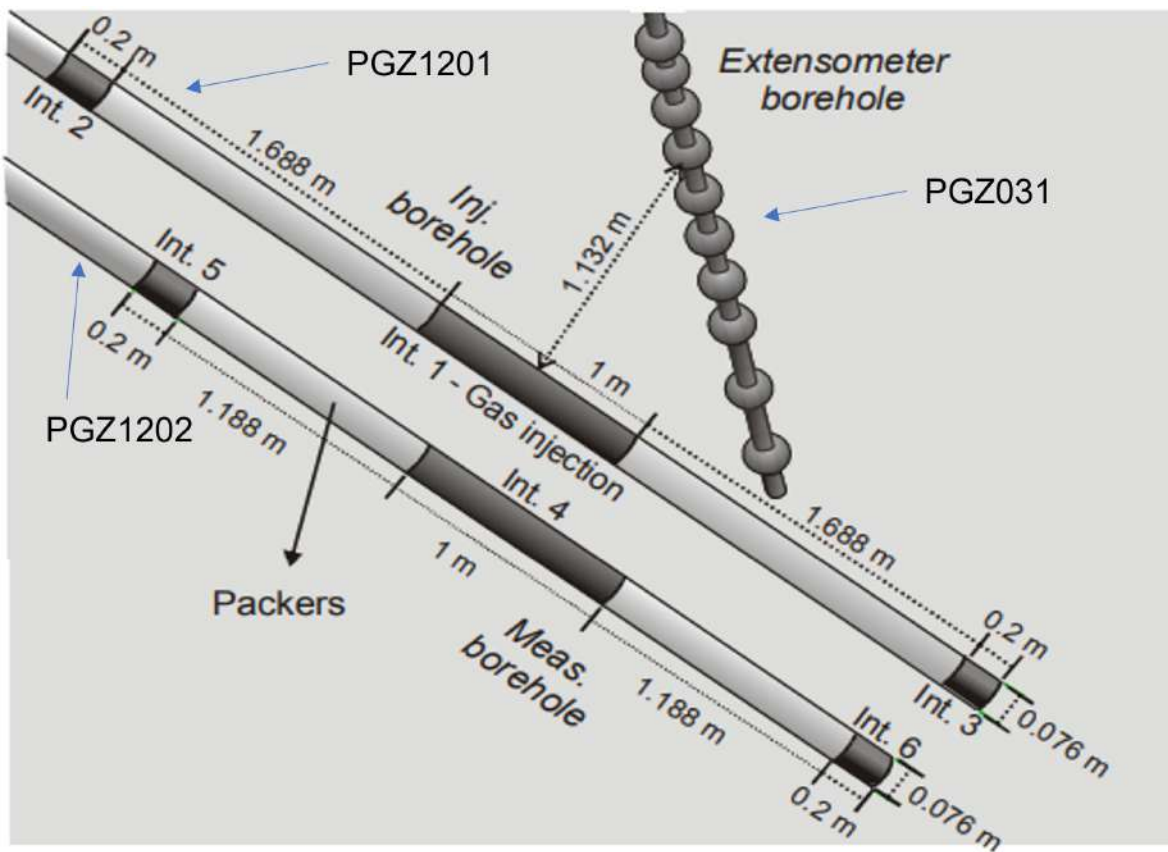


Figure 2.16 : Les trois forages installés dans l'expérience PGZ1-GAZ [55].

**PGZ1201** : Forage de longueur 28.6 m, et d'inclinaison 35°, dédié à l'injection du gaz. La chambre d'injection de gaz se situe à l'intervalle 2 (PGZ1201\_PRE02) du forage. Deux autres intervalles notés PGZ1201\_PRE01 et PGZ1201\_PRE03 sont dédiés à la mesure de la pression interstitielle de l'eau.

**PGZ1202** : Forage d'observation de longueur 28.3 m, incliné de 35° (parallèle à PGZ1201), et constitué de 3 intervalles pour la mesure de la pression de l'eau et de la pression du gaz.

**PGZ1202** : Forage qui passe au-dessus des forages PGZ1201 et PGZ1202 ; il est équipé par des extensomètres magnétiques pour mesurer les déplacements dans l'axe du forage.

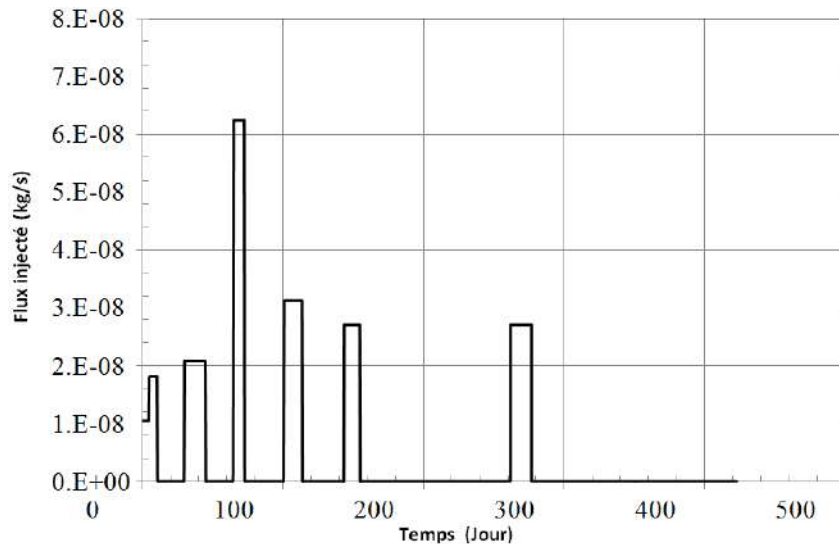


Figure 2.17 : Flux d'injection de l'azote  $N_2$  gazeux au cours de l'expérience PGZ1-GAZ [73].

Les forages ont été réalisés et aménagés en juillet 2009. Un premier test hydraulique (HYDRO1) a été effectué sur l'intervalle PGZ1201 en septembre 2009. La phase d'injection GAZ1 a débuté en février 2010 et s'est achevée en mai 2011. Elle comprenait six phases d'injection de débits constants de gaz, chacun d'une durée de plusieurs jours (7 à 15), suivis de phases de récupération de la pression (chacune de 19 à 146 jours). La Figure (2.17) donne un historique de la phase d'injection de l'azote  $N_2$ . Durant la phase d'injection, la pression de ce gaz dans la chambre (Intervalle 2 du forage PGZ1201) a été mesurée.

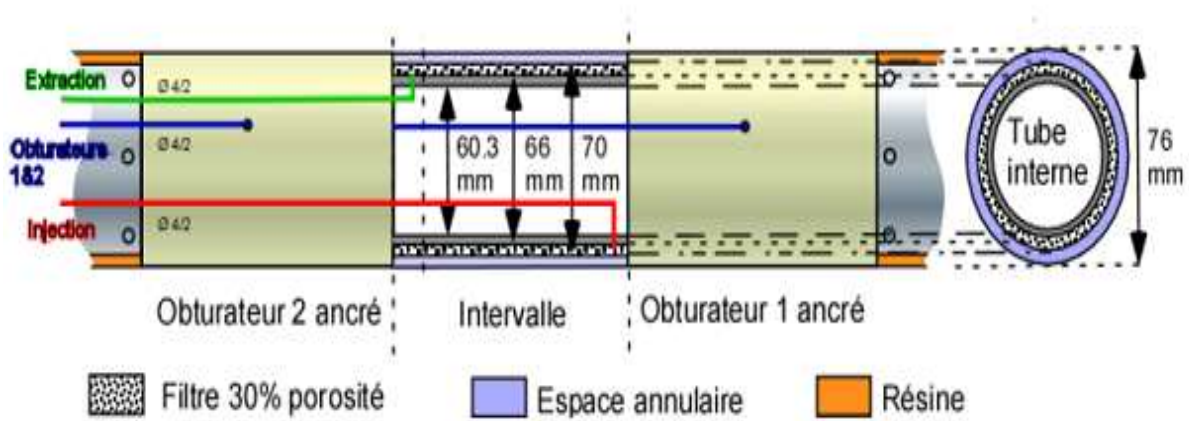


Figure 2.18 : Schématisation de la chambre d'injection de gaz [73].

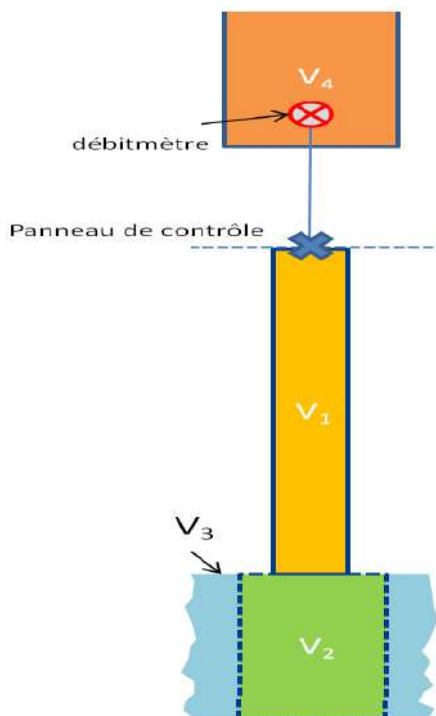
Techniquement, l'injection de gaz s'est effectuée par le tube rouge (figure 2.18), à travers un filtre d'une porosité de 30%, dans l'espace annulaire entre le filtre et la roche. Il faut noter qu'il y aura une convergence de la roche au niveau du filtre ; cette convergence est freinée par les packers de compressibilité maximale de 2% à 3%. Dans



l'hypothèse d'un milieu indéformable, on néglige la convergence de la roche. La porosité équivalente de la chambre  $\phi_{eq}$  est alors calculée comme suit :

$$\phi_{eq} = \frac{1}{V_{géométrique}} \sum_{i=1}^4 V_i \quad (2.28)$$

Le volume total de la chambre accessible au gaz est de  $1584 \text{ cm}^3$ , il est calculé en sommant les volumes des 4 éléments qui constituent la chambre d'injection, comme illustré dans la figure (2.19).



$V_1 = 24 \text{ cm}^3$  : volume du tube de gaz entre le débitmètre et le panneau de contrôle.

$V_2 = 580 \text{ cm}^3$  : volume des lignes hydrauliques qui relient le panneau de contrôle à l'intervalle 2.

$V_3 = 200 \text{ cm}^3$  : volume de la partie d'injection (filtre+tube interne) .

$V_4 = 780 \text{ cm}^3$  : volume entre le filtre et la roche (espace annulaire), c'est un volume variable à cause de la convergence de la roche

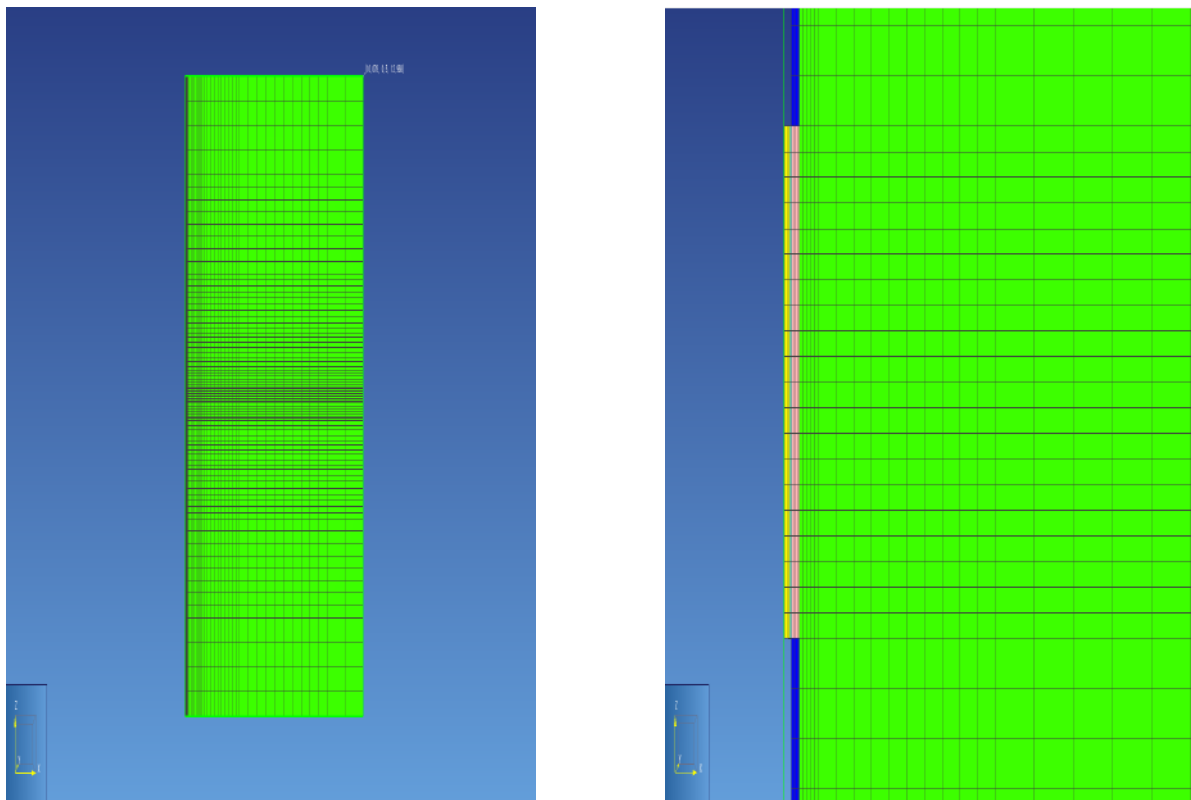
Figure 2.19 : Description des éléments constituant l'intervalle 2 d'injection de gaz [73].

### 2.3.2 Modèle géométrique

Le tableau 2.6 fournit plus de détails sur les différents composants du forage PGZ1201, et présente la géométrie des domaines modélisés et les approximations réalisées pour décrire leurs propriétés hydrauliques.

élément	état réel	état modélisé
Chambre	Un intervalle de 1 m constitué d'un filtre d'une porosité de 30%, d'un espace annulaire (vide) et d'une conduite interne en acier imperméable.	Un milieu poreux équivalent caractérisé par une courbe de rétention capillaire $S_l(P_c)$ , $k_{r,l}(P_c)$ , $k_{r,g}(P_c)$ et une porosité équivalente $\phi_{eq}$ .
Packers	En acier inoxydable, conçus pour une différence de pression de 18 MPa dans un forage de 76 mm.	Les packers sont remplacés par une condition à la limite d'un flux nul à cause de leur très faible perméabilité.
La roche	Distinction entre la roche intacte du COx et son EDZ d'épaisseur 4 cm.	Les propriétés hydrauliques sont celles obtenues par l'ajustement des données mesurées (Voir tableau 2.2). La partie modélisée de la roche est sous forme d'un cylindre de hauteur $h=12.968$ m et de rayon $R=7.3$ m.

**Tableau 2.6** : Présentation des éléments modélisés dans l'expérience PGZ1-GAZ.

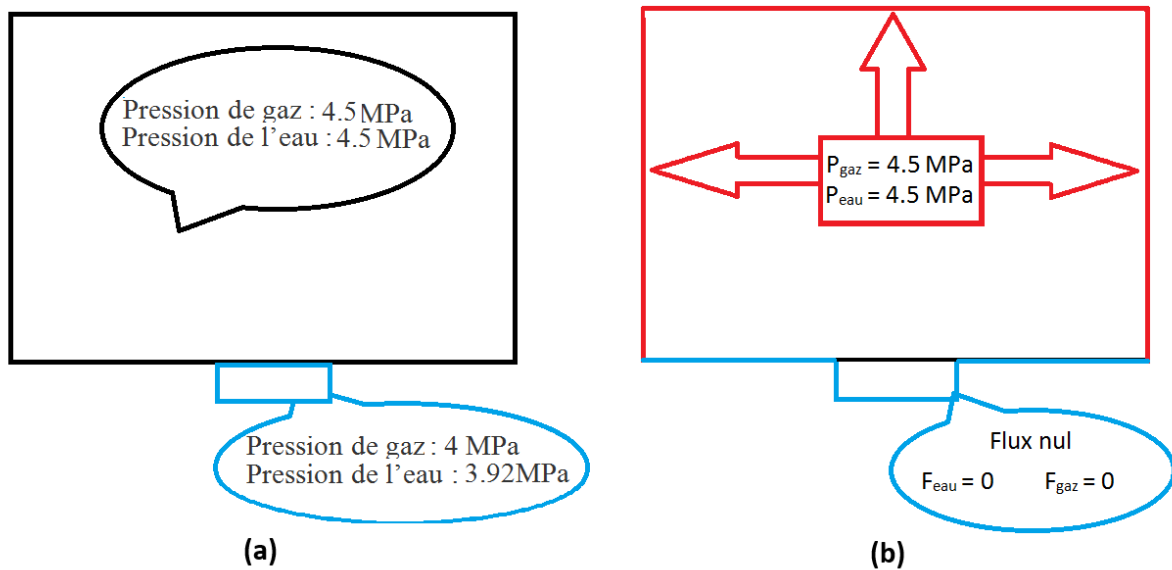


**Figure 2.20** : Visualisation sous PetraSim de la géométrie radiale 2D discrétisée par MESHMAKER (à gauche) et zoom sur le maillage de la chambre en jaune et de l'EDZ en magenta (en face de la chambre) et en bleu (en face des packers).



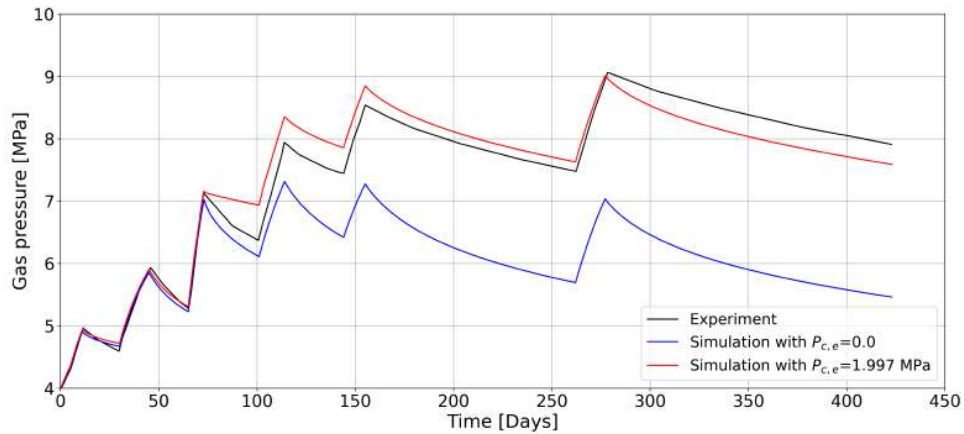
Vue l'étendu du domaine, on néglige l'effet gravitaire face à l'effet capillaire, et on considère une géométrie 2D axi-symétrique autour de l'axe Oz. Le maillage quadrilatéral rectangulaire développé est présenté dans la figure 2.20, il est composé de 5229 éléments, plus serré (plus raffiné) au niveau de la chambre et l'EDZ. Le pas de temps maximal est de 9600 s.

Initialement, la roche est supposée saturée en eau, avec une pression lithostatique de 4.5 MPa. D'après De la Vaissière et al. (2014) [38], le volume d'eau initialement injecté dans la chambre correspond à une saturation en eau de 0.225, et la pression de gaz est égale à 4 MPa (voir figure 2.21.a). Des conditions aux limites de type Dirichlet de pression de gaz égale à 4.5 MPa ont été imposées sur le côté latéral du domaine de rayon R=10 m. Enfin, des conditions de type Neumann, de flux nul, ont été fixée tout au long des frontières des bases du domaine cylindrique de hauteur h= 12 m (voir figure 2.21.b).

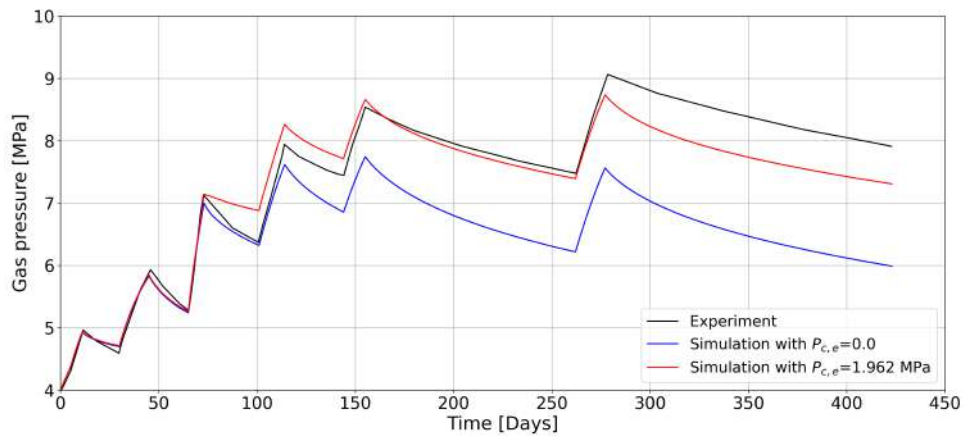


**Figure 2.21 :** (a) Conditions initiales, et (b) conditions aux limites considérées pour la modélisation de l'expérience PGZ1-GAZ.

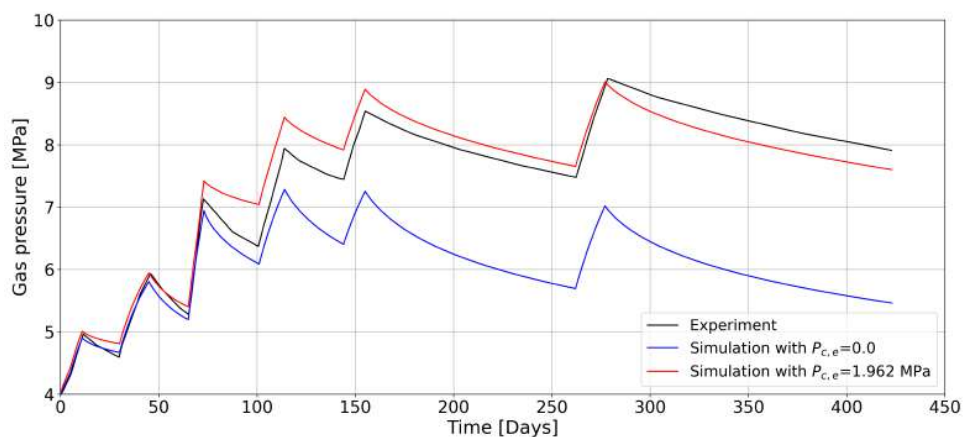
### 2.3.3 Résultats des simulations PGZ1-GAZ



(a) Méthode  $P_c$  avec les paramètres issus de l'optimisation (SOF)



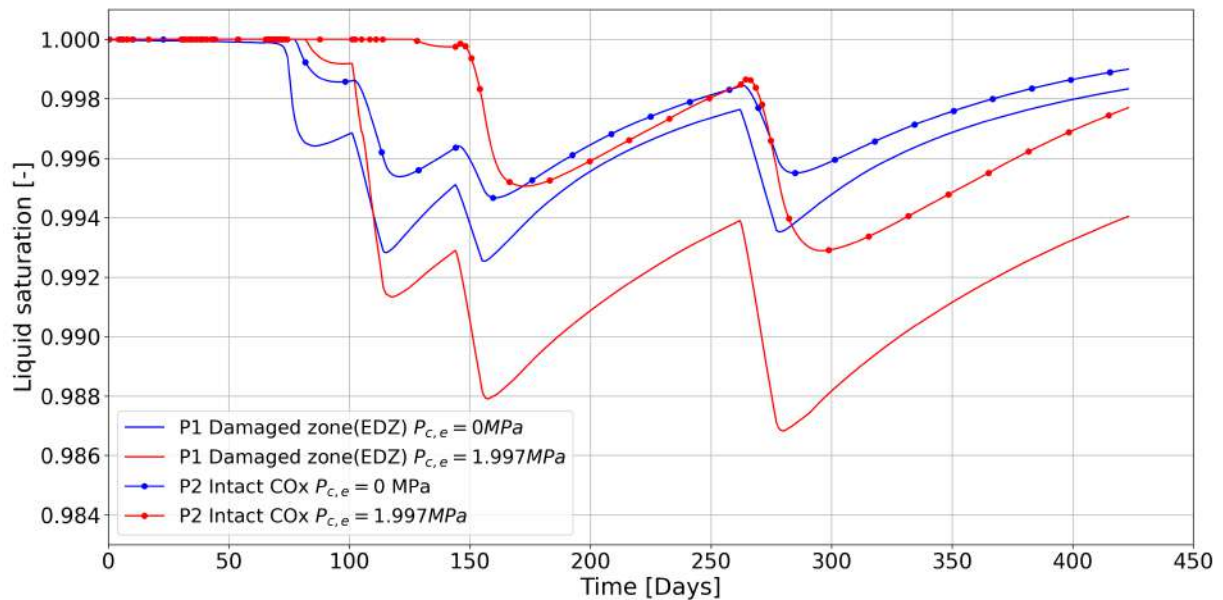
(b) Méthode  $P_c$  avec les paramètres issus de l'optimisation (MOF)



(c) Méthode  $S_g$  avec les paramètres issus de l'optimisation (SOF)

**Figure 2.22 :** Comparaison entre les variations temporelles des données expérimentales et les simulations numériques de la pression de gaz dans la chambre (a) Méthode  $P_c$  avec des paramètres hydrauliques optimisés par la méthode mono-objectif. (b) Méthode  $P_c$  avec des paramètres hydrauliques optimisés par la méthode multi-objectif. (c) Méthode  $S_g$  avec des paramètres hydrauliques optimisés par la méthode mono-objectif

La figure (2.22) présente les résultats de simulation de la variation de pression de gaz dans la chambre, et la variation de pression mesurée dans la chambre. L'accord entre les deux méthodes de résolution, méthode- $S_g$  (figure (2.22).a) et méthode- $P_c$  (figure (2.22).c) est remarquable. On n'observe pas de différences notables entre les courbes de pression de gaz calculées par les paramètres hydrodynamiques du COx optimisées par les deux méthodes SOF (figure (2.22).a) et MOF (figure (2.22).b).

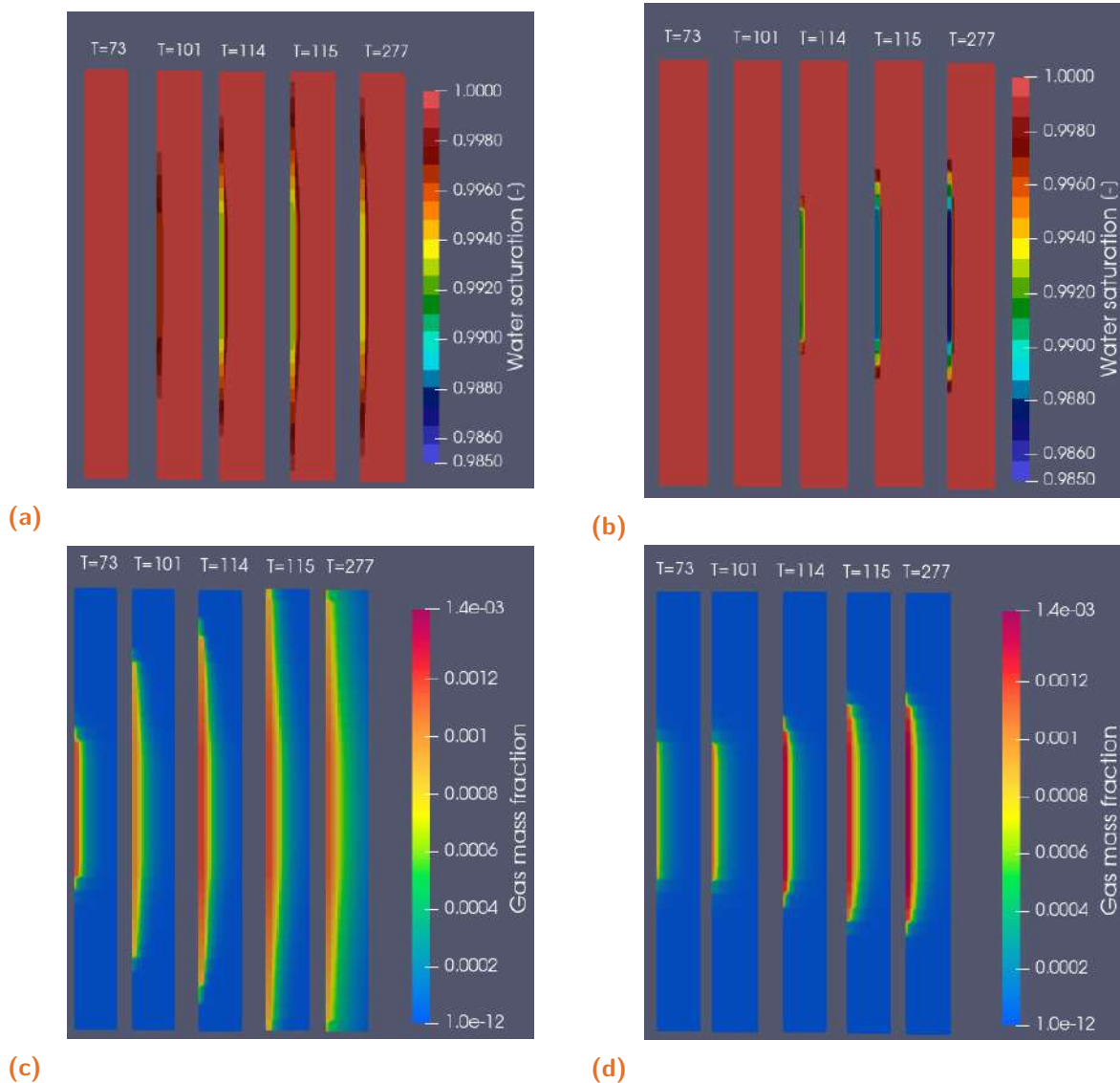


**Figure 2.23 :** Evolutions temporelles de la saturation en eau aux points P1 et P2, simulées avec les modèles VGM ( $P_{c,e}=0$ ) et avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e}=1.997$  MPa). P1 et P2 sont deux mailles adjacentes. P1 est dans l'EDZ, tandis que P2 est dans la roche intacte du COx.

Initialement, les deux modèles VGM ( $P_{c,e}=0$ ) et VGMPE ( $P_{c,e}=1.997$  MPa) présentent une simulation de la pression de gaz dans la chambre en accord avec les données expérimentales jusqu'à  $t=73$  days (les trois premiers pics). Au-delà du troisième pic, le modèle VGMPE simule une pression de gaz plus élevée que celle calculée par VGM et s'approche d'autant plus de la pression de gaz mesurée dans la chambre. Cet écart s'observe dès que le gaz commence à pénétrer dans la roche dans le cas du modèle VGM. En effet, le modèle VGM ( $P_{c,e}=0$ ) simule une pénétration rapide de gaz dans la roche, ce qui explique la dé-saturation prématurée de la roche au point P1 (Figure 2.23). Tandis que la dé-saturation de la roche simulée avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e}=1.997$  MPa) est retardée, puisqu'elle nécessite une montée en pression plus importante afin de franchir le seuil de pression capillaire d'entrée  $P_{c,e}$ .

Il faut noter l'importance de cette dé-saturation dans le cas du modèle VGMPE, ce qui atteste d'un effet piston du gaz sur l'écoulement de l'eau plus important que celui simulé par le modèle VGM. Ceci est dû à l'accumulation d'une grande quantité de gaz à

l'interface chambre/EDZ, avec une EDZ caractérisée par une perméabilité relative à l'eau plus élevée dans le cas du modèle VGMPE que dans le cas du modèle VGM (figure 2.5).



**Figure 2.24 :** Distributions spatiales de la saturation en eau (figures (a,b)) et de la fraction molaire de l'azote gazeux dissout dans l'eau (figures (c,d)), simulées aux différents temps  $T$  [jours]. À gauche les sous figures (a,c) sont relatives aux simulations avec le modèle VGM ( $P_{c,e}=0$ ). À droite les sous figures (b,d) sont relatives aux simulations avec le modèle VGMPE ( $P_{c,e}=1.997$  MPa).

Les distributions spatiales de la saturation en eau (Figures 2.24.a, 2.24.b) et de la fraction molaire de  $N_2$  dissout dans l'eau (Figures 2.24.c, 2.24.d) confirment que initialement, le gaz ne migre dans le COx que par diffusion pour les deux modèles VGM et VGMPE, et que ce transfert par diffusion prend un temps plus long pour le modèle VGMPE (110 jours) que pour le modèle VGM ( $t=73$  jours). Ce mode de transfert est dû aux conditions initiales avec une pression de gaz dans la chambre de 3.92 MPa et une pression d'eau plus élevée dans la roche de 4.5 MPa.

En se basant sur les figures (2.24.a, 2.24.c et 2.23), on peut conclure, que pour le modèle VGM ( $P_{c,e}=0$ ) le transfert de fluide s'effectue uniquement par diffusion jusqu'à ce qu'une quantité du gaz dissoute génère une pression partielle de gaz (loi de Henry (1.15)) supérieure à la valeur  $P_l - P_{sat}(T)$ . Tandis que pour le modèle VGMPE, un seuil supplémentaire de la pression d'entrée s'ajoute à cet équilibre, et pour que le gaz puisse pénétrer dans la cellule saturée, il faut que la quantité de gaz dissout vérifie l'équation (2.27).

Des simulations numériques ont été réalisées pour l'étude de la sensibilité du maillage et pour la comparaison des deux méthodes de résolution. Pour cela, trois maillages de 1976, 2917, et 5230 éléments ont été testés. Aucune différence entre les résultats des simulations avec 3 maillages n'a été détectée. Toutefois une différence significative a été observée sur le temps de calcul (CPU) et sur le nombre total des itérations de Newton, comme illustré dans les tableaux (2.7, 2.8).

Maillage \ Méthode	Méthode $P_c$		Méthode $S_g$	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
1976 éléments	770	1381	856	501
2917 éléments	1428	2154	1522	818
5230 éléments	2820	4076	5338	2580

**Tableau 2.7 :** Comparaison des temps de calcul (CPU) [s] pour les deux méthodes  $P_c$  et  $S_g$  et avec les deux modèles VGM et VGMPE.

Maillage \ Méthode	Méthode $P_c$		Méthode $S_g$	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
1976 éléments	6914	8840	7107	5105
2917 éléments	6822	8780	7266	5286
5230 éléments	6960	9624	10240	7485

**Tableau 2.8 :** Comparaison des nombres de pas de temps pour les deux méthodes  $P_c$  et  $S_g$  et avec les deux modèles VGM et VGMPE.

Maillage \ Méthode	Méthode $P_c$		Méthode $S_g$	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
1976 éléments	41759	55087	44696	24742
2917 éléments	40986	61903	48430	27621
5230 éléments	43239	73333	98420	63560

**Tableau 2.9 :** Comparaison des nombres totaux des itérations de Newton-Raphson pour les deux méthodes  $P_c$  et  $S_g$  et avec les deux modèles VGM et VGMPE.

D'après la comparaison des trois tableaux (2.7, 2.8, 2.9) on peut dire que la méthode SG représente un choix pragmatique en terme de simulation avec une pression d'entrée non nulle. Ainsi l'introduction de la pression d'entrée améliore drastiquement les temps de calculs pour les trois maillages testés. Tandis que la méthode  $PC$  est plus performante en pression d'entrée nulle. Mais l'introduction d'une pression d'entrée dans la méthode (PC) augmente le temps de calcul et les itérations de Newton-Raphson.

### 2.3.4 Conclusion

Les simulations numériques de l'expérience PGZ1-GAZ ont montré que le modèle VGM ( $P_{c,e}=0$ ) sous-estime largement la pression de gaz mesurée dans la chambre, et permet un passage rapide du gaz dans le COx. Toutefois, le modèle VGMPE avec un seuil de pression capillaire ( $P_{c,e}=1.997$  MPa), limite le transfert de gaz dans la roche et présente des résultats plus proches des données expérimentales. L'écart observé entre les pressions de gaz mesurées et simulées par le modèle durant la période 73-250 jours peut être expliqué par le fait de considérer la même paramétrisation hydrodynamique de l'EDZ et de la roche hôte. Toutefois, cette différence n'est pas notable par rapport aux incertitudes dues aux mesures de la pression de gaz.

A la lumière de cette analyse, et indépendamment des mesures expérimentales, on peut conclure que l'introduction d'une pression d'entrée non nulle dans un modèle de migration du gaz dans l'argile du COx saturée, impacte significativement les résultats de la simulation. En effet, dans un milieu saturé en eau, une pression d'entrée non nulle impose un seuil d'entrée au gaz et tolère une quantité de gaz dissoute plus élevée. Cette modification du mécanisme de transfert par diffusion et par advection peut induire une montée en pression significative à l'amont de la roche.

Dans le cadre du stockage des déchets radioactifs, le flux de gaz issu d'une simulation avec une pression d'entrée non nulle peut amplifier le phénomène de l'effet piston du gaz dans les galeries d'accès et les galeries principales dans une installation de

stockage (Saadi et al. (2020) [118]). De plus, les différents seuils de pression capillaires d'entrée pour différents matériaux des barrières ouvragées (qui restent à prendre en compte explicitement) vont conditionner un chemin préférentiel des gaz, et ainsi favoriser le transfert des radionucléides vers les puits de sorties de l'installation.

## 2.4 Conclusions

Ce chapitre présente une étude complète sur l'effet de l'introduction de la pression d'entrée sur la simulation numérique de transfert des gaz en milieu argileux initialement saturé en eau. Un modèle de courbes de rétention et de perméabilités relatives à l'eau et au gaz a été établi. Deux méthodes d'ajustement des paramètres de ce nouveau modèle ont été étudiées, et deux approches numérique de modélisation de la pression d'entrée dans le code iTOUGH2 ont été implémentées. Après des tests de vérification et de validation, à travers des comparaisons avec une solution semi-analytique et d'autres codes de calcul en monophasique, l'expérience PGZ1-GAZ a été modélisée. Cette démarche nous a permis de conclure que :

- Le nouveau modèle VGMPE développé sur la base de l'approche de Vogel et al. (2001) [134] a permis de mieux reproduire les mesures expérimentales des courbes de rétention et des perméabilités relatives à l'eau et au gaz du CO<sub>x</sub>, mettant en évidence une perméabilité à l'eau du CO<sub>x</sub> plus élevée au voisinage de la saturation totale en eau ;
- La comparaison des deux méthodes d'ajustement (SOF, MOF) des données expérimentales (courbes de rétention, perméabilité à l'eau et perméabilité au gaz) permet de conclure qu'un ajustement MOF est nettement meilleur qu'un ajustement SOF par le code RETC. Toutefois, la méthode MOF présente l'inconvénient de la non unicité de la solution, et qu'il faudra faire un choix pour déterminer une solution possible. En plus, la méthode MOF est plus coûteuse en temps de calcul ;
- La comparaison des solutions issues des deux approches numériques (Méthode- $P_c$  et Méthode- $S_g$ ) avec d'autres codes (Unsat1D et BIGFLOW 3D), et avec la solution semi-analytique de Philip (1957) [105] confirme l'adéquation des modifications apportées au code iTOUGH2 et la validité des deux approches numériques ;
- Le modèle VGM présente une forte sensibilité de la perméabilité relative à l'eau au voisinage de la saturation. Ainsi, dans le cas où la courbe de rétention est utilisée pour paramétrer les courbes de perméabilités relatives suivant le modèle VGM, une sous estimation de la perméabilité relative peut induire à des écarts dans les résultats des simulations numériques ;
- La pression d'entrée  $P_{c,e}$  est un paramètre clé dans les transferts des gaz dans les milieux saturés.



Dans un système multibarrière, comme dans le cas d'un stockage de déchets radioactifs, où différents matériaux seront mis en jeu, le seuil de la pression d'entrée sera un phénomène qui accentuera le confinement des gaz et le transport à travers les matériaux les plus perméables. En effet, si la perméabilité d'un matériau poreux contrôle la cinétique de transfert des fluides, le seuil de la pression d'entrée contrôlera la pénétration du gaz dans chaque élément de volume de ce matériau. Par exemple, si la pression d'entrée dans les argiles est de 2 MPa, et la pression d'entrée dans la bentonite est de 1 MPa, le gaz commencera à pénétrer premièrement dans la bentonite, et suivant la capacité de transfert de gaz dans la bentonite et la montée en pression du gaz au voisinage de l'argile du CO<sub>x</sub>, le gaz pourra ou non dépasser la pression seuil et pénétrer dans l'argile du CO<sub>x</sub>.





# Parametric Sensitivity to Gas Entry Pressure in Two-Phase Flow Models for Deep Geologic Disposal of Radioactive Waste

(Article submitted for publication, currently under review, 2021)

## Overview :

In a Deep Geological Repository (DGR) for the long-term containment of radioactive waste, the engineered barriers and host clay rock inhibit the migration of gases, due to their low permeability and high gas entry pressure. Some experiments in the literature have focused on the measurement of gas entry pressure ( $P_{g,e}$ ), but there is a lack of 2-phase flow (water – gas) modeling studies that include entry pressure effects in such porous media. In the present work, the modified Van Genuchten-Mualem model (Vogel et al. 2001) is extended to two-phase flow, incorporating the capillary entry pressure parameter ( $P_{c,e}$ ), and a new data analysis approach is developed in order to characterize the water-gas constitutive relations (saturation curve, water permeability curve, gas permeability curve). This constitutive model is then implemented in the iTOUGH2 code [135] with a change of primary variables to be described below (capillary pressure is set as primary state variable instead of gas saturation). After regression tests for verifying the change of primary variables in iTOUGH2, two problems were modeled : first, numerical flow experiments were performed in a clay soil (code-to-code benchmark tests, and comparisons focused on entry pressure effects) ; secondly, water-gas migration was modeled based on an in-situ gas injection experiment (PGZ1) performed in the French URL (Underground Research Laboratory) of Bure. Sensitivity analyses show that gas entry pressure is an important controlling factor which should not be neglected in simulations of gas migration in clayey materials. Two-phase flow model, porous media, clayey materials, entry pressure, gas injection, deep geological disposal of radioactive waste

## Introduction et résumé en français

TITRE : Sensibilité Paramétrique à la Pression d'Entrée de Gaz dans les Modèles Diphasiques d'Écoulements pour le Stockage Géologique Profond de Déchets Radioactifs.

*Ce chapitre reprend en partie certains développements discutés dans le chapitre précédent ; il est rédigé en anglais ; il s'agit d'un article soumis pour publication, actuellement en cours de revue, 2021.*

Dans le cas d'une installation de stockage géologique profond de déchets radioactifs, destinée à isoler à long terme les déchets radioactifs Haute Activité (HA) et Moyenne Activité Vie Longue (MAVL), les barrières ouvragées et la roche hôte (roche argileuse du Callovo-Oxfordien dans le cas du projet français) ont pour fonction de contenir les radionucléides, et notamment, d'inhiber la migration des gaz qui peuvent se dégager au niveau des conteneurs ("colis"), par corrosion et autres processus physico-chimiques.

Ces barrières ouvragées, et la roche hôte elle-même, sont des milieux poreux de faible perméabilité. Ils ont également une autre propriété (souhaitable) : une pression capillaire d'entrée relativement élevée – et par conséquent une pression d'entrée de gaz élevée qui peut contribuer à inhiber la migration des gaz.

Plusieurs études expérimentales dans la littérature ont été consacrées à la mesure de pression d'entrée de gaz  $P_{g,e}$  dans les milieux poreux (notamment argileux), mais il y a eu peu de développements en matière de simulation des écoulements diphasiques eau-gaz prenant en compte les effets de pression d'entrée dans de tels milieux poreux argileux et/ou peu perméables, ce qui est l'objet du présent chapitre.

Dans le présent travail, le modèle modifié de Van Genuchten-Mualem (Vogel et al. 2001), qui caractérise le milieu poreux en termes de courbes de rétention et de perméabilité(s), est étendu au cas des écoulements diphasiques (eau-gaz), en y incorporant de plus le paramètre de pression d'entrée capillaire ( $P_{c,e}$ ). On a vu dans le chapitre précédent (2), qu'un changement de variables primaires était nécessaire en présence d'une pression d'entrée capillaire ( $P_{c,e}$ ). Ce changement de variable est à nouveau discuté dans ce chapitre.

Une nouvelle approche d'analyse de données est développée pour caractériser les paramètres des relations constitutives eau-gaz (courbe de rétention d'eau ou de saturation, courbe de perméabilité à l'eau, courbe de perméabilité au gaz, toutes fonction de la pression capillaire).

Ce modèle constitutif est ensuite mis en oeuvre dans le code de calcul iTOUGH2 [135], dans lequel on introduit une modification des variables primaires comme décrit

dans la suite de ce chapitre (en bref, la pression capillaire est retenue comme l'une des variables primaires au lieu de la saturation en gaz).

Après des tests de "régression" destiné à vérifier notamment le changement de variables primaires que nous avons effectué dans le code iTOUGH2, deux types d'expériences numériques sont réalisées. La première est un ensemble de benchmarks code-à-code consistant en la simulation d'un écoulement eau-air dans une colonne d'argile, avec comparaisons entre codes de calcul, et analyse des effets de pression d'entrée (simulations avec ou sans pression d'entrée). La seconde consiste en la modélisation diphasique eau-gaz, avec notre version modifiée du code iTOUGH2, d'une expérience in-situ d'injection de gaz (azote) dans la roche argileuse du COx (Callovo-Oxfordien) au laboratoire souterrain de Bure : expérience "PGZ1-GAS".

Les résultats de simulations sont exprimés notamment sous la forme de signaux de pression de gaz  $P_{Gas}(t)$  et de distributions spatiales du taux de saturation en eau et de la fraction de masse du gaz dissout, avec ou sans le paramètre de pression d'entrée. Les analyses des résultats, et notamment, les analyses de sensibilité, montrent que la pression capillaire d'entrée est un paramètre important qui contrôle une partie des processus de migration de gaz et qui ne devrait pas être négligé dans les modélisations de migration de gaz en milieu argileux souterrain.

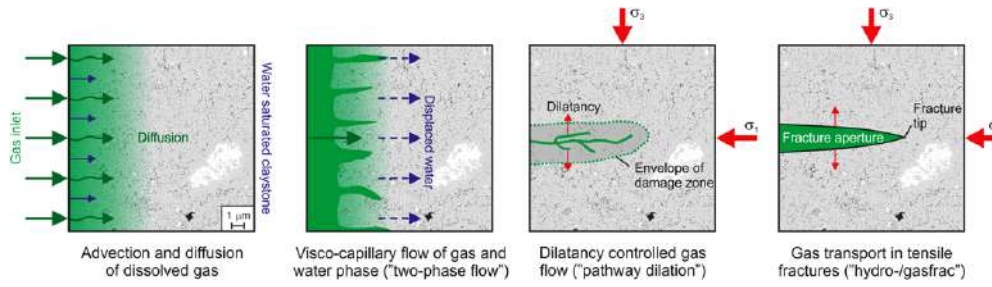
*Mots-Clefs* : Milieux poreux ; Modèle d'écoulement diphasique eau-gaz ; Matériaux argileux ; Pression capillaire ; Pression d'entrée ; Injection de gaz ; Hydrogène ; Stockage géologique profond de déchets radioactifs.

## 3.1 Introduction

### 3.1.1 Mechanisms of gas transport in low permeability porous media

After closure of a Deep Geological Repository (DGR), significant amounts of gases, mainly hydrogen ( $H_2$ ), are expected to be produced through a number of processes including anaerobic corrosion of the metallic components used in the repository design, water radiolysis, and degradation of organic materials. Consequently, the rise of gas pressure could affect the post-closure phase safety of the waste repository.

A number of in-situ and laboratory experiments were developed and investigated in order to understand the key mechanisms of gas migration in clayey materials [34], [39], [90]. Four types of gas migration mechanisms are usually identified for gas transport



**Figure 3.1** : Schematic depiction of four main processes of gas transfer in clays (from Gauss et al. 2014 [34])

in low permeability materials like the Callovo-Oxfordien (COx) at the Bure URL in France, and the Opalinus Clay at the Mont Terri URL in Switzerland (Fig. 3.1).

At low gas production rates, the gases are dissolved in the liquid water phase, and they migrate mainly by diffusion and advection as dissolved species : in that case, the main transport parameters are the permeability of the material, and the coefficient of solute diffusion in water.

As gas production rate increases, the inlet gas pressure and the dissolved gas concentration both rise. If gas pressure overcomes the value of the gas entry pressure  $P_{g,e}$ , a second type of gas transport process takes place, namely, two-phase water–gas flow. Gas entry pressure  $P_{g,e}$  is the main variable for this second type of gas transport process (transition liquid flow  $\leftrightarrow$  two-phase flow). In fact, the relevant *porous medium parameter*, in this case, is the capillary entry pressure  $P_{c,e}$ , while the gas entry pressure  $P_{g,e}$  is a variable that depends also on liquid pressure  $P_l$  according to the relation :  $P_{g,e} = P_l + P_{c,e}$ . In other words, for any given value of liquid pressure  $P_l$ , the gas entry pressure  $P_{g,e}$  in the porous material is given by the capillary relation :  $P_{c,e} = P_{g,e} - P_l$ , where  $P_{c,e}$  is a characteristic parameter of the porous medium.

If liquid pressure becomes high enough, then it may exceed a critical level of effective stress and may create dilation pathways through which gas will enter when the gas entry pressure is exceeded (that is, when  $P_g > P_{g,e} = P_l + P_{c,e}$ ). This effect has been observed in a number of experiments on argillaceous materials [11], [34], [140].

Thus, given the fine porous structure and low permeability of host rock and engineered barriers, and given that they remain usually under conditions of near full water saturation in the presence of gas production, these materials constitute a capillary barrier for gas flow in a DGR. The gas phase must reach a pressure threshold before it can penetrate the porous medium (under some conditions, gas flow may also result in damages to the material due to high gas pressures).

Therefore, modeling gas migration requires an enhanced model that takes into account the gas entry pressure phenomenon, or more precisely, the capillary entry pressure  $P_{c,e}$  as a two-phase parameter of the porous medium, in order to correctly quantify two-phase water–gas flow in such low permeability / fine grained porous materials at mesoscopic or larger scales.

It is the purpose of this paper to test and implement such modeling at various scales. In this and forthcoming studies, our general objective is to implement such enhanced two-phase model, taking into account  $P_{c,e}$ , in the context of radioactive waste disposal on various 3D spatial scales (e.g. Saâdi et al. 2020 [118]) : scale of a waste cell (tens of meters) ; scale of a module comprising hundreds of cells (hundreds of meters) ; and possibly, scale of the entire repository site (kilometers horizontally). Material deformations or damages can also have an important effect but they are not being considered in the present work.

### 3.1.2 Gas entry pressure, capillary entry pressure

In this study the concept of capillary entry pressure at quasi-static equilibrium state will be used for the case of gas as the non-wetting phase and water as the wetting phase. Note however that a dynamic term (or kinetic term) has been added by several authors to extend the saturation curve  $P_c(S_l)$  to a relation of the form  $P_c(S_l, \partial S_l / \partial t)$ . Models accounting for such dynamic effects, based on pore scale modeling and/or upscaling methods, are especially interesting for studying hysteresis. These effects are beyond the scope of the present paper.

The capillary entry pressure  $P_{c,e}$ , is the threshold capillary pressure above which the gas phase can enter the porous material. It must be either positive or null (it is in fact set to zero by default in many porous media models). Recall that capillary pressure is a state variable defined as the difference between non-wetting phase (gas) pressure and wetting phase (water) pressure :  $P_c = P_g - P_l$ . Therefore, for any given liquid water pressure, the capillary entry pressure  $P_{c,e}$  quantifies the threshold gas pressure (gas entry pressure) needed to displace water from the initially fully saturated medium.

It must be recognized that accurate measurement of gas entry pressure in low permeability materials may be a difficult task. This gas entry pressure represents the threshold at which water is displaced from the largest pores – but if there is only a small fraction of these largest pores, it is difficult to observe this displacement. Several authors presented overviews of available methods for measuring gas entry pressure. The main technique used for low permeability materials is the step by step approach (e.g., Boulin et al. 2013 [16]). Briefly, gas is injected, being initially placed in contact with the

upstream surface of a fully saturated sample, at a pressure equal to pore water pressure. Gas pressure is then increased step by step, and when the capillary pressure becomes higher than entry pressure, water is displaced out of the sample.

The capillary entry pressure parameter  $P_{c,e}$  depends on the micro-structure of the porous medium. At the scale of a single pore modeled as a cylindrical capillary tube of radius  $r$ , the Young-Laplace equation defines the capillary pressure jump across the interface between the water and gas phases in the pore. This yields a simple relationship between the capillary threshold pressure  $P_{c,e}$  and the radius  $r$  of the tube, as follows :

$$P_{c,e} = \frac{2\sigma_{g,l} \cos \alpha}{r} = P_g - P_l \quad (3.1)$$

where  $P_l$ ,  $P_g$ ,  $\sigma_{g,l}$ , and  $\alpha$  are, respectively, the water pressure [Pa], the gas pressure [Pa], the surface tension of the gas/water interface [Pa.m], and the wetting angle. In general  $\sigma_{g,l}$  and  $\alpha$  depend on the solid, the wetting fluid, and the non-wetting fluid. In the case of perfect wetting,  $\alpha = 0$  (more general  $0 < \alpha < \pi/2$  for imperfect wetting).

We need now to consider  $P_{c,e}$ , as well as the other parameters (porosity, permeability) at the meso-scopic scale of many pores, i.e., at the scale of a Representative Elementary Volume (REV), as discussed for instance in Chap.1 & Chap.5 of Ababou 2018 [1]. The meso-scale parameter  $P_{c,e}$  depends essentially on the distribution of pore sizes, on the connectivity between the pores, and also, on the possible existence of fissures. Therefore, an explicit determination of gas entry pressure is not a simple issue.

For example, the pore radius probability density function of the COx host rock presents a peak around 20 nm ( $20 \times 10^{-9}$  m) [9], corresponding to a capillary pressure of 14.55 MPa. However, this value of  $P_{c,e}$  cannot be fully representative for the COx, because this value corresponds to the peak, not to the maximum pore radius in the distribution (which is difficult to quantify statistically). Furthermore, it does not account for the connectivity between the pores, and it does not account either for the presence of fissures. Experimental data on the COx, collected by Harrington et al. 2017 [56] indicated a high uncertainty on the value of entry pressure, which can vary from 1 MPa (10 bars) for damaged samples, to values above 5 MPa (50 bars) for intact samples.

*Note concerning pore size distribution measurements.* Song et al. 2015 [122] used Focused Ion Beam in combination with Scanning Electron Microscopy (FIB/SEM), for imaging the pore network of the COx claystone. They observed small porosity of 1.7%-5.9% with a peak pore size around 50 nm - 90 nm. Then, 2D Transmission Electron Microscopy (TEM) revealed a large amount of smaller pores (2 nm - 20 nm) with a local porosity of 14%-25% and a peak size of 4 nm - 6 nm. However the measurement volume



was on the order of 28-147  $\mu\text{m}^3$  only, which cannot be representative of COx structure on larger macroscopic scales. Other studies by Song et al. 2016 [121] indicate that fluid transport occurs through very limited parts of the pore network (fingering in the widest paths). Taking into account only the pores larger than 20 nm would lead to a gas entry pressure up to 14 MPa, but this value seems much higher than that measured in larger samples of the COx claystone. Several authors, e.g. ANDRA 2012 [8], measured gas entry pressure in the COx at a bit less than 2 MPa, which is close to the value we use in this study.

Therefore, taking into account the gas entry pressure remains a challenging task in the physics of porous materials. Other challenges include the numerical aspects of switching between two flow regimes, from fully saturated liquid flow to liquid–gas flow and vice versa (a particularly delicate task).

The remainder of this paper is organized as follows. Section 2 presents the constitutive relationships to be used in the simulations, including a new model for entry pressure. Section 3 presents the modification of the iTOUGH2 simulation code, and a verification test for iTOUGH2 using a semi-analytical solution. Section 4 presents benchmarks and sensitivity tests performed with three different numerical codes : iTOUGH2-EOS3, BIGFLOW 3D, and UNSAT 1D (the latter being a recent custom made code designed to accommodate entry pressure for testing purposes). The code-to-code benchmarks and sensitivity tests focus on the effect of gas entry, based on two types of numerical experiments : simulations of capillary rise in a clay soil with and without entry pressure, and simulation of a comprehensive field scale experiment PGZ1 performed at ANDRA's Underground Research Laboratory (URL) in the COx clay rock formation (Callovo-Oxfordian), carried out with our upgraded version of the iTOUGH2-EOS3 code. The last conclusive Section 5 summarizes the results and briefly discusses perspectives.

## 3.2 Theory of constitutive relationships : functional models and entry pressure

In this paper, the hydrodynamic properties of the porous media for two–phase flow are based essentially on the Mualem / Van Genuchten model and its modification with entry pressure. Other models have been tested but are not retained in this study. For example, other simulations of the PGZ1 experiment have been carried out using Brooks and Corey's model (1964) [21] of hydraulic properties (not shown here). Note that this model contains already an entry pressure parameter. Its fitted  $P_{c,e}$  value was much higher (3.85 MPa) than that obtained with Mualem / Van Genuchten (2 MPa). Furthermore,



the Brooks and Corey's model (1964) [21] only fitted the experimental data for liquid saturations very close to 1.0.

### 3.2.1 Classical Van Genuchten / Mualem model

Based on Poiseuille's law for each interconnected pore, and on the representation of the tortuosity factor as a power of the actual saturation, Mualem [95] proposed a model for the prediction of the relative permeability function from the water retention curve, defined as :

$$K_{r,l}(P_c) = S_{le}^\tau \left[ \frac{\int_0^{S_{le}} \frac{1}{P_c(S_l)} dx}{\int_0^1 \frac{1}{P_c(S)} dx} \right]^2 \quad (3.2)$$

where  $S_{le}$  is the effective saturation,  $\tau$  is a pore connectivity parameter (dimensionless exponent), and  $P_c(S_l)$  is the capillary pressure – saturation relationship. When the Van Genuchten model [131] is used, the effective saturation can be expressed as :

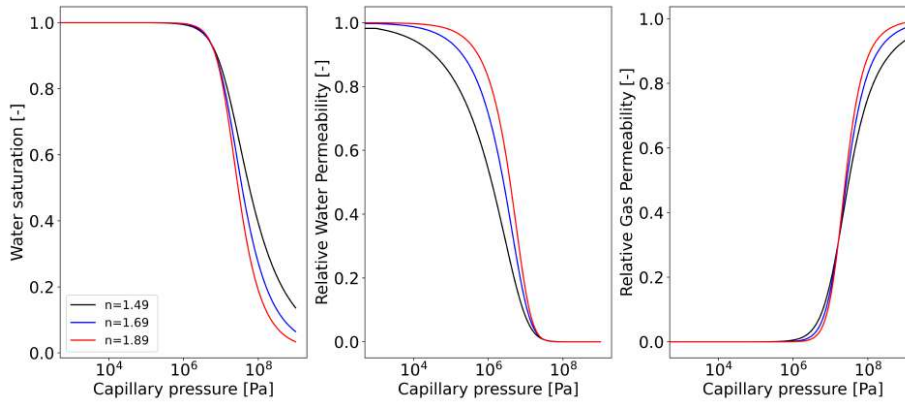
$$S_{le}(P_c) = \frac{S(P_c) - S_{lr}}{S_{ls} - S_{lr}} = \frac{\theta_l(P_c) - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = [1 + (\alpha P_c)^n]^{-m} \quad (3.3)$$

where  $n$ ,  $m$ , and  $\alpha [Pa^{-1}]$ , are the physical parameters to be fitted. We note that in some works,  $1/\alpha$  is interpreted as an entry pressure, although it is, rather, a characteristic capillary pressure of the porous material. In fact,  $\frac{\rho \times g}{\alpha}$  can be interpreted as a capillary length of the medium. Also, it can be shown that the pressure scale  $1/\alpha$  is near the inflection point of the  $S_{le}(P_c)$  curve. That inflection point is more readily seen graphically on cartesian plots rather than semi-log plots. More precisely, let us denote  $\lambda_{Cap}$  or  $\lambda_C$  the capillary pressure at the inflection point of the effective saturation curve  $S_{le}(P_c)$ . It can be shown that :

$$\lambda_C = \frac{1}{\alpha} \left( 1 - \frac{1}{n} \right)^{1/n} \quad (3.4)$$

This and other inflection point characteristics were analyzed and interpreted for instance in Ababou 1991 [2]. The latter noted that the inflection point of the saturation curve corresponds to a maximum moisture capacity  $C_{max}$ , calculated explicitly, and that it corresponds to the minimum energy required to extract or expel water from the porous medium.

Taking the value  $n = 1.656$  used here for the COx, we obtain  $\lambda_C = 15.705$  MPa. The corresponding effective saturation is  $S_{le,C} = 0.876$ , which is quite far from full water saturation. In comparison, the entry pressure considered here for the COx is  $P_{c,e} = 2$  MPa which is much less than the inflection point  $\lambda_C$ . To sum up, these auxiliary calculations indicate that the inflection point pressure  $\lambda_C$ , which can be approximated roughly as  $1/\alpha$ , is a "global" characteristic of the saturation curve, whereas the entry capillary pressure  $p_{c,e}$  characterizes "locally" the curve near the state of full saturation. These two characteristic



**Figure 3.2 :** Parametric sensitivity of the VGM model with respect to parameter  $n$ . Other parameters are fixed :  $S_{ls} = 1$ ,  $S_{lr} = 0$ , and  $\alpha^{-1} = 15$  MPa.

pressures are significantly different for most media, and for the COx in particular.

By inserting (Eq.(3.3)) in (Eq.(3.8)), and taking  $m = 1 - \frac{1}{n}$ , Van Genuchten obtained the analytic formula for relative water permeability as shown below, which was later extended by Parker et al. (1987) [98] for relative gas permeability :

$$K_{r,l}(P_c) = S_{le}^\tau [1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m] \quad (3.5)$$

$$K_{r,g}(P_c) = (1 - S_{le})^{\tau'} [1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}}]^{2m} \quad (3.6)$$

where  $\tau$  is the dimensionless tortuosity parameter related to pore water connectivity, taken here equal to  $\tau = 1/2$  (the value adopted by Mualem 1976 [95]), and  $\tau'$  is the gas tortuosity parameter related to gas connectivity. Parker et al. (1987) [98] extended the van Genuchten – Mualem water permeability approach to determine the relative gas permeability with gas tortuosity  $\tau' = 1/2$ ; and Luckner 1989 [87] proposed the same formulation of  $K_{r,g}$  with  $\tau' = 1/3$ . In our study, the  $\tau'$  will be fitted rather than imposed (see Table 4.4 further below). *Note* : saturation-dependent tortuosity was introduced early, in the 1950's and 1960's, by several authors, as a power function of saturation (Burdine, Childs & Collis-George,...) ; see also Chap.5 in Ababou 2018 [1].

Sensitivity analyses by Stephens and Rehfeldt (1985) [124], Van Genuchten et al. (1991) [132], and Vogel et al. (2001) [134], as shown for instance in Fig. 3.2, indicate that relatively small changes in water retention curve near full water saturation can lead to a significant change in the unsaturated hydraulic conductivity function calculated from Mualem's functional model. This sensitivity may affect the flow dynamics, and could possibly induce numerical convergence problems as demonstrated by Vogel et al. (2001) [134].

### 3.2.2 Modified Van Genuchten / Mualem model (VGM/Pe)

To examine the sensivity of the hydraulic conductivity (and of the flow) to the saturation curve near full liquid saturation, Vogel et al. (2001)[134] and Ippish et al. (2005) [63] suggested the introduction of a gas-entry value in the van Genuchten model (or in a different model) particularly for  $n \leq 2$  or  $\alpha \times P_{c,e} \geq 1$ , especially for fine textured media with "large" (or more properly with non negligible) capillary entry pressure  $P_{c,e}$ , according to Vogel et al. (2001) [134]. The new model is denoted "modified VGM model" or "VGM/Pe model" (Van Genuchten / Mualem model with entry pressure).

At this point, it is useful to examine briefly the meaning of the term "non negligible" applied to entry pressure. The magnitude of entry pressure for a given porous medium can be evaluated by scaling the entry pressure by the inflection point pressure  $\lambda_C$  discussed earlier, renamed here  $P_{c,0}$  for convenience. This scaling approach yields a dimensionless entry pressure  $P_{c,e}/P_{c,0} \approx \alpha \cdot P_{c,e}$ . This dimensionless number ( $\alpha \cdot P_{c,e}$ ) is 2% in the case of the Vogel clay experiment, and 8% in numerical modeling of the PGZ1 experiment (presented later in this paper). These values are small but they must be considered significantly different from zero – judging also by the effect  $P_{c,e}$  has on gas flow in the numerical experiments.

The modification of the VGM model to take into account a non-zero gas entry pressure is based on the introduction of a fictitious parameter  $S_{ws}^* \geq S_{ws}$  in the capillary model of VGM (Eq. (3.3)) which allows a modification of the saturation-pressure curve (normalized as an effective saturation curve), and then of the relative permeabilities  $K_{r,l}(P_c)$  and  $K_{r,g}(P_c)$  (deduced from the integration of  $S((P_c))$ ). These two curves remain continuous after modification. Their expressions are shown just below :

$$S_w(P_c) = \begin{cases} S_{lr} + \frac{S_{ls}^* - S_{lr}}{[1 + (\alpha P_c)^n]^m} & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ S_{ls} & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (3.7)$$

where  $S_{ws}^*$  is defined further below in (Eq. 3.13). Using the new capillary model, the resulting modified functional model of Mualem now becomes :

$$K_{r,l}(P_c) = \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^\tau \left[ \frac{\int_0^{S_{le}} \frac{1}{h(x)} dx}{\int_0^{S_{le}^*} \frac{1}{h(x)} dx} \right]^2 = \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^\tau \left[ \frac{I_{S_{le}^{\frac{1}{m}}}(p, q)}{I_{S_{le}^*{}^{\frac{1}{m}}}(p, q)} \right]^2 \quad (3.8)$$

where  $S_{le} = \frac{S(P_c) - S_{lr}}{S_{ls}^* - S_{lr}}$  the new effective saturation,  $S_{le}^* = \frac{S_{ls} - S_{lr}}{S_{ls}^* - S_{lr}}$  is the maximum of effective saturation,  $p = m + \frac{1}{n}$ ,  $q = 1 - \frac{1}{n}$ , and  $I(p, q)$  is the incomplete beta function.

Similarly, we integrate the gas relative permeability to obtain the modified model ("VGM/Pe model") :

$$K_{r,g}(P_c) = \left(1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*}\right)^\tau \left[ \frac{\int_{S_{le}}^{S_{le}^*} \frac{1}{h(x)} dx}{\int_0^{S_{le}^*} \frac{1}{h(x)} dx} \right]^2 = \left(1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*}\right)^\tau \left[ 1 - \frac{I_{S_{le}^{\frac{1}{m}}}(p, q)}{I_{S_{le}^*{}^{\frac{1}{m}}}(p, q)} \right]^2 \quad (3.9)$$

If the "m" parameter is related to "n" by  $m = 1 - \frac{1}{n}$ , then the modified VGM model (VGM/Pe) is given by :

$$S_l(P_c) = \begin{cases} S_{lr} + \frac{S_{ls}^* - S_{lr}}{[1 + (\alpha P_c)^n]^m} & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ S_{ls} & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (3.10a)$$

$$K_{r,l}(P_c) = \begin{cases} \left[ \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^\tau \left[ \frac{1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m}{1 - (1 - (S_{le}^*)^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ 1 & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (3.10b)$$

$$K_{r,g}(P_c) = \begin{cases} \left[ 1 - \frac{S_{le}}{S_{le}^*} \right]^{\tau'} \left[ 1 - \frac{1 - (1 - (S_{le}(P_c))^{\frac{1}{m}})^m}{1 - (1 - (S_{le}^*)^{\frac{1}{m}})^m} \right]^2 & \text{if } P_c \geq P_{c,e} \\ 0 & \text{if } P_c \leq P_{c,e} \end{cases} \quad (3.10c)$$

Note that, when  $P_{c,e} = 0$ , this modified VGM model ("VGM/Pe") reduces to the unmodified VGM model, as it should.

### 3.2.3 Parametrization of the hydraulic properties models of porous media

The value of gas entry pressure  $P_{c,e}$  should be the same for the nonlinear hydraulic constitutive relationships (Eq. (3.10)).

Therefore, we performed a simultaneous fit of the hydraulic parameters to the experimental points of water retention, water permeability and gas permeability vs. capillary pressure. In this work, the RETC code [132] for fitting and estimating simultaneously the water retention and the water permeability parameters was extended to include the gas permeability, and the new VGM/Pe model was implemented. As a result, the new objective function (Single Objective Function : SOF) is defined as the sum of three mean squared error functions (MSE) (Eq. (3.11)).

$$O_{bj}(\mathbf{P}) = O_{bj}(\mathbf{P})_{K_g} + O_{bj}(\mathbf{P})_{K_l} + O_{bj}(\mathbf{P})_{S_l} \quad (3.11a)$$

where

$$O_{bj}(\mathbf{P})_{S_l} = \frac{MSE([\hat{S}_{l,i}(\mathbf{P}), S_{l,i}]_{i \in [1, N_{dataS}]})}{\overline{S_{l,data}}^2} \quad (3.11b)$$

$$O_{bj}(\mathbf{P})_{K_l} = \frac{MSE([\text{Log}(\hat{K}_{l,i}(\mathbf{P})), \text{Log}(K_{l,i})]_{i \in [1, N_{dataK_l}]})}{\overline{\text{Log}K_{l,data}}^2} \quad (3.11c)$$

$$O_{bj}(\mathbf{P})_{K_g} = \frac{MSE([\text{Log}(\hat{K}_{g,i}(\mathbf{P})), \text{Log}(K_{g,i})]_{i \in [1, N_{dataK_g}]})}{\overline{\text{Log}K_{g,data}}^2} \quad (3.11d)$$

The choice of Log-Permeability rather than permeability in Eq. 3.11.c and Eq. 3.11.d is motivated by the fact that the range of variation of permeability is much larger than the other variable (saturation).

The integers  $N_{dataS}$ ,  $N_{dataK_g}$ , and  $N_{dataK_w}$  are respectively the number of measured data of water saturation, gas permeability, and water permeability.

The symbols  $S_{l,i}$ ,  $K_{l,i}$ , and  $K_{g,i}$  represent respectively, the  $i$ -th observed quantities of water saturation, water permeability and gas permeability. The "hat" quantities  $\hat{S}_{l,i}(\mathbf{P})$ ,  $\hat{K}_{l,i}(\mathbf{P})$ , and  $\hat{K}_{g,i}(\mathbf{P})$  are respectively the fitted water saturation, the fitted water permeability, and the fitted gas permeability as a function of the parameter set  $\mathbf{P}$  to be optimized :

$$\mathbf{P} = (n, m, \alpha, S_{ls}, S_{lr}, k_{0,l}, \tau, k_{0,g}, \tau', P_{c,e}) \quad (3.12)$$

The new parameter  $S_{ls}^*$  is not present in the set of optimized parameters, but it can be determined as a function of other parameters in the optimization procedure :

$$S_{ls}^* = S_{lr} + (S_{ls} - S_{lr}) \times [1 + (\alpha P_{c,e})^n]^m \quad (3.13)$$

The permeability curves also depend on parameters  $k_{0,l}[m^2]$  and  $k_{0,g}[m^2]$ . These are, respectively, the "intrinsic" permeability to water (for a water saturated sample) and the "intrinsic" permeability to gas (for a gas-saturated sample). Theoretically, these two parameters are intrinsic to the porous medium and they should be identical : the intrinsic permeability  $k_0[m^2]$  of the fluid-filled medium should not depend on the fluid (gas or water). However, in clayey materials, due to the slippage effect of gas flow (Boulin et al. 2008 [17], Wang et al. 2016 [137]), and to chemical interactions between water and clay minerals, there is a difference between the measured permeability to gas and the measured permeability to water, which can be up to three orders of magnitude, as observed experimentally by Davy et al.(2007) [36], M'jahad et al. (2012) [93], and

Haifen et al. (2017) [142]. In this study, we choose to distinguish the water-saturated permeability and the gas-saturated permeability in our data modeling.

We also used a multi-objective optimization technique to characterize the hydraulic parameters of the COx based on the NSGA-II algorithm (Kalyanmoy et al., 2002) [130], which is available in the Python Platypus library by Hadka (2015) [53].

### 3.3 The iTOUGH2 simulation code

Because of the large spatial scales studied in a DGR, macroscopic flow and transport equations based on generalized Darcy and Fick laws are chosen in this work. Statistical methods like the lattice-Boltzmann method (Kutscher et al. 2019, [72]) can be a good alternative for studying two-phase flow in porous media. However, such methods are not suitable for large spatial scales (one reason among others is that they need more virtual storage to store both the distribution functions and the flow variables). Therefore, we have chosen an approach based on Darcy flow equations (PDE's) describing macroscopic variables (pressure, areal flux density) defined at the scale of many grains/pores. The finite volume code iTOUGH2 (Finsterle 2007 [49]), known for its robustness in solving compositional two-phase flow equations, has been chosen in our work.

In this study, therefore, we use the iTOUGH2 code, a multi-phase, and multi-component computer code to model fluid flow and heat transport in porous media : Finsterle 2007 [49]. The iTOUGH2 code is closely related to the TOUGH2 code for water-gas flow [112] ; it is more general than the TOUGH2 code in that it can handle numerical inversion problems and sensitivity analyses. The "i" prefix stands for "inversion". The iTOUGH2 code was set up with a modular architecture.

There are two approaches for dealing with the implementation of capillary entry pressure in iTOUGH2.

The first approach ( $S_g$ -method) is based on Bastistelli et al. 2017 [14]. In this approach, the phase transition from single-phase liquid to two-phase requires that the thermodynamic condition  $P_l + P_{c,e} \geq P_{partial} + P_{sat}(P, T)$  be satisfied. This corresponds to a thermodynamic phase transition. The symbol  $P_{partial}$  represents the partial pressure of air, and it is controlled by Henry's law for dissolution or degassing.

The second approach ( $P_c$ -method) consists in changing the primary variables in the EOS3 module (Equation Of State 3) : the capillary pressure is considered as a primary variable under two-phase conditions, instead of the gas phase saturation. In this

approach, the transition from single liquid phase to two-phase must satisfy the condition  $P_g \geq P_l$  or equivalently  $P_c \geq 0$ . The capillary entry pressure  $P_c$  is introduced only in the  $P_c(S_l)$ ,  $K(P_c)$  relationships.

Our numerical trials showed that severe numerical convergence problems (*possibly within the Newton-Raphson iterations*) are encountered when  $S_{ls} < 1$  occurs with the SG-method, while these problems do not appear with the  $P_c$ -method. At any rate, this formulation ( $P_c$ -method) seems better adapted to deal with the modified  $Pe$  model with non-zero capillary entry pressure – which has a non-invertible  $S_l(P_c)$  curve.

Both methods have been implemented in iTOUGH2 code, but the emphasis here is on the  $P_c$ -method which requires several changes in the code and needs more numerical verification and validation tests. In both approaches a non-zero gas entry pressure is introduced in the new modified VGM model (VGM/ $Pe$ ).

### 3.3.1 Governing equations for two-phase flow

For all modules, TOUGH2 solves the same integral form of mass continuity and energy balance equations defined as :

$$\frac{d}{dt} \int_{V_i} M^\kappa dV_i = \int_{\Gamma_i} \vec{F}^\kappa \vec{n} d\Gamma_i + \int_{V_i} q^\kappa dV_i \quad (3.14)$$

where  $V_n$  is an arbitrary sub-domain of the flow system, bounded by a closed surface  $\Gamma_i$ ;  $\vec{n}$  is a normal vector on surface element  $d\Gamma_i$  [ $m^2$ ] pointing into  $V_i$  [ $m^3$ ];  $\kappa \in 1, \dots, N_k$  labels the mass components (water, air, H<sub>2</sub>, solutes, ...);  $\kappa = N_k + 1$  refers to the heat component; and  $q^\kappa$  [ $kg \times m^{-3} \times s^{-1}$ ] denotes sinks and sources for the component  $\kappa$ . The other symbols represent physical quantities as explained below...

—  $M^\kappa$  [ $kg \times m^{-3}$ ] is the mass or energy per volume defined as :

$$M^\kappa = \phi \sum_{\beta} S_{\beta} \rho_{\beta} X_{\beta}^{\kappa} \quad \kappa \in 1, \dots, N_k \quad (3.15a)$$

Where  $\phi$  [-] is the porosity, and the sum  $\sum$  is over all existing phases  $\beta \in \{Liquid, Gas, NAPL\}$ . The saturation of phase  $\beta$  is denoted  $S_{\beta}$ , and the density of phase  $\beta$  is denoted  $\rho_{\beta}$  [ $kg \times m^{-3}$ ]. The symbol  $X_{\beta}^{\kappa}$  [-] represents the mass fraction of component  $\kappa$  present in phase  $\beta$ . In addition,  $M^{N_k+1}$  represents the heat energy per unit volume ( $Joules \times m^{-3}$ ) :

$$M^{N_k+1} = (1 - \phi) \rho_R C_R T + \phi \sum_{\beta} S_{\beta} \rho_{\beta} u_{\beta}^{\kappa} \quad (3.15b)$$



where  $\rho_R$  [ $kg.m^{-3}$ ] and  $C_R$  [ $Joules \times ^\circ C^{-1}$ ] are respectively grain density and specific heat of the rock,  $T$  [ $^\circ C$ ] is temperature, and  $u_\beta$  [ $Joules \times kg^{-1}$ ] is specific internal energy in phase  $\beta$ .

- $F^\kappa$  [ $kg \times m^{-2} \times s^{-1}$ ] is the total mass flux or heat flux. The mass flux term is the sum of advective transport flux ( $F_{adv}$ ) through the porous medium (from Darcy's law), plus molecular diffusive flux  $F_{diff}$  expressed by Fick's law, plus optionally hydrodynamic dispersion ( $F_{disp}$ ) from an external module. They are expressed as :

$$F_{adv}^\kappa = - \sum_{\beta} X_{\beta}^{\kappa} K \frac{\rho_{\beta} k_{r\beta}}{u_{\beta}} (\nabla P_{\beta} - \rho_{\beta} g) \quad \kappa \in 1, \dots, N_k \quad (3.16a)$$

$$F_{disp}^\kappa = - \sum_{\beta} \rho_{\beta} \bar{D}_{\beta} \nabla X_{\beta}^{\kappa} \quad \kappa \in 1, \dots, N_k \quad (3.16b)$$

$$F_{\beta,diff}^\kappa = - \phi \tau_0 \tau_{\beta} \rho_{\beta} d_{\beta}^{\kappa} \nabla X_{\beta}^{\kappa} \quad \kappa \in 1, \dots, N_k \quad (3.16c)$$

where the product  $\tau_0 \tau_{\beta}$  is the unsaturated tortuosity that includes a porous medium-dependent factor  $\tau_0$  and a coefficient  $\tau_{\beta}$  that depends on saturation of phase  $\beta$ ;  $\bar{D}_{\beta}$  [ $m^2/s$ ] is the hydrodynamic dispersion coefficient; and  $d_{\beta}^{\kappa}$  [ $m^2/s$ ] is the molecular diffusion coefficient of component  $\kappa$  in free fluid phase  $\beta$ .

To be more precise, in our modeling study, diffusion is based on Fick's law (see the molecular diffusion flux  $F_{\beta,diff}^\kappa$  just above), with diffusion coefficient of hydrogen gas in liquid water  $D_{H_2}^{H_2O} = 2.0 \cdot 10^{-9} m^2/s$  (this reference value was then corrected by tortuosity). On the other hand, osmotic pressure and salinity of the COx brine (NaCl, KCl, ...) – see Vinsot et al. 2008 [133] – could have effects on gas diffusion and dissolution, and could have an impact on liquid pressure (Croisé et al. 2005 [32]). However, these effects on gas diffusion and dissolution are neglected here, as they do not appear to be a dominant factor in the part of the COx where the in-situ PGZ1 experiment was carried out.

The general space-discretized form of the mass-conservation equations for each component  $\kappa$  in a grid bloc  $i$ , using the Integral Finite Difference Method (IFDM), is given by (Pruess et al., 1999 [112]) :

$$\frac{dM_i^{\kappa}}{dt} = \frac{1}{V_i} \sum_j A_{ij} F_{ij}^{\kappa} + q_i^{\kappa} = 0 \quad (3.17)$$



where  $j$  labels all the grid blocks that are connected to grid block  $i$  through the surface area  $A_{ij}$ . Then, Eq. (3.17) can be expressed in terms of a residual  $R_i^{\kappa,k+1}$  :

$$R_i^{\kappa,k+1} = M_i^{\kappa,k+1} - M_i^{\kappa,k} - \frac{\Delta t}{V_i} \left\{ \sum_j A_{ij} F_{ij}^{\kappa,k+1} + V_i q_i^{\kappa,k+1} \right\} \quad (3.18)$$

For each volume element (grid block)  $V_i$ , there are  $NEQ = N_k + 1$  equations, so that for a flow system with  $NEL$  grid blocks comprises a total of  $NEL \times NEQ$  coupled non-linear equations. The unknowns are the independent primary variables  $(x_i)_{i \in \{1, \dots, NEQ \times NEL\}}$ , completely define the state of the flow system at time level  $t_{k+1}$ . This nonlinear system of equations is solved by a Newton/Raphson iteration scheme.

### 3.3.2 Modification of primary variables in the EOS3 module of iTOUGH2

The primary variables depend on the equations of state (EOS). In the EOS3 module, the primary variables are  $(P_\alpha, X_l^{air}, T)$  for single-phase conditions, and  $(P_g, S_g, T)$  for two-phase conditions.

Given the new model with non-zero entry pressure, modifications were necessary in iTOUGH2-EOS3 module in order to implement the new capillary model VGM/Pe. Thus, with our modification, the capillary pressure variable  $P_c$  is used instead of gas saturation ( $S_g$ ) in the two phase flow regime : this is summarized in table Tab.3.1.

Note that, in the  $P_c$ -method, we are now solving with the (new) primary variables  $(P_g, P_c, T)$  for the two phase regime, and primary variables  $(P_\alpha, X_l^{air}, T)$  for the single phase regime. There was no need to change the primary variables for the single phase situation. The thermodynamic test (switching to two phase when  $X_l^{air} \times H_{Henry} + P_{v,sat} \geq P_{liquid}$ ) is also left unchanged. In the two-phase flow regime we keep  $S_l = 1.0$  when  $P_c \leq P_{c,e}$ .

In order to verify the new version of the EOS3 module in iTOUGH2, a numerical test is conducted using a semi-analytical solution : vertical infiltration in the Sand of Grenoble (Haverkamp et al. (1977) [58]).

Phase state	Original version of EOS3	New version of EOS3
Single phase flow	$(P_\alpha, X_l^{air}, T)$	$(P_\alpha, X_l^{air}, T)$
Two phase flow	$(P_g, S_g, T)$	$(P_g, P_c, T)$

**Table 3.1** : Change of primary variables implemented in the EOS3 module of iTOUGH2.

### 3.3.3 Verification : Philip infiltration test in the Grenoble Sand

We consider an initially unsaturated homogeneous sand column, with an initial pressure head  $h = -\frac{P_c}{\rho_w g} = -61.5$  cm, and we apply at the top of the column ( $z = 0$ ) a pressure head of  $h = -23.73$  cm as a boundary condition. The corresponding top surface is wet, but not saturated  $\theta_{top} \leq \theta_s$ . This verification test will use an analytical solution for unsaturated flow (Philip (1957) [105]), which assumes constant air pressure within the porous medium. To represent this unsaturated flow condition in the two-phase code iTOUGH2-EOS3 and to minimize the variations of gas pressure, we impose a "free" gas phase ( $K_{r,g} = 1.0$ ), and a constant gas pressure ( $P_g = P_{atm}$ ) at the top and bottom of the column boundaries.

The nonlinear water saturation curve and water permeability curve vs. capillary pressure are given just below for the Grenoble Sand, along with the numerical values of their parameters :

$$S_{le} = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} = \frac{a_3}{a_3 + h^{a_4}} \quad (3.19a)$$

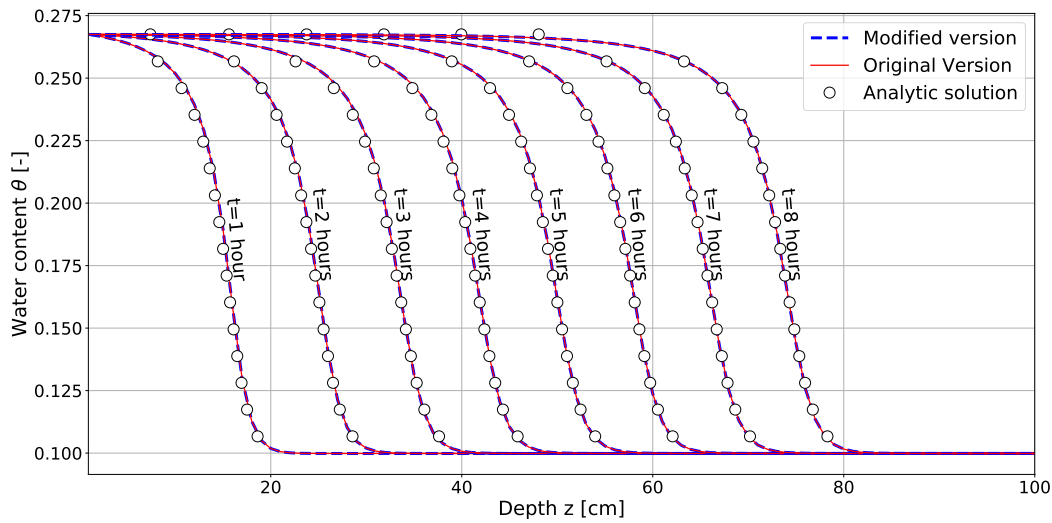
$$k_{r,l}(P_c) = \frac{a_1}{a_1 + h^{a_2}} \quad (3.19b)$$

where  $\theta_s = 0.287$ ,  $\theta_r = 0.075$ ,  $a_1 = 1.175 \times 10^6$ ,  $a_2 = 4.74$ ,  $a_3 = 1.611 \times 10^6$ ,  $a_4 = 3.96$ , and the intrinsic permeability is  $k_0 = 9.6273 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ .

This infiltration test consists in a comparison between the numerical solution obtained with (i) the original version of EOS3 in iTOUGH2, (ii) the modified (new) version of EOS3 in iTOUGH2, and (iii) the semi-analytical solution of Philip (1957) [105]. The result is shown in Fig. 3.3 in terms of water content profiles  $\theta(z, t)$ . The agreement between the three solutions is excellent (the three sets  $\theta(z, t)$  profiles are nearly indistinguishable).

## 3.4 Numerical experiments and applications

In this section two numerical simulations were carried out to study the effect of gas entry pressure on the flow dynamics. In a first stage, we implement benchmark tests of vertical flow based on the upward numerical experiment from Vogel et al. (2001) [134], with or without gas entry pressure. The objective is to confirm the effect of gas entry pressure observed by Vogel et al. (2001) [134], and to compare our numerical implementation in the iTOUGH2/EOS3 code with other codes available to us. In a second stage, we focus on the in-situ PGZ1 gas injection experiment performed with nitrogen



**Figure 3.3 :** Comparison of water content profiles  $\theta$  vs. depth ( $z$ ), at times  $t = 1, 2, \dots, 8$  hours, for the Grenoble Sand infiltration experiment, calculated numerically with the original and modified versions of iTOUGH2/EOS3, and analytically using the classical solution of Philip.

$\theta_r [m^3/m^3]$	$\theta_s [m^3/m^3]$	$\alpha [Pa^{-1}]$	$n$	$\phi$	$K [cm/day]$	$k_0 [m^2]$
0.068	0.38	$8.17 \times 10^{-5}$	1.09	0.38	4.80	$5.7 \times 10^{-14}$

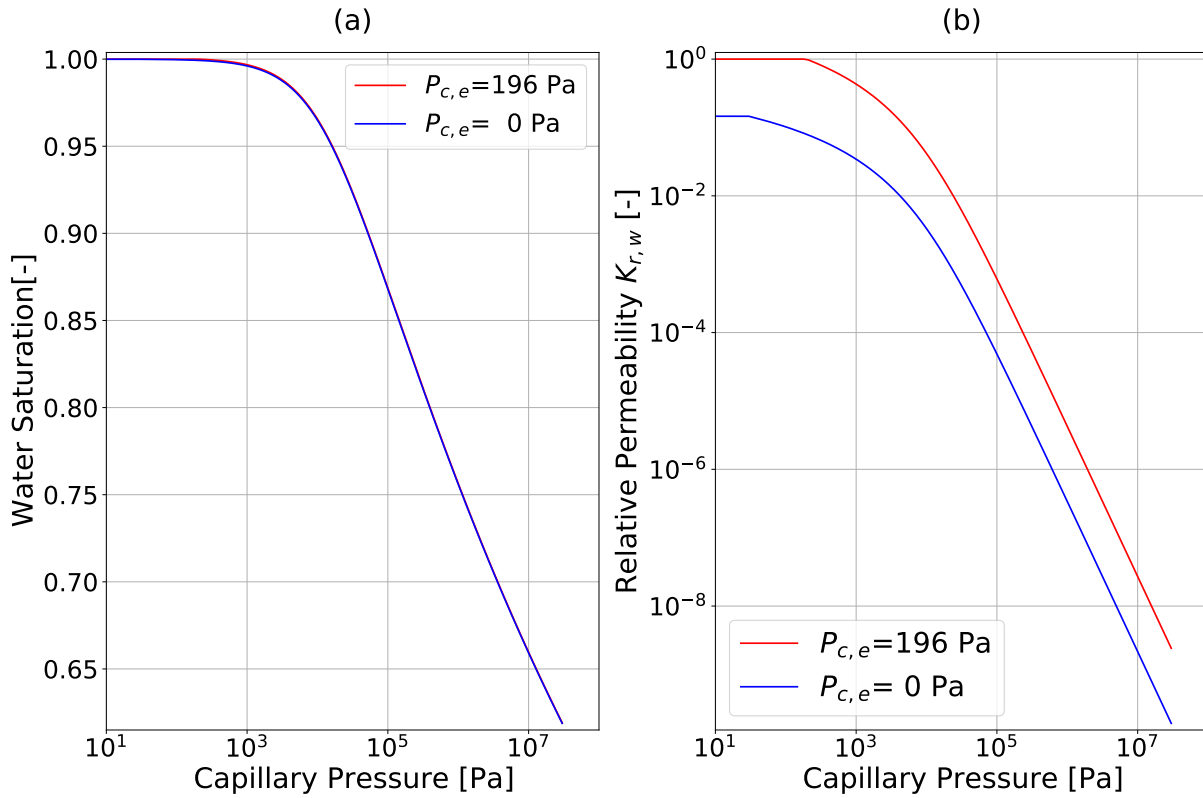
**Table 3.2 :** Hydraulic parameters of the VGM model for the 'Clay 12' soil of Carsel and Parish 1988 [26] (from Vogel et al. 2001 [134], Table 2).

gas [39] in the COx rock. We model water flow and gas migration experiment in three dimensions (2D axi-symmetric), and we investigate again the effect of a non-zero gas entry pressure on the mechanism of gas transport in the host clay rock (COx).

### 3.4.1 Numerical experiments of vertical unsaturated flow

The numerical simulation investigated by Vogel et al.(2001) [134] is reconsidered here ; it consist of an upward flow in a homogeneous Clay soil of 1 m length. The column was initially at equilibrium, with a capillary pressure head of 11 m at the bottom. The boundary condition of zero pressure head is imposed then in the bottom which leads to upward flow. The hydraulic properties of the clay soil are given in Table 3.2.

The water relative permeability and the water retention curve of the soil are compared for zero and non-zero entry pressure in Fig. 3.4. Introducing a non zero entry pressure in the capillary model does not affect much the saturation curve, due to the small decrease of saturation with the VGM model, but it has a significant effect on the water permeability function. For a given capillary pressure, the water permeability with non-zero



**Figure 3.4 :** Soil hydraulic properties functions of capillary pressure, for the Clay soil from Vogel et al. (2001) [134], with two different capillary entry pressures :  $P_{c,e} = 196$  Pa and  $P_{c,e} = 0$ , respectively. Note that the two saturation curves at left are almost indistinguishable, while the two permeability curves at right are quite distinct.

entry pressure is much higher than the water permeability predicted with zero entry pressure. This difference is due to the sensitivity of the unsaturated water permeability model near full water saturation, as shown earlier in Fig. 3.2, and also in Fig. 3.4 for the clay soil to be used for the next numerical experiments below.

The set of test simulations (*to be presented below*) for the clay soil were performed using a nodal spacing of 0.10 cm, and a variable time step (maximum time step of 100 seconds). time step equal to 100 second. The results were obtained with three codes : the 3D Finite Volumes code iTOUGH2-EOS3 (two-phase flow) ; the 3D Finite Volumes code BIGFLOW 3D [3] (partially saturated / unsaturated flow) ; and a custom made UNSAT 1D Finite Difference code programmed in Matlab based on the Richards equation. The latter code, UNSAT 1D, was developed in 2020 by M. Renou & R. Ababou, as part of the Master internship of Mourad Renou at the Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (France), essentially for benchmark purposes (as is the case here).

Figure 3.5 compares the upward flow rate  $Q(t)$  at the bottom of the column computed with the three codes in the case  $P_{c,e} = 0$ . The resulting flux  $Q(t)$  is depicted

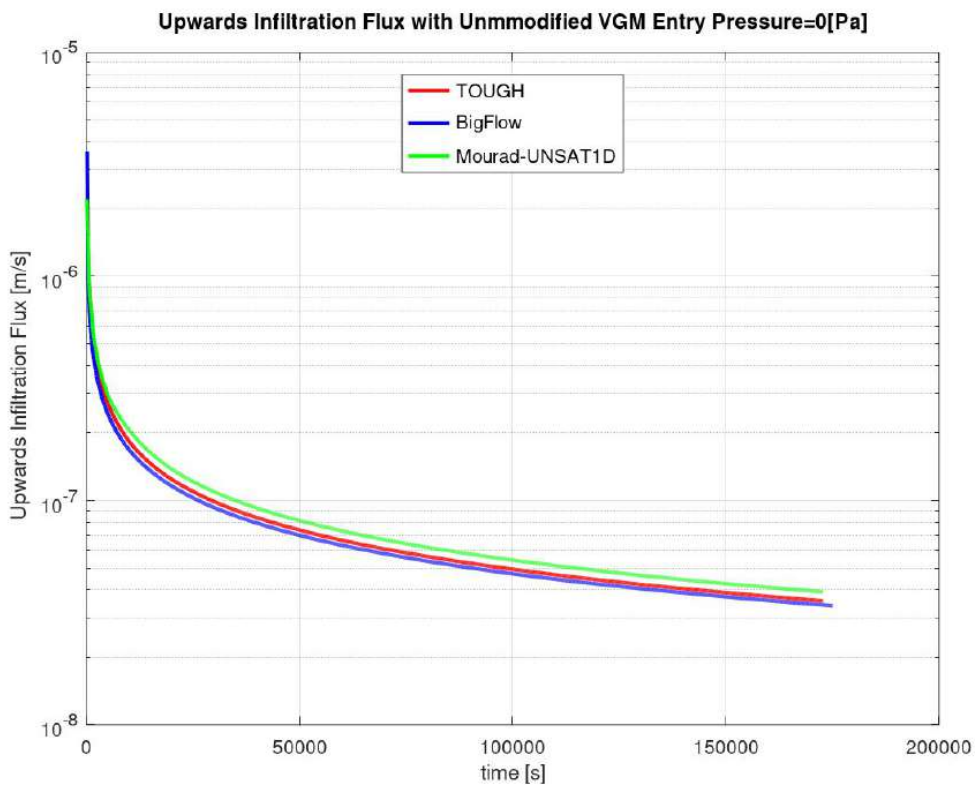
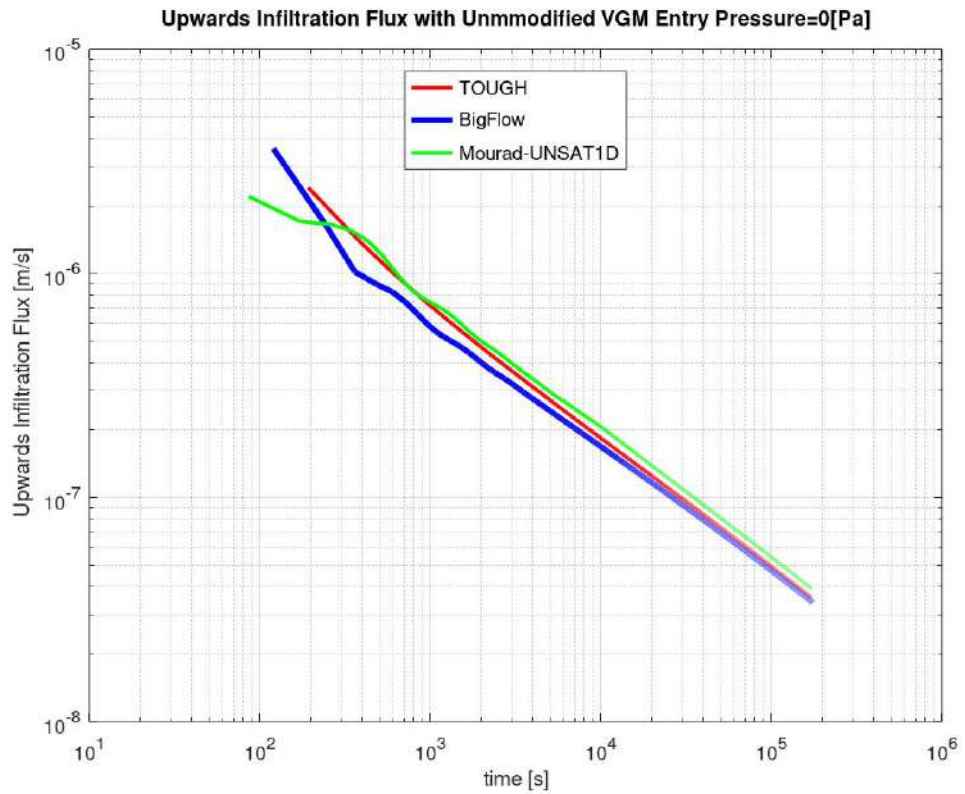
in Log-Log scales (top of Fig. 3.5), and in Semi-Log scales (bottom of Fig. 3.5). The agreement between the three codes is quite good. All three codes exhibit flow rates  $Q(t)$  that follow the same decreasing power law, and that tend asymptotically towards a constant value as time increases.

In addition, saturation profiles are presented in Fig. 3.6.a and Fig. 3.6.b, comparing UNSAT 1D vs. iTOUGH2-EOS3, and testing the sensitivity of the capillary rise to entry pressure : unmodified VGM model with  $P_{c,e} = 0$ , vs. modified VGM model named "VGM/Pe" (here with  $P_{c,e} = 196$  Pa). In each case, with or without entry pressure, it can be seen that the saturation profiles from the two codes are quasi-identical, which confirms our previous validation of the new version of iTOUGH2-EOS3 (see earlier : "*Modification of primary variables in the EOS3 module of iTOUGH2*"). Concerning entry pressure, the effect of the (small) entry pressure  $P_{c,e} = 196$  Pa is clearly to enhance and accelerate capillary rise. For instance, at the early time  $t = 0.2$  day, the saturation "front" has risen by only 0.20 m *without* entry pressure, while it has risen up to 0.5 m above the bottom *with* entry pressure.

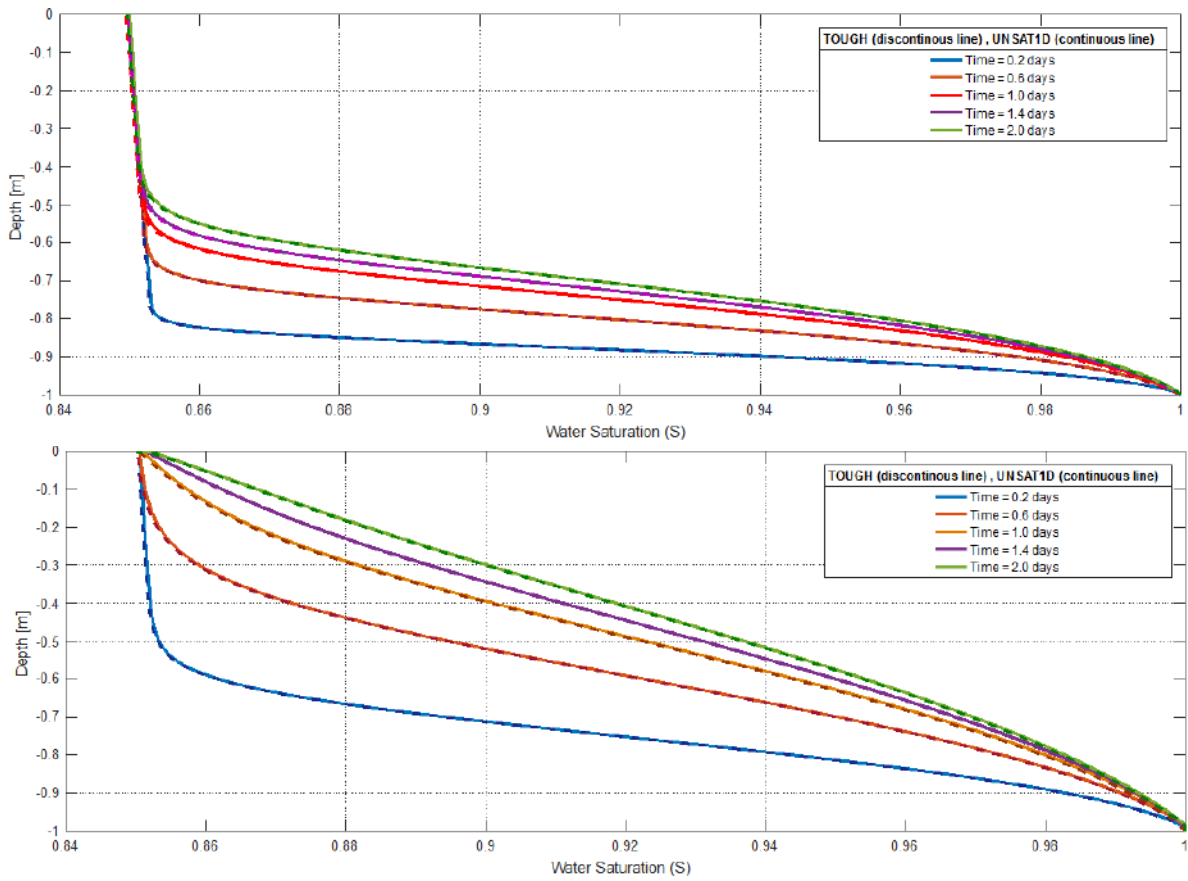
Similar comparison results are shown, this time in terms of capillary pressure profiles during capillary rise, with and without entry pressure, in Fig. 3.7. Again the comparison between iTOUGH2-EOS3 with UNSAT 1D is quite good, and again the effect of entry pressure is to accelerate the rise of the capillary pressure profiles.

Several other tests (*not all shown here*) were performed in order to confirm the benchmarking / cross-validation of iTOUGH2-EOS3, and to observe the (simulated) effect of entry pressure  $P_{c,e}$ . The next figure shows one detailed sensitivity test with respect to entry pressure for the capillary rise problem, comparing the water saturation profiles  $S_l(z, t)$ , as well as the water mass flux  $Q(t)$  [kg/s] at the bottom boundary, with and without entry pressure ( $P_{c,e} = 0$  and  $P_{c,e} = 196$  Pa respectively) : see Fig. 3.8.(a,b,c). The saturation profiles shown on top (a,b) were calculated with both the iTOUGH2/EOS3 code and the custom made UNSAT 1D Matlab code, and they were identical. The temporal plot of water mass flux  $Q(t)$  [kg/s] shown at the bottom (c) is computed with iTOUGH2-EOS3. The three sub-figures (a,b,c) clearly indicate again that the effect of entry pressure (even a small one) is to enhance capillary rise in terms of the rising saturation profiles and in terms of the upward water flux.

To sum up, concerning entry pressure : a significant difference in the position of the wetting front profiles is observed, depending on zero or non-zero entry pressure. This is a consequence of the extreme sensitivity of the relative water permeability  $K_{r,l}(P_c)$  to a small change in the water retention curve  $S_l(P_c)$  near full water saturation. This difference can lead to remarkably different simulation results for soils with fine structures and/or large entry pressures (the soil used in the present test is a fine textured clay). Due to this

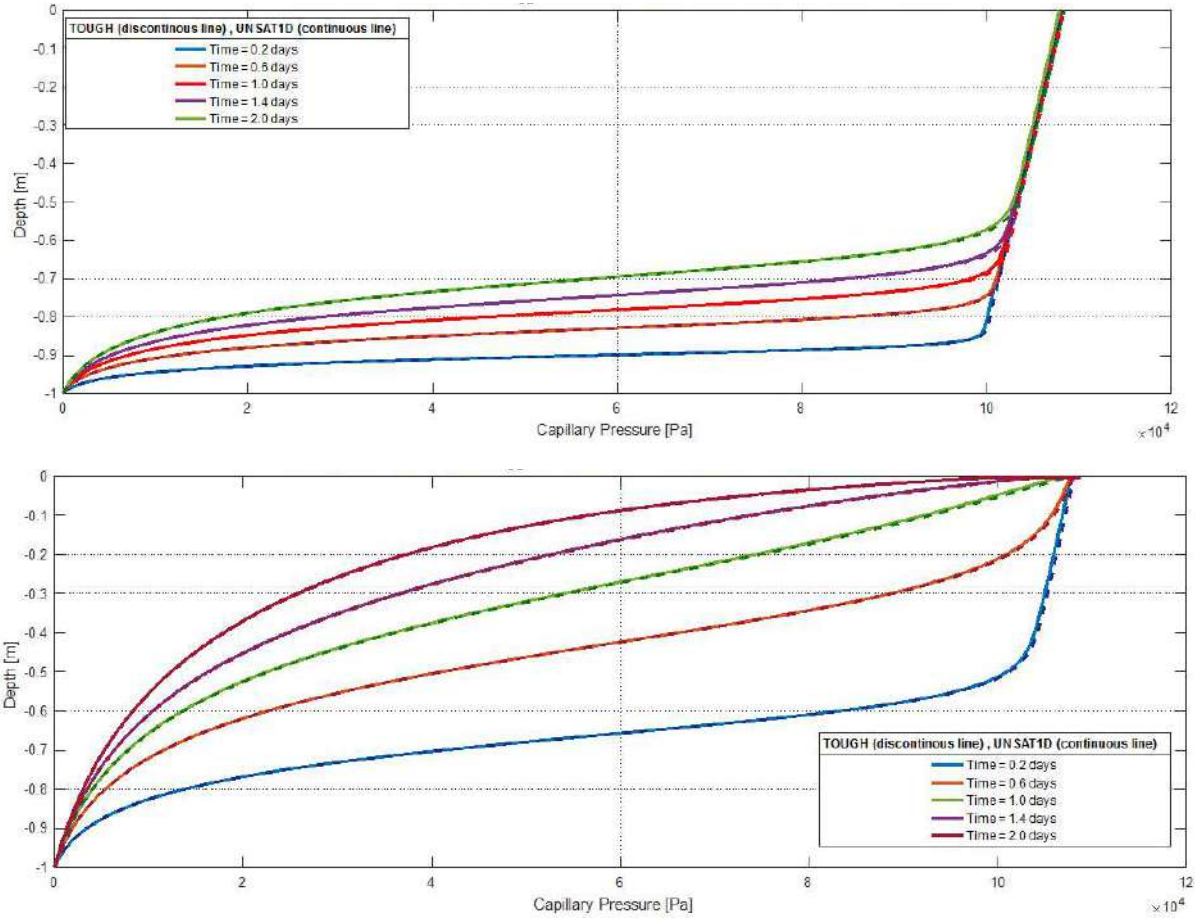


**Figure 3.5** : Comparison of upward water flux evolution  $Q(t)$  at the bottom of the column during capillary rise in the "Clay 12" soil. Three sets of simulations are compared (with different colors) : BIGFLOW 3D code, UNSAT 1D Matlab code, iTOUGH2-EOS3 code. The capillary entry pressure is taken zero in all three simulations ( $P_{c,e} = 0$ ). *Above* : Log-Log plot of  $Q(t)$ . *Below* : Semi-Log plot of  $Q(t)$ .



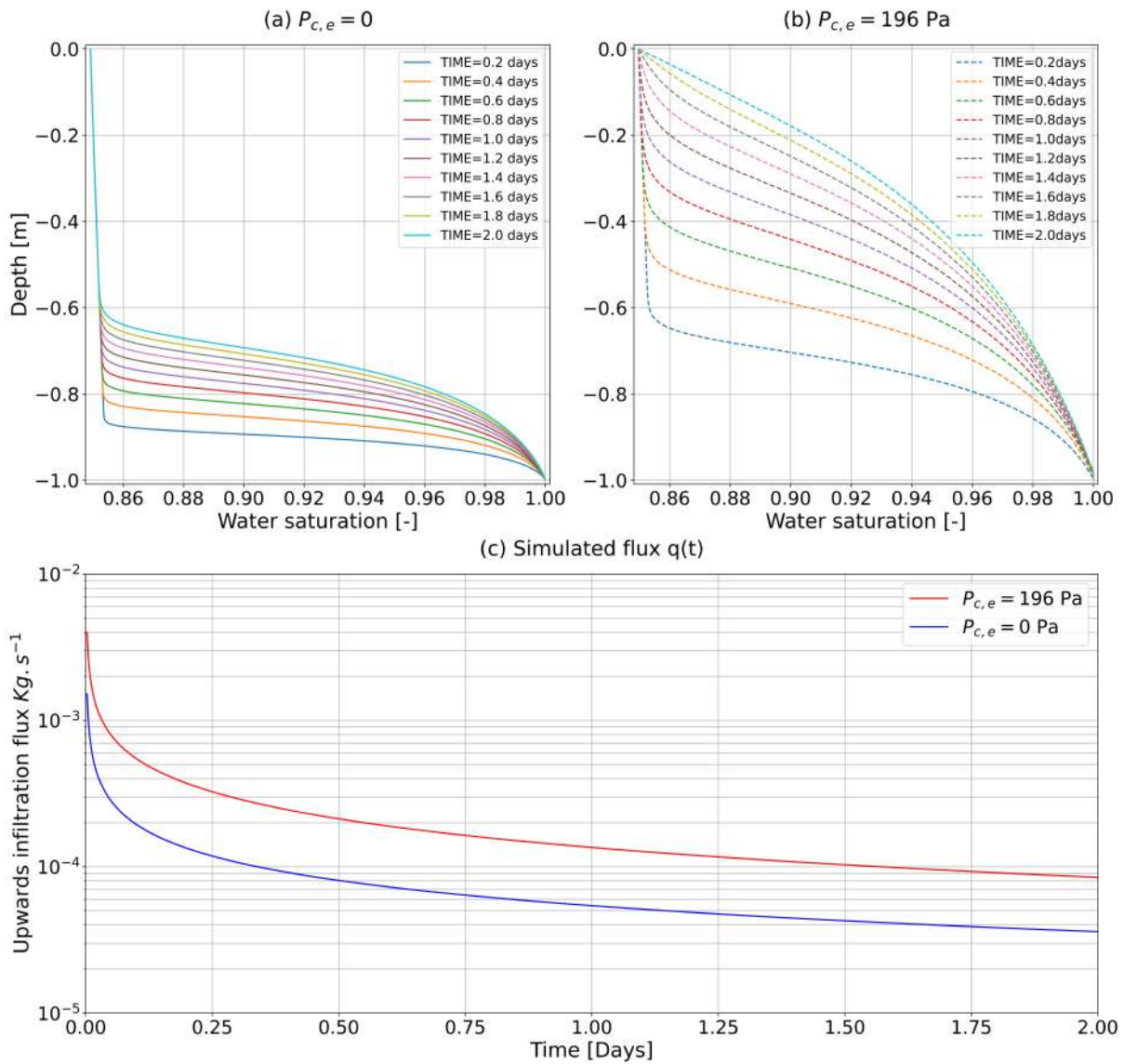
**Figure 3.6 :** Comparison of water saturation profiles  $S_l(z, t)$  at times  $t = 0.2, 0.6, 1.0, 1.4, 2.0$  days, with and without capillary entry pressure, for upward flow in the "Clay 12" soil. Two sets of capillary rise simulations are compared : with the UNSAT 1D code (continuous curves), and with the iTOUGH2-EOS3 code (discontinuous curves). *Above* :  $P_{c,e} = 0$ . *Below* :  $P_{c,e} = 196$  Pa.





**Figure 3.7 :** Comparison of capillary pressure profiles  $P_c(z, t)$  at different times, with and without capillary entry pressure, for upward flow in the "Clay 12" soil. Two sets of capillary rise simulations are compared : with the custom made Matlab UNSAT 1D code (continuous curves), and with the iTOUGH2-EOS3 code (discontinuous curves). *Above :  $P_{c,e} = 0$ . Below :  $P_{c,e} = 196 Pa$ .*





**Figure 3.8 :** Comparison for upward flow in the "Clay 12" soil with and without capillary entry pressure ( $P_{c,e} = 196$  Pa, and  $P_{c,e} = 0$ ). *Top (a,b)* : comparison of water saturation profiles  $S_l(z, t)$  at times  $t = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.2, 1.4, 1.6, 1.8, 2.0$  days without entry pressure (a) and with entry pressure (b). *Bottom (c)* : comparison of temporal mass flux  $Q(t)$  [ $\text{kg/s}$ ] without entry pressure (blue curve below) vs. with entry pressure (red curve above).

sensitivity, it appears necessary to use a modified VGM/Pe model, with non zero entry pressure, for correctly predicting flow dynamics. This may be even more crucial when the water permeability curve parameters are estimated based solely on water retention data. In that case, it turns out that the permeability curves that are deduced from the water retention curve are much more influenced by  $P_{c,e}$  than the water retention curve itself.

### 3.4.2 Modeling the PGZ1 experiment

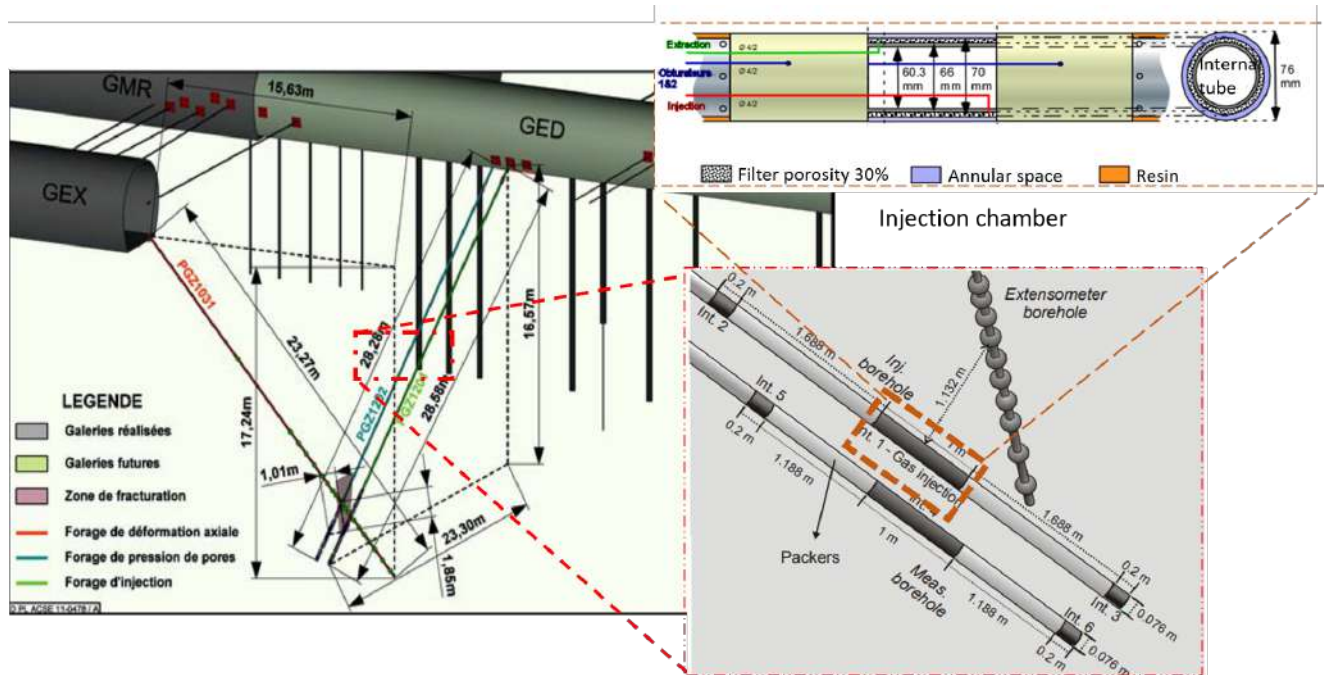
The experiment PGZ1-GAS [38] is a field-scale experiment conducted by the French radioactive waste management agency (ANDRA) in the underground research laboratory (URL) located at Bure (France), in order to study the main mechanisms controlling gas migration in the Callovo-Oxfordien (COx) host clay rock. First, the hydraulic properties of the COx were fitted with the unmodified VGM model ( $P_{c,e} = 0$ ) and then with the modified VGM/Pe model ( $P_{c,e} \neq 0$ ) in order to characterize the hydraulic properties of the COx based on data from [52]. Secondly, a numerical modeling of the gas injection experiment PGZ1-GAS1 over 423 days is presented, where the impact of a non-zero gas entry pressure is discussed.

For other references on PGZ1 data and simulations, see also [38] and [39]. Concerning reference [38] : these authors present measurements of  $P_g(t)$  in the injection chamber, and measurements of  $P_l(t)$  in the other gallery, over a duration of 1.5 years. The initial state of the rock is not known precisely ; a lithostatic pressure state is assumed, leading to a pressure value of roughly 4.5 MPa at the measurement site. Concerning [39] : these authors present PGZ1 measurements over a longer duration, roughly 10 years, including : gas pressure  $P_g(t)$  in the injection chamber, rock displacements, and water pressure  $P_l(t)$  in the other *borehole*.

Other remarks concerning both the PGZ1 experiment and our present simulation tests : the experimental gas pressure named  $P_g(t)$  is gas pressure measured vs. time in the injection chamber of borehole PGZ1202 ; we have neglected the possible effect of the second borehole PGZ1201 on flow in order to preserve an axi-symmetric geometry numerically ; and we have adopted the hypothesis of a lithostatic pressure state, which leads to a pressure of *approximately* 4.5 MPa in the measurement region at the beginning of the gas injection test (initial pressure).

#### 3.4.2.1 The PGZ1 experimental system and field data

The experimental layout consists in two parallel boreholes (PGZ1201, PGZ1202) with diameter of 76 mm and an inclination of 35° from the DGR drift Fig. 4.12, each borehole is equipped with three intervals in order to monitor gas and water pressure.



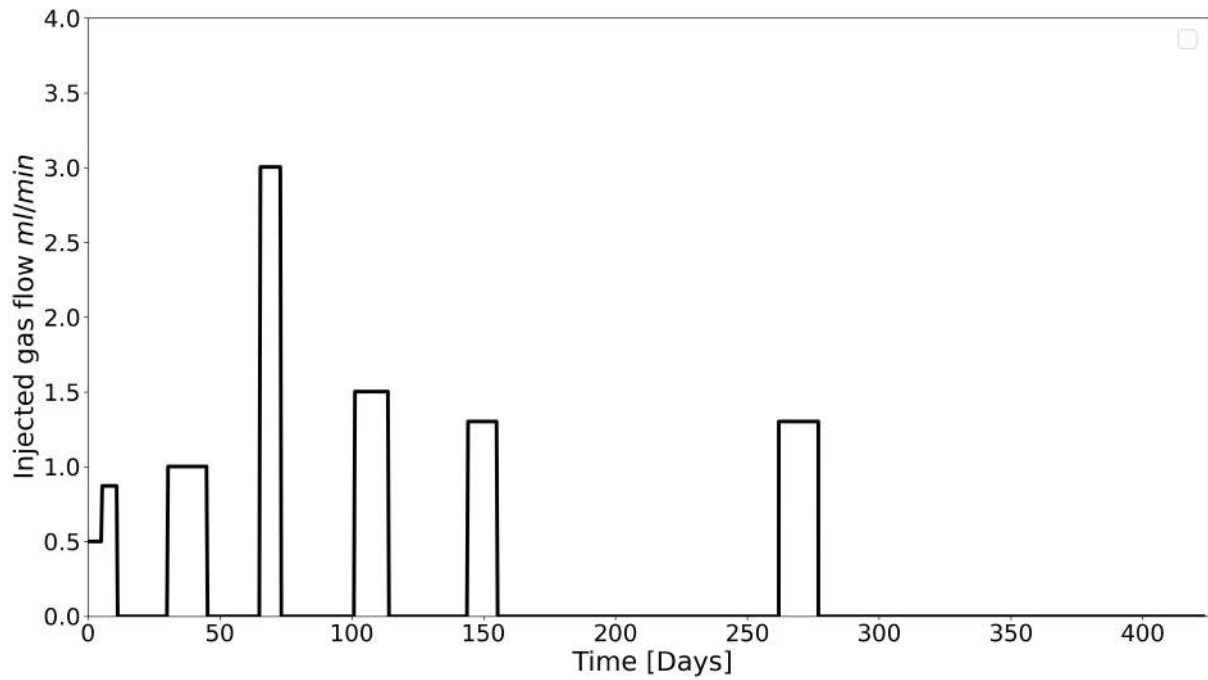
**Figure 3.9 :** Experiment layout of the PGZ1 experiment in the Meuse/Haute-Marne URL, with a zoom of the gas injection chamber [37], [38]

There is also a third borehole PGZ1031 with a diameter of 101 mm and an inclination of  $48^\circ$  from the GEX drift. This PGZ1031 borehole is equipped with extensometers to monitor axial deformation.

We are interested here in the first phase (the "GAS1" phase), over a period of about 14 months (423 days), where six constant-rate pulses of nitrogen, at rates between 1 to 3 mLiter/min, were injected in the chamber of Interval 2 of the PGZ1201 borehole. Each constant rate pulse is followed by a pressure recovery phase (zero injection rate). The time sequence of the flow rate injection pulses is depicted in Fig. 3.10.

### 3.4.2.2 Numerical model and modeling approach (PGZ1)

The model presented in section 3 is used to simulate the migration of the two-phase flow and transport in porous media constituted of the EDZ (Excavation Damaged Zone), the COx host rock, and the injection chamber, with a 2D-axisymmetric geometry (x,r) Fig. 3.11. The radius of the simulation domain is  $R = 5$  m, the length along the x-axis is 12 meters. The EDZ is 4 cm thick, and it has a higher permeability as suggested in the report by De La Vaissière (2011) [37]. Interval 2 of the PGZ 1201 borehole denotes the injection chamber with a radius of 3.80 cm (Fig. 4.12).



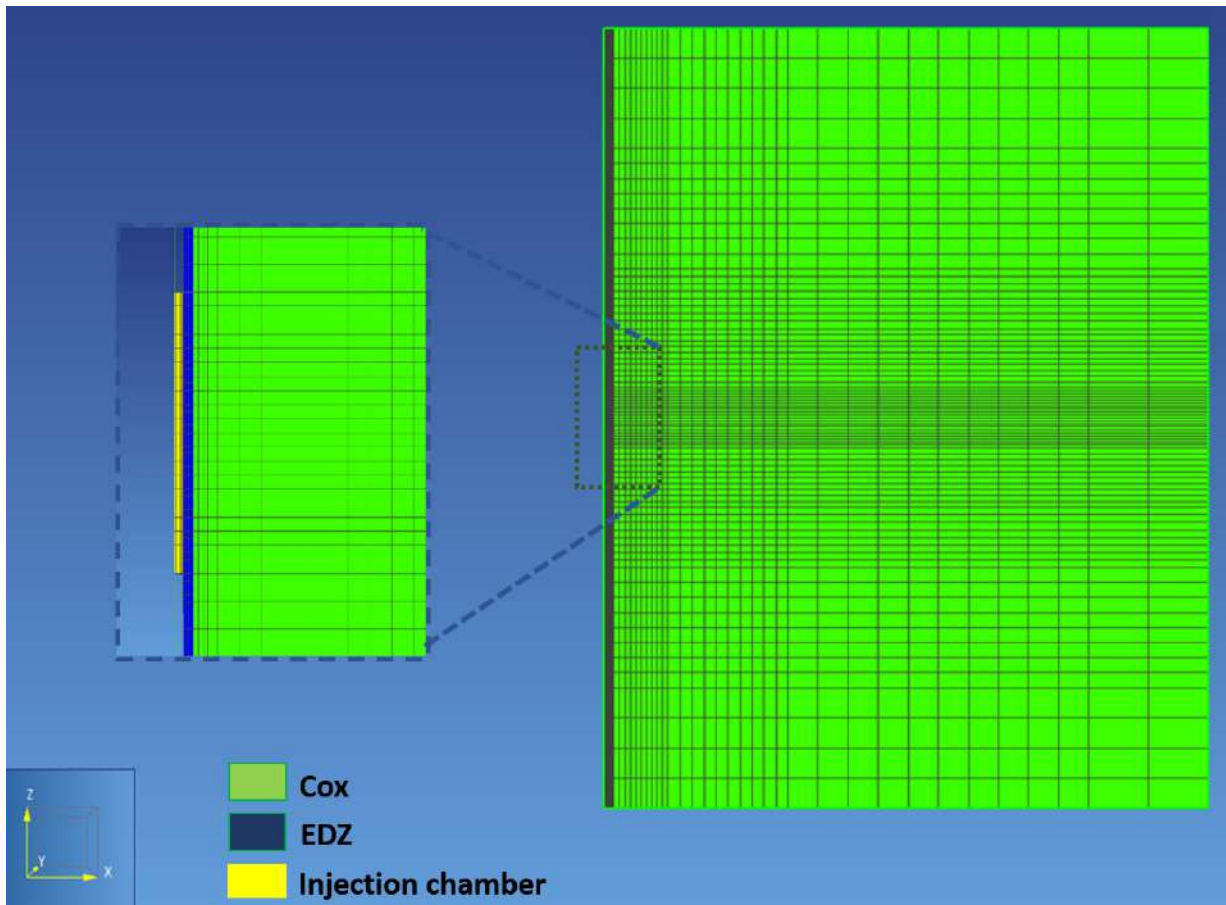
**Figure 3.10 :** Variable gas injection rate in the test chamber for the PGZ1201-GAS1 experiment over 423 days.

### 3.4.2.3 Hydraulic properties of the CO<sub>x</sub> host rock (PGZ1 experiment)

The two-phase hydraulic parameters for the CO<sub>x</sub> are obtained by fitting simultaneously the experimental data of gas permeability, water permeability and water retention curve (from Gerard 2011 [52]) to the VGM and VGM/Pe models presented in the Section 2. The simultaneous fit is performed using both optimization methods SOF and MOF (Single- and Multi- Objective Function respectively). The single objective function was described earlier in Eq. (3.11). The multi-objective method was implemented using the NSGA-II algorithm [130] coded in the Python Platypus library [53].

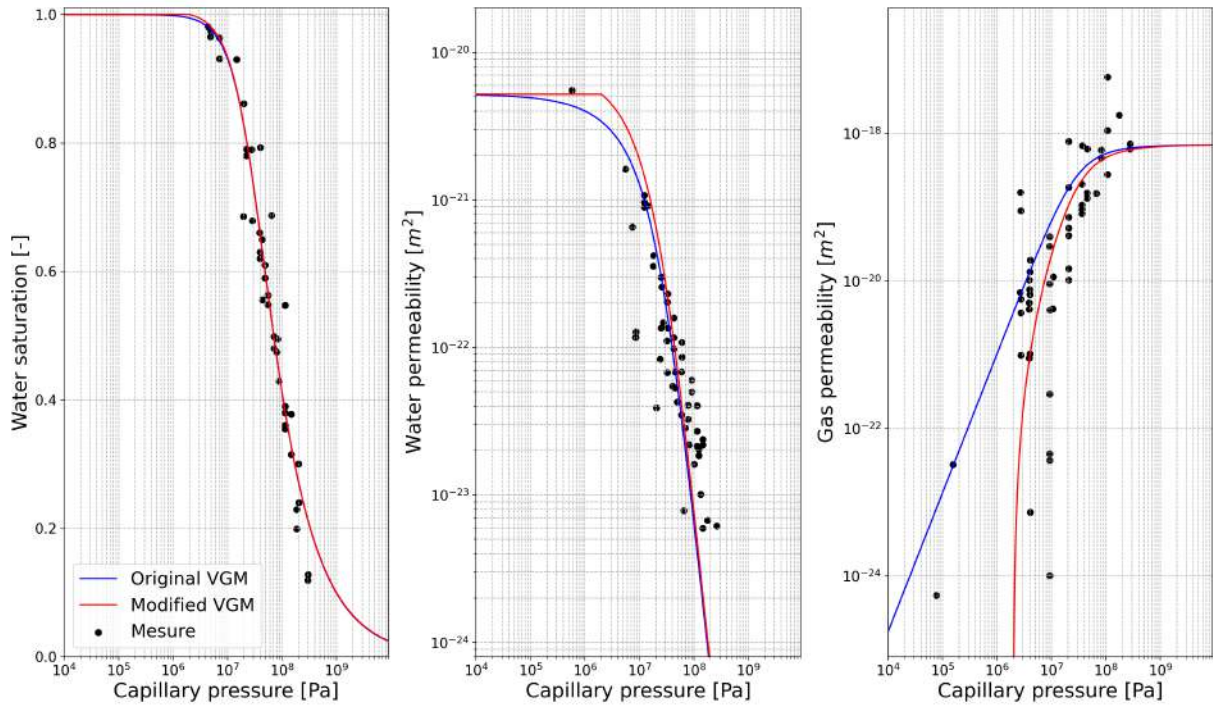
In order to study the impact of a non-zero entry pressure, the CO<sub>x</sub> hydraulic properties are first fitted with a zero entry pressure with the constraint  $S_{ws} = 1$  due to the lack of experimental data that are difficult to measure in the range of small capillary pressures. Secondly, the hydraulic properties are fitted for the VGM/Pe model with non-zero entry pressure " $P_{c,e}$ ", where the following physical parameters are fixed : intrinsic permeability  $k_{0,l}[m^2]$ ,  $k_{0,g}[m^2]$ , full water saturation  $S_{ls}$  and residual water saturation  $S_{lr}$ .

The resulting curves are shown in Fig. 3.12 for both optimization methods (including both cases  $P_{c,e} = 0$  and  $P_{c,e} \neq 0$  on the same graphs).

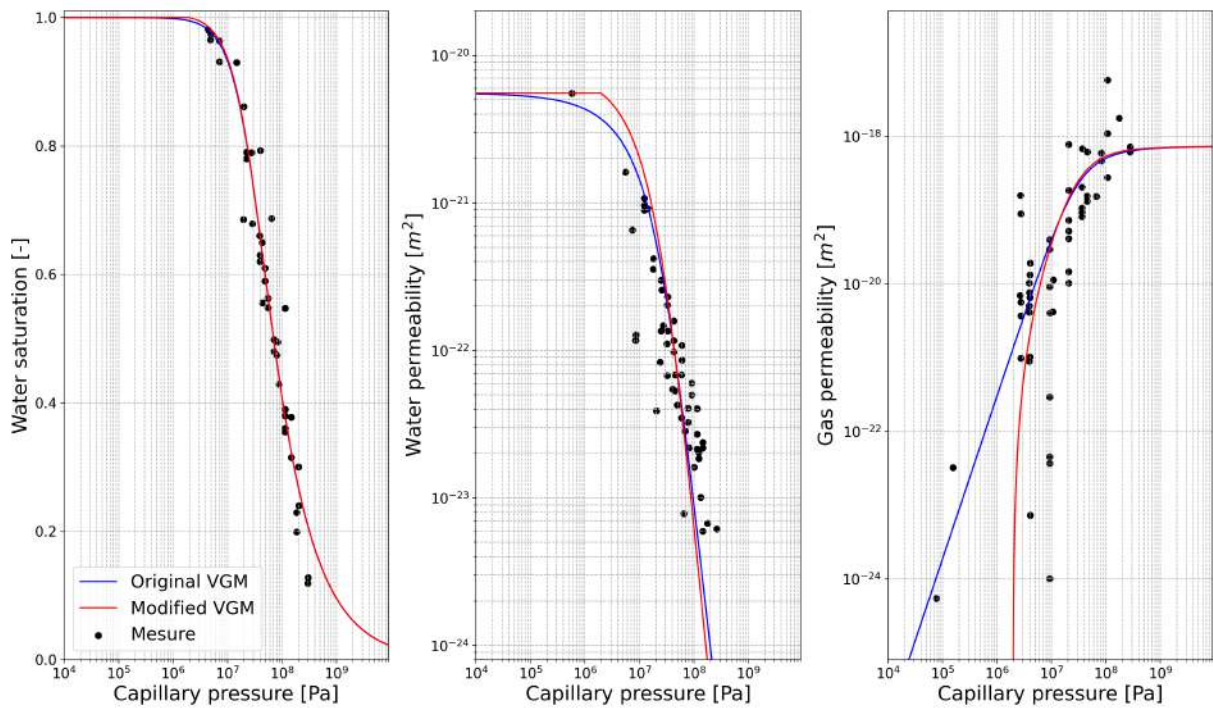


**Figure 3.11** : Geometry of the axi-symmetric simulation domain of the PGZ1-GAS1 experiment, with a zoom (at left) on the interval chamber and the EDZ. This figure also shows an example of the adaptive "rectilinear" mesh of the axi-symmetric domain used in the numerical model.





(a)



(b)

**Figure 3.12** : Optimal simultaneous fit of COx hydraulic properties (water retention curve  $S_l(P_c)$ , absolute water permeability  $K_l(P_c)$ , and absolute gas permeability  $K_g(P_c)$ ) using two distinct optimization methods : (a) Single Objective Function (RETC Code) ; and (b) Multi-Objective Function. The data points are borrowed from Gérard (2011) [52].

	Single Objective Function (SOF)		Multi-Objective Function (MOF)	
	VGM	VGMPE	VGM	VGMPE
$P_{c,e} (MPa)$	0	1.997	0	1.962
<b>n</b>	1.636	1.630	1.648	1.648
$\alpha (Pa^{-1})$	$3.76 \times 10^{-08}$	$3.86 \times 10^{-08}$	$3.63 \times 10^{-08}$	$3.747 \times 10^{-08}$
$S_{ls}$	1.00	1.00	1.00	1.00
$S_{lr} 0$	0	0	0	0
$\tau'$	0.517	0.482	0.553	0.398
$\tau$	0.373	0.574	0.107	0.904
$k_{0,g} [m^2]$	$2.12 \times 10^{-19}$	$2.12 \times 10^{-19}$	$7.35 \times 10^{-19}$	$7.35 \times 10^{-19}$
$k_{0,l} [m^2]$	$5.22 \times 10^{-21}$	$5.22 \times 10^{-21}$	$5.56 \times 10^{-21}$	$5.56 \times 10^{-21}$

**Table 3.3** : Parameters of hydraulic properties of the COx, determined by a simultaneous fit using the modified version of the RETC code [132] .

For both optimization methods, the constitutive relationships obtained with the optimized parameters indicate that the differences between the two models (VGM & VGM/Pe) are significant in terms of the relative permeability curves for water and gas, especially at low capillary pressures (that is, near full water saturation).

The optimized hydraulic parameters of the COx used in this part of the study, using the two different optimization methods explained above, are shown in Table 4.4.

There are small differences between the parameters obtained by the two optimization methods (slight differences for parameters  $P_{c,e}$  and  $\tau$ ).

The EDZ hydraulic properties are assumed similar to those of the COx but with an intrinsic permeability of  $6.52 \times 10^{-18} [m^2]$ , three orders of magnitude greater than that of the COx, as suggested in a 2011 FORGE report [37]. This EDZ permeability value is intermediate between those measured at small and large scale. It has been measured in situ at an intermediate scale (the borehole scale is less than 10 m in length and 10 cm in diameter). On larger scales, the EDZ permeability can be larger. In a theoretical model, Ababou et al. 2011 [4] represented the EDZ around a drift at the Bure URL as a porous rock matrix with many small statistical fissures and larger fractures (chevron geometry). Their calculations indicated that equivalent macroscale permeability of the EDZ was about  $2.8 \times 10^{-16} m^2$ . On the other hand, for small core samples, MJahad et al. 2017 [92] (based on the PhD thesis of MJahad 2012), developed an approach to sort the damaged samples, the fissured samples, and the intact samples. For the damaged core samples, the intrinsic permeability was in the range  $1.0 \times 10^{-20}$  to  $1.0 \times 10^{-18} m^2$ .

### 3.4.2.4 Injection chamber (PGZ1 experiment)

The injection chamber is assumed to be a macroporous medium, with its specific hydraulic properties (Sentis 2014) [120], and in particular, with an equivalent porosity  $\phi = 0.3491$  corresponding to an initial void volume of  $1584 \text{ cm}^3$  within a total geometric volume of  $4536 \text{ cm}^3$  for the *annular space + filter + gas pipelines* [37]. (Note : in numerical simulations, the chamber is discretized into an integer number of cells ; for this reason the volume of the chamber can vary slightly depending on cell size : the porosity of the chamber is adjusted so that the chamber has the same volume of voids for all simulations ; thus, the porosity of the chamber can vary slightly, e.g. 0.3279 vs. 0.3492 depending on mesh refinement).

### 3.4.2.5 Initial and boundary conditions (PGZ1 experiment)

The intact rock and EDZ were initially saturated with a hydro-static condition of  $P_l = 4.5 \text{ MPa}$ . The water saturation in the injection chamber is assumed equal to 0.225 as suggested in [38], with a gas pressure of 4 MPa at the start of the experiment. No flow is specified at the circular lateral boundaries, and a prescribed gas flow rate function of time is injected in the chamber (see Fig. 3.10).

## 3.4.3 Results and discussion (PGZ1 experiment)

In this section, the simulation results of the PGZ1-GAS experiment are presented. The measured and simulated gas pressure in the chamber vs. time are compared, and the effect of a non-zero gas entry pressure on the mechanism of two-phase flow is discussed.

Two points (or cells) were selected in order to follow gas pressure variation in time in the EDZ domain and in the intact rock (COx) : point P1 corresponds to the first cell of the EDZ domain in contact with the chamber of injection, and point P2 is the first cell of the intact COx domain directly in contact with the EDZ. The adaptive mesh of the flow domain consists of 5229 rectilinear elements (Fig. 3.11), which are finer near the injection chamber and coarser further away from the chamber. In other words, the cells P1 and P2, are adjacent to each other ; the first cell (P1) is in the EDZ, the second cell (P2) is in the COx host rock.

Simulations are run with an upstream weighting scheme for mobility and permeability, and the maximum time step allowed is 9600 s. Numerical trials showed that other weighting schemes for mobility and permeability (e.g., harmonic weighting) may affect the magnitude of the results, but the effect of gas entry pressure remained the same.



At any rate, for any consistent weighting scheme (such as harmonic or arithmetic), the finer the mesh and the more the model approaches experimental data.

For the optimized COx hydraulic parameters obtained by the RETC code (Single Objective Function), the iTOUGH2-EOS3 code simulations were performed with two different choices of state variables in the code : the "PC-method" or  $P_c$ -method with primary state variables  $(P_g, P_c)$ , and the "SG-method" or  $S_g$ -method with primary state variables  $(P_g, S_g)$  (note : these state variables choices hold only under 2-phase flow conditions, not single-phase flow). The results obtained by  $P_c$ -method are presented in Fig. 3.13.a. The figure shows a good agreement between experimental and simulated gas pressure  $P_g(t)$  in the chamber during the "early" transient period of 73 days (first three peaks of gas pressure), whether  $P_{c,e} = 0$  or  $P_{c,e} = 1.997$  MPa. The main reason for this agreement over early times is that gas pressure in the chamber was initially less than rock water pressure, leading to gas transport only by diffusion (rather than gas flow). This early gas migration regime, therefore, cannot be used to test the difference between the two capillary flow models with or without entry pressure. Another related remark concerns the role of the gas injection chamber at early times : it behaves similarly to a void chamber, and its pressure increases linearly with injected volume following the law of ideal gases ( $PV = nRT$ ), at least at early times.

After the third peak of the gas pressure signal, the VGM model simulates a faster penetration of gas in the COx, but with an underestimation of the measured gas pressure data. Unlike the VGM model, the VGM/Pe model simulates higher gas pressures and approaches remarkably the experimental data. This point can be explained by a delay of gas penetration in the COx formation with the VGM/Pe model. This delay is due to the fact that, with the non-zero entry pressure, larger quantities of gas need to be injected in order to overcome the gas entry threshold pressure  $P_{c,e} = 1.997$  MPa. This can be a major cause of increased gas pressure near the injection volume (i.e., the gas source).

Note also that the  $P_{c,e}$  value obtained with the multi-objective method "MOF" (1.962 MPa) is slightly lower than that obtained by the single objective method "SOF" (1.997 MPa). As a consequence, the simulated gas pressure in the chamber is slightly decreased with the MOF optimization method (Fig. 3.13.b). However, this slight decrease does not greatly modify simulation of gas pressure in the chamber.

Similar results are obtained when using the  $S_g$  method in iTOUGH2-EOS3 with  $(P_g, S_g, T)$  as primary variables in the two-phase flow system, using the hydraulic parameters obtained by the "SOF" optimization method (Fig. 3.13.c). However, this state variable method ( $S_g$ ) requires more CPU time than the  $P_c$  method.

The "barrier" phenomenon observed with the  $P_g(t)$  plots is also well demonstrated by the 2D axi-symmetric distributions of mass gas fraction and water saturation near the chamber at different times, as simulated with the VGM model (Fig. 3.15.(a,c)) and with the VGM/Pe model (Fig. 3.15.(b,d)), to be discussed further below. Let us point out that these figures show that a premature desaturation of the EDZ and COx host rock occurs with the VGM model, compared with the VGM/Pe model. This seems consistent with the behavior observed with the  $P_g(t)$  plots.

For clarity, the organization of the subfigures in Fig. 3.15 is explained below.

The first column of subfigures is for  $Pe = 0$  :

- (a) liquid water saturation " $S_l$ " (for  $P_{c,e} = 0$ ) ;
- (c) nitrogen gas mass fraction dissolved in the liquid (for  $P_{c,e} = 0$ ) ;

and the second column of subfigures is for  $P_{c,e} = 1.9977$  MPa :

- (b) liquid water saturation "SL" (for  $P_{c,e} = 1.9977$  MPa) ;
- (d) nitrogen gas mass fraction dissolved in the liquid (for  $P_{c,e} = 1.9977$  MPa).

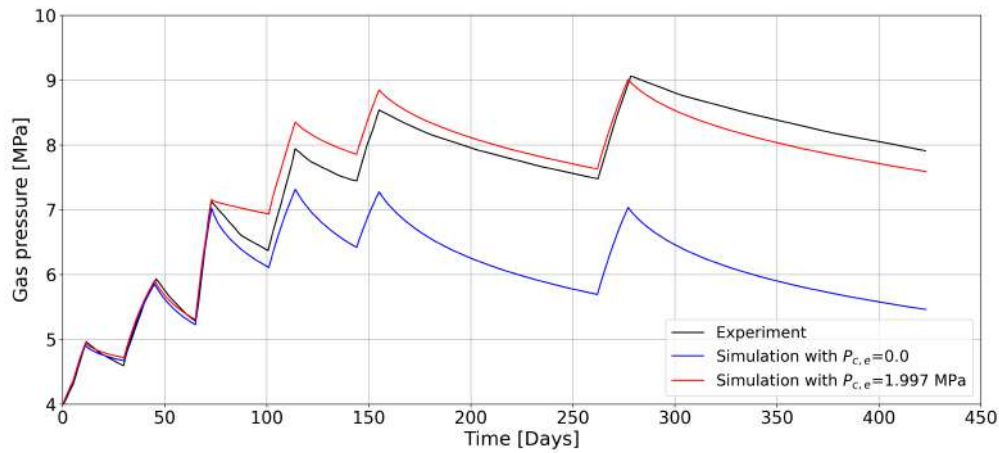
The color codes in these subfigures are as follows :

- On the first row, (a) (b), the color bar for " $S_l$ " goes from 0.985 to 1.0 (blue to red) ;
- On the second row, (c) (d), the color bar for the gas mass fraction  $X_\alpha^\beta$  goes from  $10^{-12}$  to  $1.4 \times 10^{-3}$  (blue to red). *Note* : the small gas mass fraction  $1E - 12$  is taken as the residual gas fraction for numerical reasons.

Although the VGM/Pe model overestimates the measured gas pressure in the period from 60 to 135 days, where the gas phase started to penetrate in the EDZ domain (Fig. 3.14), this overestimation remains negligible by comparison to experimental uncertainties [38]. Another explanation of this overestimation is that  $P_{c,e}$  of the EDZ is lower than that considered in our model (taken the same as that of the COx). *Note* : recall that cells (P1,P2) are adjacent ; P1 is in the EDZ, P2 is in the COx.

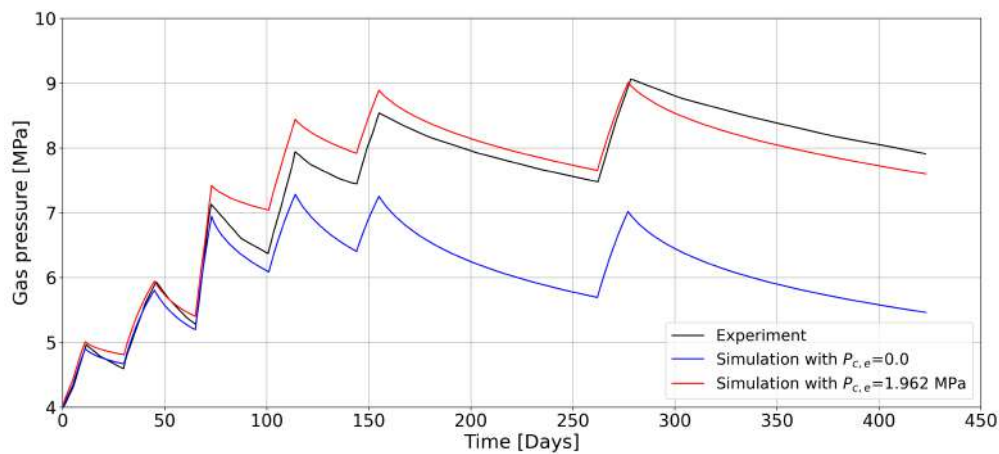
Based on these experimental vs. simulated gas pressure signals  $P_g(t)$ , and based on the simulated spatial distributions of gas fraction and water saturation, the results can be interpreted as follows.

At the start of gas injection under prescribed flux rate, gas pressure  $P_g(t)$  in the injection chamber was less than water pressure in the COx. The gas could be transported only as a solute, mostly by diffusion in water. Then, when gas pressure overcomes liquid water pressure, the COx clay rock de-saturates according to the two-phase flow simulation by the VGM model (e.g. saturation profiles at T=101 days shown in Fig. 3.15.a). On the



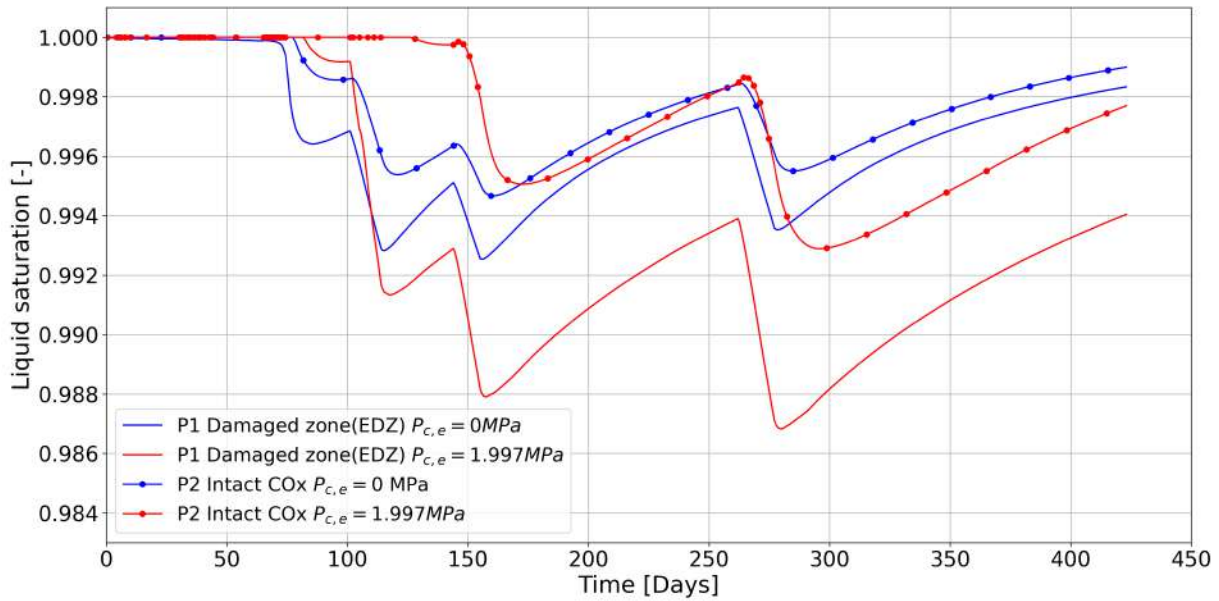
(a)  $P_c$ -method with SOF parameters

(b)  $P_c$ -method with MOF parameters



(c)  $S_g$ -method with SOF parameters

**Figure 3.13 :** Comparison between time-varying experimental and numerical gas pressure in the chamber simulated by VGM and VGM/Pe in PGZ1-GAS experiment : (a) PC method (state variable  $p_c$  with hydraulic parameters optimized by SOF method. (b) PC method with hydraulic parameters optimized by MOF method. (c) SG method (state variable  $S_g$  with hydraulic parameters optimized by SOF method



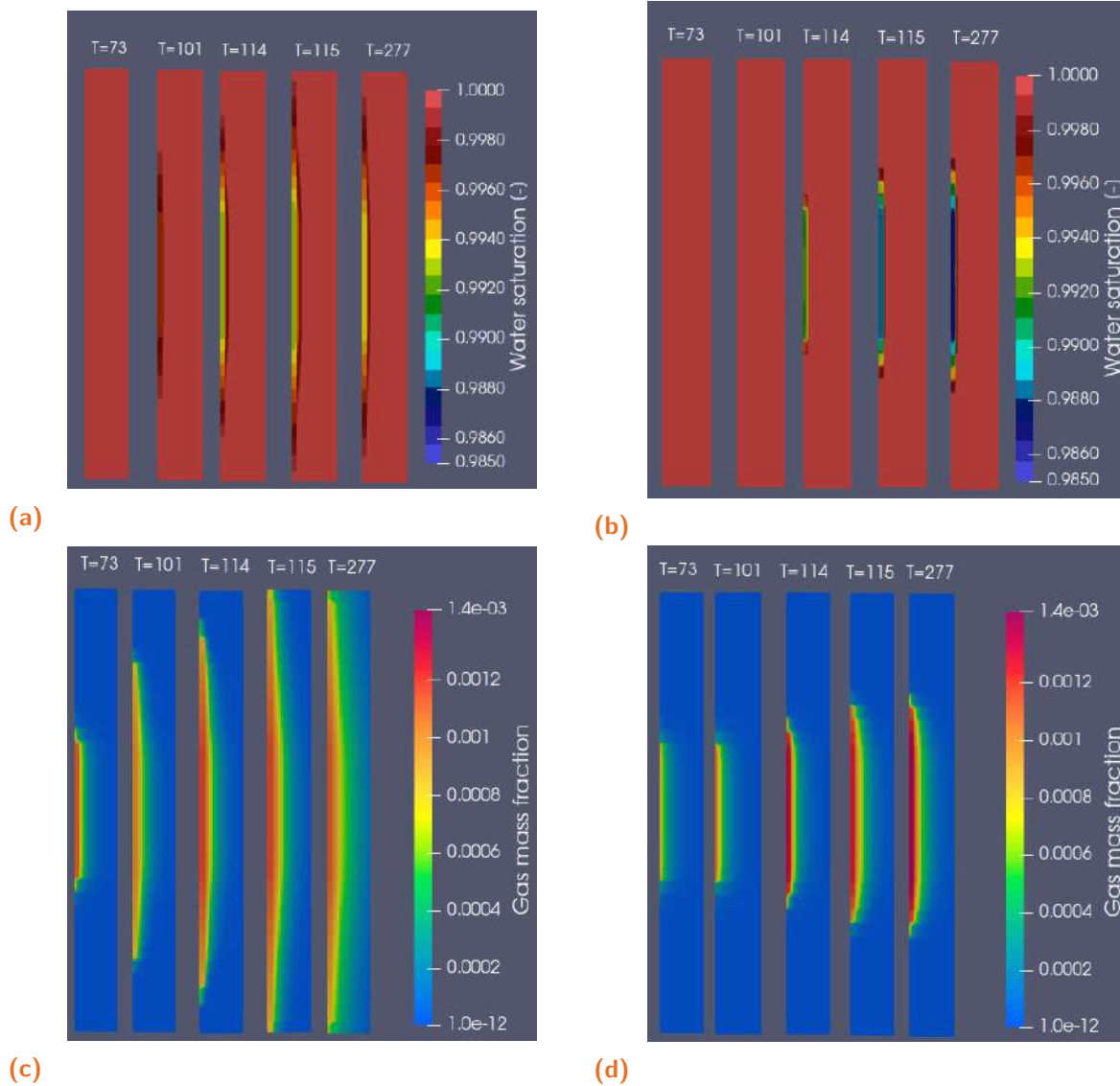
**Figure 3.14** : Water saturation vs. time in the P1 and P2 cells, simulated with the VGM model ( $P_{c,e} = 0$ ) and with the VGM/Pe model ( $P_{c,e} = 2$  MPa). Points P1 and P2 are in two adjacent cells, respectively in the EDZ (P1) and in the intact COx (P2).

other hand, for the simulation performed with the VGM/Pe model, gas is transported only by diffusion in water during early times, at least until capillary pressure becomes higher than gas entry pressure, which then leads some time later to the desaturation of the COx (Fig. 3.15.b, Fig. 3.15.d).

Note that the magnitude of water desaturation in the EDZ and COx obtained with the VGM/Pe model is higher than that simulated by the VGM model without entry pressure (Fig. 3.14, Fig. 3.15). This could indicate that the convective gas flux in the rock abruptly increases when the capillary threshold is overcome; this phenomenon could also cause the observed higher pressure gradients occurring near fully water saturated zones with the VGM/Pe model (in contrast with the VGM model) : see Fig. 3.14 and Fig. 3.15.d. This implies that  $P_{c,e}$  delays the water advance in the COx, which also reduces the advective transport of dissolved nitrogen gas in the COx. *Note.* In fact, although water desaturation in the EDZ and COx is significant for the VGM/Pe model ( $P_{c,e} = 1.997$  MPa), its *spatial extent* within the COx is still smaller than that for the VGM model ( $P_{c,e} = 0$ ). But the *magnitude* of water desaturation in the EDZ and COx obtained with the VGM/Pe model is higher than that simulated by the VGM model. When entry pressure is taken into account, the "nitrogen piston effect on water displacement" (Saâdi et al. 2020 [118]) becomes dominant within the COx as time increases.

To sum up, the effect of entry pressure  $P_{c,e}$  is to block temporarily the advection of the dissolved nitrogen gas, as can be seen from gas mass fraction distributions in

Fig. 3.15.(c,d) This "barrier effect" is also visible in the temporal plots shown earlier in Fig. 3.14.



**Figure 3.15 :** Simulated 2D spatial distributions of gas mass fraction and of water saturation for the PGZ1 experiment at different times  $T$  [days]. Left subfigures (a,c) : VGM model (without entry pressure). Right subfigures (b,d) : VGM/Pe model (with entry pressure).

### 3.5 Conclusions

In this paper, important two-phase flow phenomena in low permeability materials are investigated, in the context of radioactive waste disposal in deep geological formations. In particular, a detailed formulation and approach to characterize and quantify the gas entry pressure parameter in low permeability porous media is given. The important impact of gas entry pressure as a parameter influencing gas migration mechanisms is

demonstrated via numerical experiments, including comparisons with in-situ gas pressure measurements during a gas injection experiment in clay rock.

A detailed formulation of the modified van Genuchten / Mualem (VGM) model is provided, where a non-zero gas entry pressure is introduced (modified VGM model). The source code of iTOUGH2 is also modified accordingly, in order to accommodate this modified VGM model and to reproduce the vertical flow tests of Vogel et al. (2001)

The water and gas hydrodynamic parameters of the CO<sub>x</sub> rock were investigated based on available data in the literature, for the (modified) VGM model of constitutive curves (water and gas permeability curves). The RETC fitting technique was extended to gas permeability. The experiment PGZ1-GAS was then modeled with the (modified) version of the iTOUGH2 code. The model was able to reproduce the key tendencies of the experimental results, and the introduction of the adequate value of gas entry pressure of the intact rock improves the modeling results. Introducing a non-zero gas entry pressure (or a capillary entry pressure parameter) clearly affects the transient dynamics of gas transport: in particular, there is a delay in gas intrusion in the host rock from the injection chamber, and a higher water flux when the gas pressure overcomes the capillary pressure threshold.

In light of these results, both from the benchmark tests of vertical flow, and from the simulation of water-gas flow in the PGZ1-GAS experiment, it appears that the gas entry pressure is a key parameter and plays an important role in predicting the fate of gases in a DGR (e.g. gas piston effect in water displacement, Saâdi et al. (2020) [118]). Therefore, in such applications, a careful estimation of  $P_{c,e}$  is necessary whenever low permeability and clayey materials are involved, as is the case for engineered barrier materials (bentonite, concrete, etc.) and for the host clay rock at several study sites (the Meuse/Haute-Marne URL at Bure in France, as well as other study sites like the Mont Terri URL in Switzerland).

We would like to thank Dr. Stefan Finsterle for providing the iTOUGH2 software, and for his valuable comments on a first version of the manuscript. We would also like to acknowledge the valuable comments of the anonymous reviewers.

## Conclusion en français (pression d'entrée)

On a présenté dans ce chapitre une étude, théorique et numérique, de l'effet de la pression d'entrée sur transfert de gaz en milieu argileux initialement saturé en eau. Un modèle diphasique eau-gaz de courbes de rétention et de perméabilités relatives a été établi. Deux méthodes d'ajustement de paramètres de ce nouveau modèle ont été

étudiées, et deux approches de modélisation de la pression d'entrée dans le code iTOUGH2 ont été implémentées. Après des tests de vérification et de validation, à travers des comparaisons avec une solution semi-analytique et d'autres codes de calcul, l'expérience PGZ1-GAZ d'injection de gaz (azote) in-situ dans la roche argileuse du Callovo-Oxfordien a été modélisée. L'introduction de la pression d'entrée a permis une amélioration des résultats de simulations par rapport aux mesures expérimentales, et de distinguer entre les différents processus de migration des gaz, influencés notamment par la pression d'entrée de la roche. NB : des détails numériques d'implémentation des méthodes d'ajustement et de prise en compte de la pression d'entrée capillaire dans le code iTOUGH2 ont été présentés auparavant dans le chapitre (2).

Ce travail s'inscrit dans le cadre des études de la migration d'hydrogène dans un stockage de déchets radioactifs. Les résultats soulignent l'importance de prendre en compte la pression d'entrée dans les simulations numériques de transfert de gaz lorsque ceux-ci sont produits dans un milieu initialement saturé ou proche de la saturation totale en eau.



# Modeling multi-phase flow with hysteresis : Application to deep geological structures, storage of radioactive waste and CO2 (Article in preparation for publication)

## Overview :

Drainage (drying) and imbibition (wetting) cycles are expected in many applications involving subsurface flows, such as underground CO<sub>2</sub> storage, hydrocarbon extraction and production, and deep geological storage of radioactive waste. In the presence of imbibition/drainage cycles, the relationships  $S_w$ - $P_c$ - $k_w$ - $k_g$  are not a simple function exhibit, and depend on the history of wetting/drying process.

However, most of the recent numerical and experimental studies highlight the importance of hysteresis and its effect on two-phase flows in porous media. In this study, an extensive critical review of conceptual models of hysteresis in porous media is first presented (Mualem 1974 & 1984, Haverkamp et al. 2002, Doughty et al. 2007, Beriozkin & Mualem 2018). The performance of these models is evaluated and tested from a theoretical point of view (assumptions) but also by confronting them with measured data for various porous materials extracted from the literature (cements, sands, Bentonite MX80). The advantages and disadvantages of the different hysteretic models are discussed.

Finally, After we implement the five hysteresis models in the iTOUGH2 code, we develop a numerical simulation of a two-phase flow experiment of two non miscible fluids at the intermediate laboratory scale (metric dimensions), allowing us to implement and compare the models of constitutive relations with or without hysteresis, and also, with or without capillary entrapment. The results of this comparative study highlight the need to take into account the hysteresis phenomenon in the modelling of multiphase flows in porous media when they are subjected to drying-wetting cycles, and suggest the use for Mualem and Beryozkin (2018) model for its performance and its numerical advantages.

## Introduction et résumé en français

TITRE : Modélisation multiphasique des écoulements en présence d'hystérésis : Application aux structures géologiques profondes, stockage de déchets radioactifs et de CO<sub>2</sub>. (*Article en préparation for publication*).

On s'attend à ce qu'il y ait des cycles de drainage (dessèchement) et d'imbibition (humectation) dans de nombreuses applications où interviennent des écoulements souterrains, tels que le stockage souterrain de CO<sub>2</sub>, l'extraction et la production d'hydrocarbures, et le stockage géologique profond de déchets radioactifs. En présence de cycles imbibition/drainage, les matériaux poreux manifestent de l'hystérésis dans la courbe de rétention saturation – pression capillaire : la relation  $S(P_c)$  dépend alors de la cinétique d'humectation / dessèchement. Plus précisément, les cycles alternés de drainage et d'imbibition produisent localement, en des points donnés du milieu poreux souterrain, des chemins hystérétiques complexes de désaturation et de resaturation dans l'espace des variables  $(S, P_c)$  (degré de saturation, pression capillaire). Ces chemins peuvent suivre des courbes principales de dessèchement ou d'imbibition ("primary scanning curves"), mais aussi par la suite, des chemins secondaires, tertiaires, etc.

Cependant, la plupart des études récentes sur les écoulements diphasiques en milieux poreux, lorsqu'elles considèrent le phénomène d'hystérésis, se concentrent surtout sur les chemins primaires dans la courbe de rétention  $S(P_c)$  et dans les courbes de perméabilités à l'eau et au gaz  $k_w(P_c)$  et  $k_g(P_c)$ .

Dans la présente étude, on commence par présenter une revue critique extensive des modèles conceptuels de l'hystérésis en milieux poreux (Mualem 1974 & 1984, Haverkamp et al. 2002, Doughty et al. 2007, Beriozkin & Mualem 2018). La performance de ces modèles est évaluée et testée d'un point de vue théorique (hypothèses) mais aussi en les confrontant à des données mesurées pour divers matériaux poreux extraits de la littérature (ciments, sables, Bentonite MX80). Les avantages et les inconvénients des différents modèles hystérétiques sont discutés.

Enfin, on développe par simulation numérique une modélisation d'une expérience d'écoulement diphasique de deux fluides non miscibles à l'échelle intermédiaire du laboratoire (dimensions métriques), nous permettant de mettre en oeuvre et comparer les modèles de relations constitutives avec ou sans hystérésis, et aussi, avec ou sans piégeage capillaire. Les résultats de cette étude comparative mettent en lumière la nécessité de prendre en compte le phénomène d'hystérésis dans les modélisations d'écoulements multiphasiques en milieux poreux lorsque ceux-ci sont soumis à des cycles de dessèchement-humectation.

## 4.1 Introduction

Accurate characterisation of the relationships of hydraulic properties is essential to understanding and modeling multiphase flow in porous media. These relationships are a subject to hysteresis phenomenon during drying and wetting cycles. Various models have been used over the years to describe the hysteretic capillary-saturation relationships. A detailed overview of existing hysteresis models can be found in [94], [147] and [6]. many studies (Zhang 2014 [146], Doughty 2007 [42], Lenhard et al. 1989 [81], Cihan et al. 2017 [30]) highlight the necessity of taking into account the hysteresis phenomena in the modeling of multiphase transport in porous media.

For example, Lenhard et al. (1987) [78] proposed a hysteretic model based on the concept of non-wetting phase entrapment using the Scott et al. (1983) [119] scaling technique. After a series of publications Lenhard showed that there is a significant difference in fluid saturations between hysteretic and non hysteretic simulations of the post-injection of NAPL into the vadose zone. Doughty et al. (2007) [42] introduced the concept of non-wetting phase entrapment saturation in the hysteresis model of Mualem (1984) [141] with a simple manner, using Land formula (1968) [75] with a clever technique in the Van Genuchten-Mualem formulation (1980) [131]. The model was extended to gas and water permeabilities using Parker and Lenhard (1987) [99] formulation. The Doughty (2007) was implemented in the iTOUGH2 code with an exemple simulation of the injection of supercritical carbon in a saline aquifer, where the effect of hysteresis is well demonstrated. Zhang et al. (2014) [146] conducted a comparative study on some empirical model (Braddock et al. (2001) [19], Li et al (2005) [82], Rubin et al. (1967) [117] , Feng et al (1999) [46] ) and the conceptual models of Mualem (1974) [96] and Mualem (1984) [141]. They showed that the conceptual models are more accurate than the empirical ones for predicting wetting and drying cycles of moisture dynamics in cementitious materials.

On the other hand, Cihan et al. (2017) [30] developed a hysteresis model based on relating macroscopic variables to the microscopic properties of the porous media, including void distribution and connectivity function. Using a laboratory intermediate scale experiment of non-wetting fluid injection, they showed that the hysteresis model predict well the plume migration and distribution during and post-injection of a non-wetting phase compared to the non-hysteresis model. More recently, Mualem and Beriozkin (2018) [15] showed that the Parker and Lenhard (1987) [99] model presents a non parallelism of two scanning curves departing from the main drying curve and the first drying curve. In other word : non parallelism means here that two wetting process departing from the main drying branch and the first drying branch, should be accompanied by the same increase in saturation [15]. They used the linear law for non-wetting phase entrapment

applied to the Mualem model (1974) [96] to derive 6 equations of scanning curves coming from the main curves.

Choosing the right model of hysteresis including the representation of non-wetting phase entrapment phenomena seems to be a challenging task in modeling multi-phase flow in porous media. In this study, we perform a comparison of the most relevant conceptual models in the literature. The models are tested on a wide range of porous media. The representation of non-wetting phase entrapment is discussed, and a general algorithm for modeling hysteresis is provided, with a discussion of the important hyperparameters. Finally, the intermediate-scale laboratory experiment of Soltrol 220 injection into a sand aquifer fully saturated with glycerol-water mixture is modeled with and without hysteresis models.

## 4.2 Brief description of some conceptual hysteresis models

Hysteresis models can be classified into two categories, empirical and conceptual. The empirical models are based on fitting hyper-parameters from the two scanning curves in order to predict any scanning curve, these models are not taken into account in this study due to pumping error (PE) resulting on the non closure of scanning hysteresis loops associated with cyclic oscillatory as reported in Zhang 2014 [147]. These empirical models may require an additional measured scanning curve of higher order. The conceptual models, generally based on independent and dependent domain theory, introduced by Poulouvassilis (1962)[108] and Poulouvassilis et al. (1971) [106] from the Preisach (1935) [109] model, were used to describe ferromagnetic hysteresis. Conceptual models have been extended in many recent studies to take into account the capillary entrapment phenomena. In this section we present an exhaustive critical review of a wide range of conceptual hysteresis models based on Mualem (1974) [96], Mualem (1984) [141], Haverkamp et al. (2002) [57], Doughty et al. (2007) [42], and Beriozkin and Mualem (2018) [15].

### 4.2.1 Empirical hysteresis models without non-wetting phase entrapment

The classical models of hysteresis are based on interpolating values of scanning curves from main curves. In this review we focus on hysteresis models derived from two theories. The first one is the domain theory which combine models based on the dependent domain theory from Mualem (1974) [96] and the independent domain theory

from Mualem (1984) [141]. The second theory is based on the rational extrapolation of Parlange (1976) [100], also adopted later by Haverkamp et al. (2002) [57].

#### 4.2.1.1 Mualem model 1974

According to the domain theory in soil physics, the porous media can be presented by a bivariate pore water distribution function  $f(\bar{r}, \bar{\rho})$  where :

$$\bar{r} = \frac{r(P_c) - r(P_{c,min})}{r(P_{c,max}) - r(P_{c,min})}$$

and

$$\bar{\rho} = \frac{\rho(P_c) - \rho(P_{c,min})}{\rho(P_{c,max}) - \rho(P_{c,min})}$$

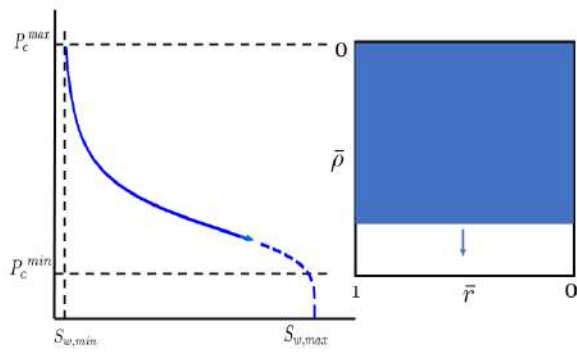
are two normalized pore radius parameters varying from 0 to 1 as capillary pressure  $P_c$  varies from  $P_{c,min}$  to  $P_{c,max}$ . They can be interpreted respectively as the radius of pore body and the radius of pore neck, following representation of hysteresis phenomena as the ink-bottle effect as described in M'jahed [93]. This two radius of pores Following this representation of pore size distribution, the water saturation is obtained by integration of the pore water distribution function, as follows :

$$S(P_c) = \int_{\bar{r} \in I_{\bar{r}(P_c)}} \int_{\bar{\rho} \in I_{\bar{\rho}(P_c)}} f(\bar{r}, \bar{\rho}) d\bar{\rho} d\bar{r} \quad (4.1)$$

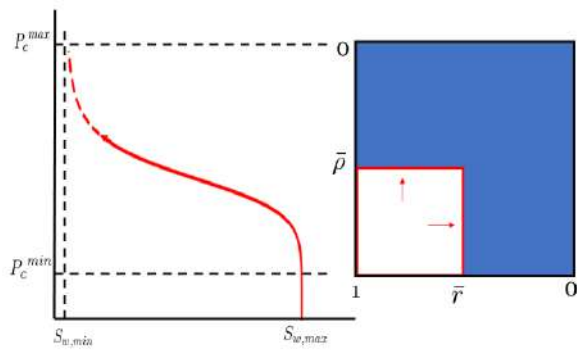
Mualem (1974) [96] assumed that each group of pores is independent of its neighbors, more precisely this assumption stipulates that pore neck size is totally independent from pore body size and the bivariate function can be expressed as the product of two independent functions  $f(\bar{r}, \bar{\rho}) = h(\bar{r}) \times l(\bar{\rho})$ . The liquid saturation  $S_l(P_c)$  at a given capillary pressure can be obtained by integration of pore liquid distribution function over specific intervals  $I_{\bar{\rho}(P_c)}$  and  $I_{\bar{r}(P_c)}$ .

$$S(P_c) = \int_0^{\bar{r}(P_c)} \int_0^{\bar{\rho}(P_c)} f(\bar{r}, \bar{\rho}) d\bar{\rho} d\bar{r} = \int_0^{\bar{r}(P_c)} \int_0^{\bar{\rho}(P_c)} h(\bar{r}) \times l(\bar{\rho}) d\bar{\rho} d\bar{r} \quad (4.2)$$

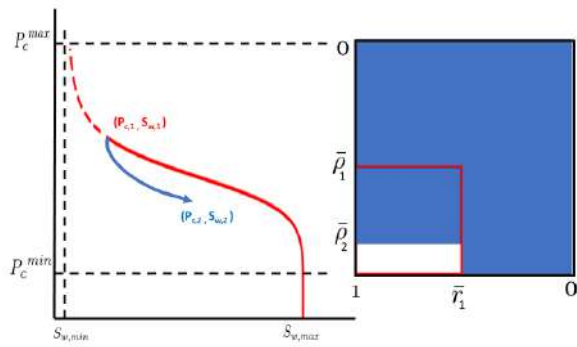
In order to illustrate the drying and wetting process, and to derive scanning curves equations, Mualem (1974) [96] used the diagram shown in figure (4.1) to explain the drying and wetting cycles.



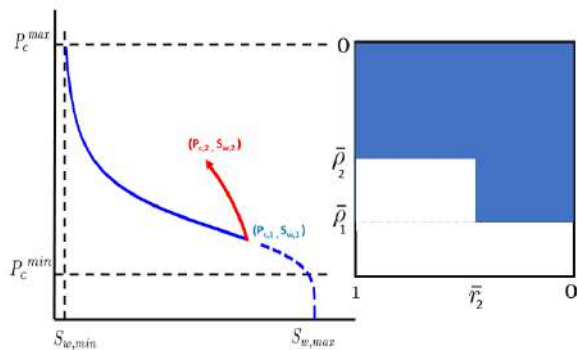
(a)



(b)



(c)



(d)

**Figure 4.1 :** Schematic representation of processes of main wetting (a), main drying (b), first wetting scanning (c), and first drying (d) using the diagramme of independent domain theory of Mualem (1974) [96].

The process of drying and wetting of pores is illustrated in figure (4.1). It is governed by two assumptions :

- For the drying process from  $P_c(\bar{R})$  to  $P_c(\bar{R} - d\bar{R})$  only the groups of pores characterized by  $\bar{R} \leq \bar{r} \leq 1$  and  $\bar{R} - d\bar{R} \leq \bar{\rho} \leq \bar{R}$  are drained,
- For the wetting process from  $P_c(\bar{R})$  to  $P_c(\bar{R} + d\bar{R})$  all the groups of pores characterized by  $\bar{R} \leq \bar{\rho} \leq \bar{R} + d\bar{R}$  are filled.

Based on these assumptions, Mualem (1974) [96] derived an explicit formulation of any scanning curve order (First drying, second wetting, third drying..). Let  $S_{N,d}(P_c)$  (resp.  $S_{N,w}(P_c)$ ) be the unknown saturation for the Nth wetting (resp. Nth drying) curve from the Nth turning point  $S_{tp,N}(P_{c,N})$ ,  $S_{N,d}(P_c)$  (resp.  $S_{N,w}(P_c)$ ); it can be expressed by

$$S_{N,d}(P_c) = S_{tp,N}(P_{c,N}) - \int_{\bar{r}(P_c)}^1 \int_{\bar{\rho}(P_{c,N})}^{\bar{\rho}(P_c)} h(\bar{r}) \times l(\bar{\rho}) d\bar{\rho} d\bar{r} \quad (4.3)$$

(resp)

$$S_{N,w}(P_c) = S_{tp,N}(P_{c,N}) + \int_0^1 \int_{\bar{\rho}(P_c)}^{\bar{\rho}(P_{c,N})} h(\bar{r}) \times l(\bar{\rho}) d\bar{\rho} d\bar{r} \quad (4.4)$$

From the integration of the pore water distribution based on equations (4.4) and (4.3), the Nth scanning path for the wetting and drying process can be written explicitly as :

$$S_{N,w}(P_c) = \begin{cases} S_{tp,N}(P_{c,N}) + (S_w(P_c) - S_w(P_{c,N})) \left( \frac{S_{max,w} - S_d(P_{c,N})}{S_{max,w} - S_w(P_{c,N})} \right) & \text{if } P_c \geq P_{c,N-1} \\ S_{N-2,w}(P_c) & \text{if } P_c \leq P_{c,N-1} \end{cases} \quad (4.5)$$

(resp)

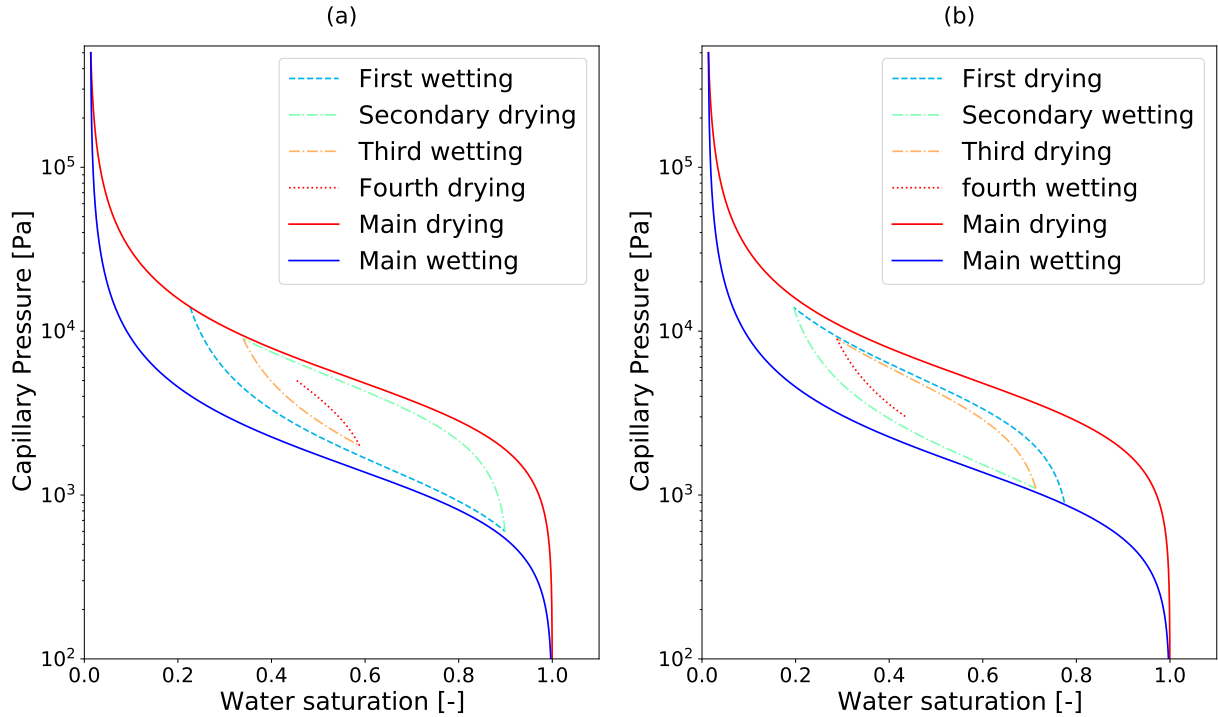
$$S_{N,d}(P_c) = \begin{cases} S_{tp,N}(P_{c,N}) - (S_w(P_{c,N}) - S_w(P_c)) \left( \frac{S_{max,w} - S_d(P_c)}{S_{max,w} - S_w(P_c)} \right) & \text{if } P_c \leq P_{c,N-1} \\ S_{N-2,d}(P_c) & \text{if } P_c \geq P_{c,N-1} \end{cases} \quad (4.6)$$

where  $S_{0,w} = S_w$  (resp  $S_{0,d} = S_d$ ) is the main wetting (resp drying) curve, and  $S_{max,w}$  is the maximum water saturation for a complete wetting process starting with an initially dry soil.

Equations (4.6) and (4.7) define scanning curves of any order as illustrated in figure (4.2), where a series of scanning curves were plotted based on the hysteretic model of Mualem (1974) [96] and the Van Genuchten formulation of the main curves with  $n_w = n_d = 2.145$ ,  $\alpha_d = 2.61 \times 10^{-4} [Pa^{-1}]$ ,  $\alpha_w = 9.16 \times 10^{-4} [Pa^{-1}]$ ,  $S_{ls} = 1.0$ , and  $S_{lr} = 0$ ,



with a turning points  $P_{c,1} = 1.4 \times 10^4$  Pa,  $P_{c,2} = 600$  Pa,  $P_{c,3} = 9 \times 10^3$  Pa, and  $P_{c,4} = 2 \times 10^3$  Pa for the figure (4.2.a).  $P_{c,1} = 900$  Pa,  $P_{c,2} = 1.4 \times 10^4$  Pa,  $P_{c,3} = 1.1 \times 10^3$  Pa, and  $P_{c,4} = 9 \times 10^3$  Pa for the figure (4.2.b)



**Figure 4.2 :** Schematic illustration of soil water hysteresis with the independent domain theory of Mualem (1974) [96] (a) Continuous sequence of scans departing from the main drying curve, (b) Continuous sequence of scans departing from the main wetting curve.

### 4.2.1.2 Mualem model 1984

The Mualem model (1974) assumed that the drying and the wetting of pores are independent of the state of saturation of neighboring pores, which is not the case in a real porous medium. To take into account this dependency, Mualem (1984) [141] introduced different factors in order to take into account the portion of drainable pores in a new model, called the universal model, corresponding to the 'dependent domain' theory of Mualem (1984) [141]. This new model integrates only one dependent factor  $P_d$  which can be related to the pore blockage against the non-wetting phase (air). The new formulation for the Nth wetting (resp, N th drying) curve from the Nth turning point  $S_{tp,N}(P_{c,N}) \cdot S_{N,d}(P_c)$  (resp  $S_{N,w}(P_c)$ ) is then expressed by the following equations :

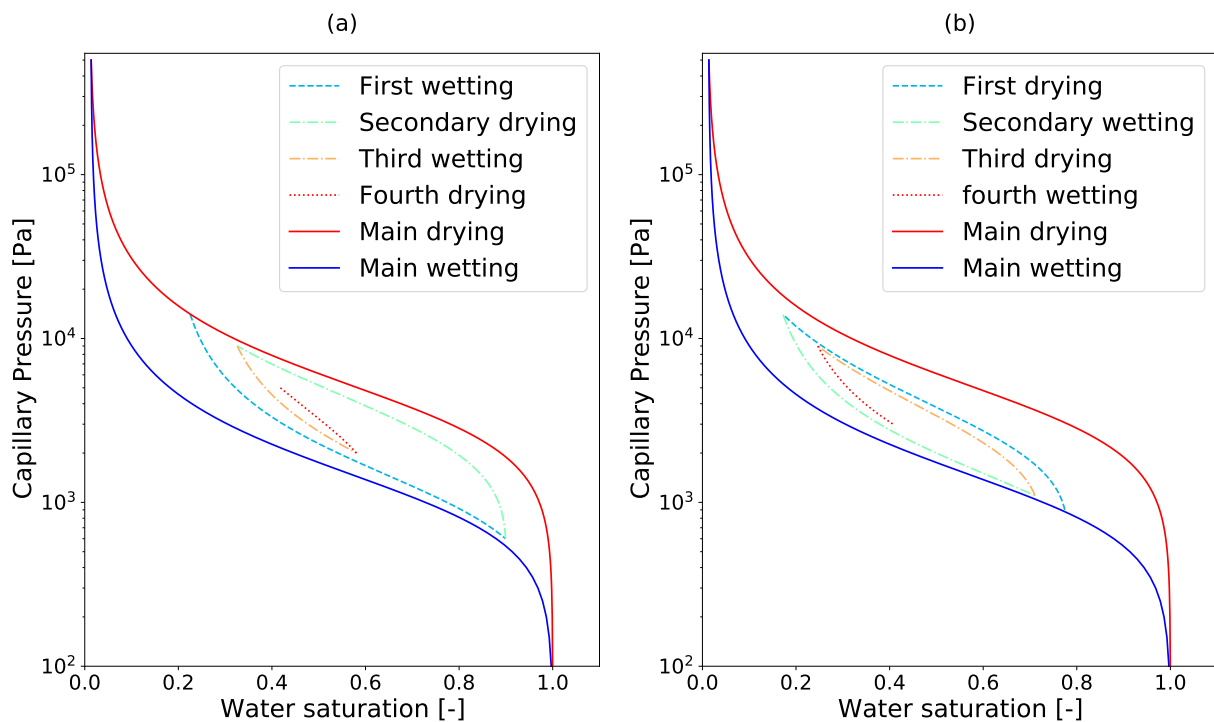
$$S_{N,w}(P_c) = \begin{cases} S_{tp,N}(P_{c,N}) + P_d(S_{tp,N}(P_{c,N})) \times (S_w(P_c) - S_w(P_{c,N})) \left( \frac{S_{max,w} - S_w(P_{c,N})}{S_{max,w}} \right) & \text{if } P_c \geq P_{c,N-1} \\ S_{N-2,w}(P_c) & \text{if } P_c \leq P_{c,N-1} \end{cases} \quad (4.7)$$

(resp)

$$S_{N,d}(P_c) = \begin{cases} S_{tp,N}(P_{c,N}) - P_d(S_{N,d}(P_c)) \times (S_w(P_{c,N}) - S_w(P_c)) \left( \frac{S_{max,w} - S_w(P_c)}{S_{max,w}} \right) & \text{if } P_c \leq P_{c,N-1} \\ S_{N-2,d}(P_c) & \text{if } P_c \geq P_{c,N-1} \end{cases} \quad (4.8)$$

where  $P_d(S) = \frac{(S_{max,w} - S) \times S_{max,w}}{(S_{max,w} - S_w(P_c^*))^2}$  and  $P_c^*$  is defined by the relation :  $S_d(P_c^*) = S$

Note that equation (4.8) provides an implicit solution for the Nth drying curve ; an iterative method is required to compute  $S_{N,d}(P_c)$ .



**Figure 4.3 :** Schematic illustration of soil water hysteresis with the dependent model theory of Mualem (1984) [141] : (a) continuous sequence of scans departing from the main drying curve, (b) continuous sequence of scans departing from the main wetting curve.

Comparing the independent and dependent domain theories of Mualem (1974,1984), as illustrated in Figure (4.2) and Figure (4.3), respectively, it can be seen that under the same turning points, the dependent domain theory leads to a higher desaturation than the independent domain theory.

### 4.2.1.3 Haverkamp 2002

Based on the theoretical model of Parlange (1976) [100], Haverkamp et al. (2002) [57] derived geometrical scaling conditions for defining a hysteresis model. The model assumes that all the main curves and the scanning curves have the same normalized Van Genuchten formulation. For the Nth scanning curve, the normalized water retention can be defined as :

$$\bar{S}_{N,p}(P_c) = \frac{S_{N,p}(P_c) - S_{lr,N,p}}{S_{ls,N,p} - S_{lr,N,p}} = [1 + (\alpha_{N,p} \times P_c)^{n_{N,p}}]^{m_{N,p}} \quad (4.9)$$

where  $\bar{S}_{N,p}(P_c)$  (resp  $S_{N,p}(P_c)$ ) is the normalized water saturation (resp. the actual water saturation) for the Nth scanning curve with respect to the drying path (p=d) and wetting path (p=w). Note here that the symbol "p" is used as a path label (drying or wetting). Parameters  $S_{ls,N,p}$ ,  $S_{lr,N,p}$ ,  $n_{N,p}$ ,  $m_{N,p}$ ,  $\alpha_{N,p}$  are the Van Genuchten parameters corresponding to the Nth scanning curve with respect to the path "p". The determination of the Nth scanning curves ( $S_{ls,N,p}$ ,  $n_{N,p}$ ,  $m_{N,p}$ ,  $\alpha_{N,p}$ ) from the main curves parameters ( $S_{ls,0,p}$ ,  $n_{0,p}$ ,  $m_{0,p}$ ,  $\alpha_{0,p}$ ) is based on the constitutive relationships :

- All wetting and scanning curves have identical shape parameters :

$$n = n_{0,w} = n_{0,d} = n_{N,w} = n_{N,d} \quad (4.10a)$$

$$m = m_{0,w} = m_{0,d} = m_{N,w} = m_{N,d} \quad (4.10b)$$

- The pressure scale parameter of the main wetting and the main drying are related by :

$$\alpha_{0,w} = k \times \alpha_{0,d} \text{ where } k = \begin{cases} 2 & \text{if } m \times n > 1 \\ [1 + m \times n]^{\frac{1}{m \times n}} & \text{if } 0 < m \times n < 1 \end{cases} \quad (4.11)$$

- the closure of scanning curves implies each curve joins the point of departure of its parent curve, which leads to the specific conditions  $S_{ls,0,d} = S_{ls,0,w} = S_{ls,1,w} = S_{ls}$  and  $S_{lr,0,d} = S_{lr,0,w} = S_{lr,1,d} = 0$

- The pressure scale parameter for the Nth scanning curve is given by :

$$\alpha_{N,p} = \alpha_{0,p} \times \left[ \frac{S_{ls}}{S_{ls,N,p} - S_{lr,N,p}} \right]^{\frac{-1}{m \times n}} \quad (4.12)$$

- The Nth scanning curve is defined in the range of the actual turning point  $S_{tp,N}$  and the previous turning point  $S_{tp,N-1}$ . For example, for the first wetting process we have  $S_{tp,N}$  is the turning point from the main drying curve and  $S_{tp,N-1} = 1$ . For the Nth wetting process departure from  $(S_{tp,N}, P_{c,tr,N})$  and arrival to  $(S_{tp,N-1}, P_{c,tr,N-1})$  for the path p process, where p=d for drying and p=w for wetting, the VGM parameters  $S_{lr,N,p}$  and  $S_{ls,N,p}$  are derived from the constitutive equations :

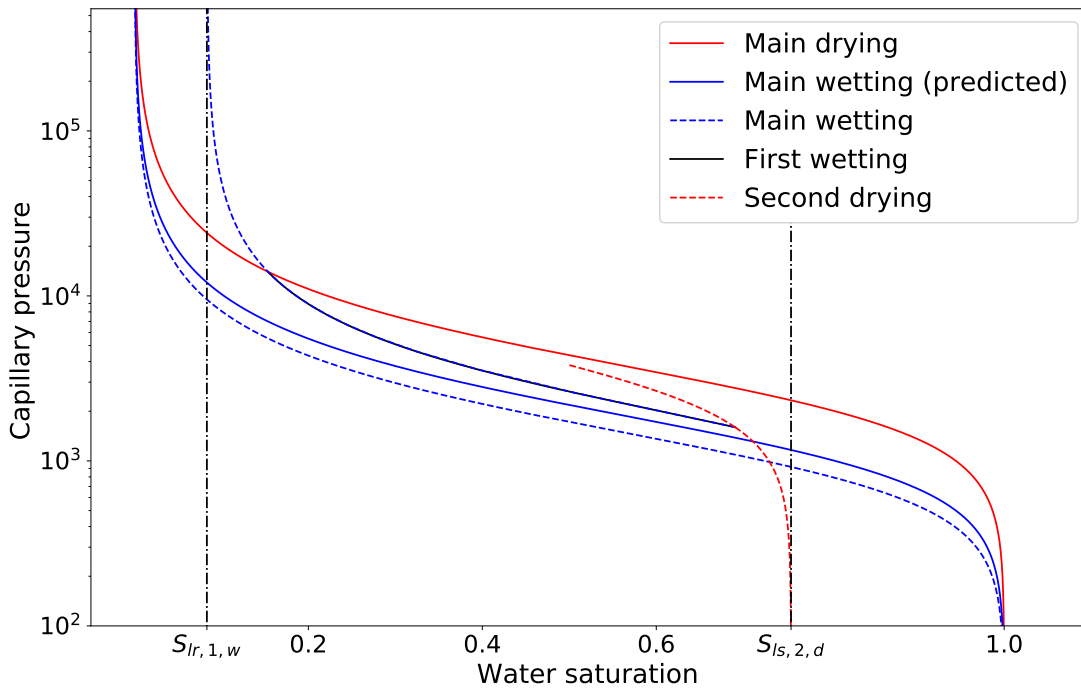
$$S_{ls,N,p} - S_{lr,N,p} = \frac{S_{tp,N} - S_{tp,N-1}}{S^*_{N,p}(P_{c,tr,N}) - S^*_{N,p}(P_{c,tr,N-1})} \quad (4.13a)$$

$$S^*_{N,p}(P_c) = \left[ 1 + k^{\epsilon_p} \times \left( \frac{S_{ls,N,p} - S_{lr,N,p}}{S_{ls,N-1,\bar{p}} - S_{lr,N-1,\bar{p}}} \right)^{\frac{1}{m}} \times (\alpha_{k-1,\bar{p}} \times P_c)^n \right]^{-m} \quad (4.13b)$$

$$S_{lr,N,p} = \frac{S_{tp,N-1} \times S^*_{N,p}(P_{c,tr,N}) - S_{tp,N} \times S^*_{N,p}(P_{c,tr,N-1})}{S^*_{N,p}(P_{c,tr,N}) - S^*_{N,p}(P_{c,tr,N-1})} \quad (4.13c)$$

where  $\epsilon_p=1$  for the wetting path (p=w) and  $\epsilon_p=-1$  for the drying path (p=d). The  $\bar{p}$  parameter designates the previous path of a scanning curve p (if p=d then  $\bar{p}=w$  and if p=w then  $\bar{p}=d$ ). The system of equation (4.13) give an implicit formulation of individual values of the parameters  $S_{lr,N,p}$  and  $S_{ls,N,p}$ , first the difference  $S_{ls,N,p} - S_{lr,N,p}$  is resolved from the equation (4.13.a) and (4.13.b), and the individuals values are determined using (4.13.c).

The figure 4.4 shows a scanning curve departing from the main drying curve for the same parameters using in the figures (4.2,4.3), with turning points  $P_{c,1} = 1.4 \times 10^4$  Pa,  $P_{c,2} = 1600$  Pa. We note that the Haverkamp et al. (2002) [57] model uses only one main curve to predict the hysteresis scanning curve.



**Figure 4.4 :** Schematic illustration of soil water hysteresis with the geometrical scaling model of Haverkamp et al. (2002) [57] continuous sequence of scans departing from the main drying curve.

The geometrical scaling of Haverkamp gives an explicit expression for any scanning curve order. However, the main wetting curve and main drying curve must respect the equation (4.12) which is not always the case. An additional computational cost is related to this model, due to the need of saving for each scanning curve the Van Genuchten parameters in addition to turning points.

## 4.2.2 Non-wetting phase entrapment with Hysteretic models

In multiphase porous media, subject to wetting and drying cycles, the non-wetting fluid may be present as a disconnected phase due to capillary forces. Many experiments highlight this phenomenon and its impact in applications like  $CO_2$  trapping : Hesse and Woods (2010) [59], Krevor et al. (2011) [71] and Trevisan et al. (2014) [129]. In this subsection, we discuss the different representations of non-wetting phase trapping and their implementation in different hysteresis models.

### 4.2.2.1 Non-wetting phase entrapment saturation

As reported though several experimental studies (e.g., Raeesi et al., (2014) [115]) the amount of non-wetting phase entrapment saturation  $S_{nw}^\Delta$  is highly correlated to the initial non-wetting phase saturation  $S_{nw,i}$ . The Land's formula (equation (4.14)) is the most widely used in existing hysteresis models :

$$S_{nw}^\Delta = \frac{1}{\frac{1}{S_{nw,max}^\Delta} + \frac{1}{1-S_{tp}} + \frac{1}{1-S_{tr}}} \quad (4.14)$$

where " $\Delta$ " stands for entrapment phenomenon and "nw,r" signifies non wetting phase residual saturation. However, recent studies (Suzanne et al. (2003) [125], Pentland et al. (2010) [101]) reveal that the linear law of Aissaoui et al. (1983) [5] performs better to represent measured data. Aissaoui's formulation is an adaptation of the linear law of non-wetting phase entrapment. The non-wetting phase entrapment saturation  $S_{nw}^\Delta$  increases linearly with the initial gas saturation  $S_{g,i}$  before stabilizing (plateauting) to a maximal value of non-wetting phase entrapment saturation  $S_{nw,max}^\Delta$  :

$$S_{nw}^\Delta = \begin{cases} \frac{S_{nw,max}^\Delta}{S_{nw,c}} S_{nw,i} & \text{if } S_{nw,i} \leq S_{nw,c} \\ S_{nw,max}^\Delta & \text{if } S_{nw,i} \geq S_{nw,c} \end{cases} \quad (4.15)$$

The main parameter to represent the relation between initial now-wetting phase saturation and residual non-wetting phase entrapment is the maximal value of non-wetting entrapped saturation  $S_{nw,max}^\Delta$ . This parameter depends on the type of fluid used (oil/air-water) and the micro-structure of the porous medium. Doughty (2007) [42] considered that  $S_{nw,max}^\Delta$  is a constant material property that depends only on the porosity  $\phi$  according to the Holtz's formula taken from the petroleum literature :

$$S_{gr,max}^\Delta = -0.3136 \times \ln(\phi) - 0.1334 \quad (4.16)$$

Suzanne et al (2003) conducted a series of measurements on the maximum residual gas saturation for different porous media, and they concluded that the maximum gas entrapment saturation  $S_{gr,max}^\Delta$  cannot be predicted using porosity and permeability.

### 4.2.2.2 Lenhard and Parker 1987

In this paragraph, we present the model of Lenhard and Parker (1987) [99] for two phase system (liquid-gas) as described in Lenhard and Parker (1991) [80]. A detailed description of hysteresis in three phase systems can be found in Lenhard et al. (1989) [81]. In order to account for the non-wetting phase entrapment, Lenhard and Parker (1987)

[99] introduced the notion of apparent saturation  $\bar{S}^*(P_c)$ , which can be expressed as a sum of the effective liquid (water) saturation  $\bar{S}_l(P_c) = \frac{S_l(P_c) - S_{lr}}{S_{ls} - S_{lr}}$  and effective saturation of trapped non-wetting phase  $\bar{S}_g^{ent}(P_c) = \frac{S_g^{ent}(P_c)}{S_{ls} - S_{lr}}$  as follows :

$$\bar{S}_l^*(P_c) = \bar{S}_l(P_c) + \bar{S}_g^{ent}(P_c) \quad (4.17)$$

After a series of publications ( Lenhard (1992) [77], Kaluarachichi and Parker, (1992) [68], Lenhard and Parker, (1992) [79]) presented a hysteresis model aimed at avoiding the "pumping effect" in the hysteretic loops. They presented a hysteresis model for predicting scanning curves, based on the hysteresis model of scott et al. (1983) [119]. The new model as described by Lenhard and Parker, (1992) [79]) applies the hysteresis model of scott et al. (1983) [119] to the apparent saturation  $\bar{S}_g^{ent}$ , and using a linear representation of non-wetting phase entrapment the effective saturation  $\bar{S}_l$  is deduced. The equation of the Nth scanning path "p" is determined by the most recent reversal point  $(S^*_{tp,N}, P^*_{c,N})$  and the preceding reversal point  $(S^*_{tp,N-1}, P^*_{c,N-1})$  as expressed as :

$$\bar{S}^*(P_c) = S^*_{tp,N-1} + (S^*_{tp,N} - S^*_{tp,N-1}) \frac{S^*_p(P_c) - S^*_p(P^*_{c,N-1})}{S^*_{p}(P^*_{c,N}) - S^*_{p}(P^*_{c,N-1})} \quad (4.18)$$

Lenhard and Parker (1987) [78] assume that hysteresis in relative permeability relations is a result of non-wetting phase entrapment. The classical model of water and gas permeability of Mualem [95] expressed as follows :

$$k_{r,l}(\bar{S}_l) = \bar{S}_l^\tau \left[ \frac{\Gamma(0, \bar{S}_l)}{\Gamma(0, 1)} \right]^2 \quad (4.19)$$

$$k_{r,g}(\bar{S}_l) = (1 - \bar{S}_l)^{\tau'} \left[ \frac{\Gamma(\bar{S}_l, 1)}{\Gamma(0, 1)} \right]^2 \quad (4.20)$$

where  $\bar{S}_l = \frac{S_l - S_{lr}}{1 - S_{lr}}$  is the effective water saturation,  $\tau$  and  $\tau'$  are dimensionless parameters related to the pore water connectivity (For liquid and gas phase respectively). In addition, Lenhard [78] imposes a correction to the original Mualem formulation eq.(4.19) of the permeabilities in order to take into account the non-wetting phase entrapment in the mobile fluid phases :

$$k_{r,l}(\bar{S}_l) = \bar{S}_l^\tau \left[ \frac{\Gamma(0, \bar{S}_l) - \frac{\bar{S}_{gt}}{1 - \bar{S}_{tp}} \times \Gamma(\bar{S}_{tp}, \bar{S}_l)}{\Gamma(0, 1)} \right]^2 \quad (4.21)$$

$$k_{r,g}(\bar{S}_l) = (1 - \bar{S}_l)^{\tau'} \left[ \frac{\Gamma(\bar{S}_l, 1)}{\Gamma(0, 1)} \right]^2 \quad (4.22)$$



where

—  $\bar{S}_{gt} = \frac{S_{gt}(S_l - S_{tp})}{(1 - S_{l,r})(1 - S_{tp} - S_{gt})}$  is the effective trapped non-wetting phase saturation,

—  $\bar{S}_{tp} = \frac{S_{tp} - S_{l,r}}{1 - S_{l,r}}$  is the effective turning point saturation,

—  $\bar{S}_l$  is the effective apparent saturation, defined as the sum of the effective water saturation  $\bar{S}_l$  and the effective trapped non-wetting phase saturation  $\bar{S}_{gt}$ ,

We note that equation (4.21) is obtained for the general form and may be used in the next section in order to derive an expression for water permeability using other  $S$  using the Land's formula for non-wetting phase entrapment and adaptation may be made for another use of  $S_{nw}^\Delta - S_{g,i}$  relationships.

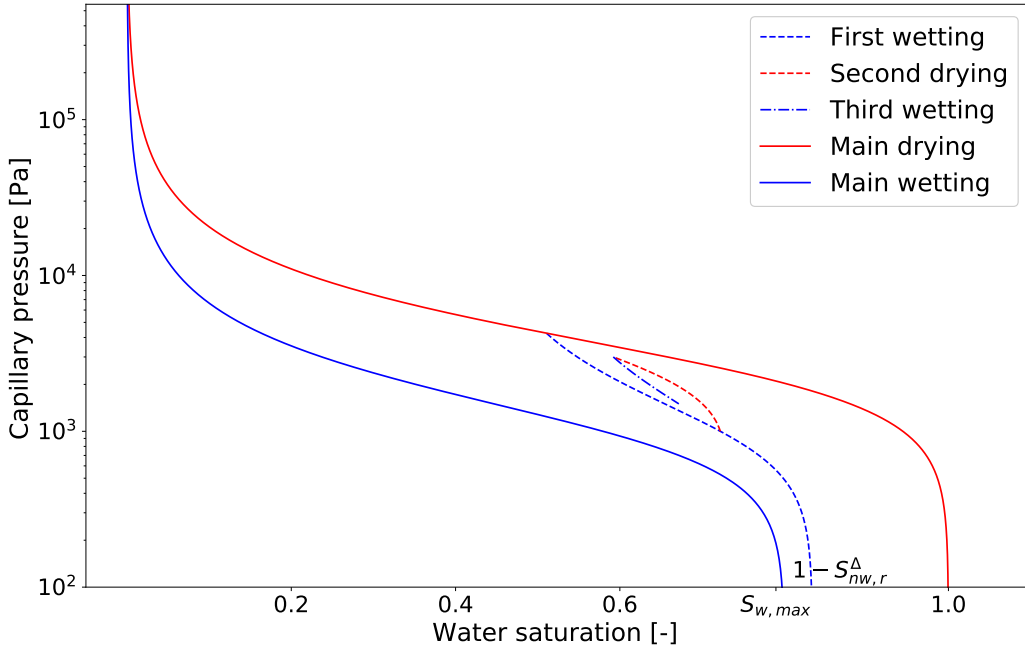
The Lenhard and Parker (1987) [78] model is more realistic, in that it takes into account the phenomenon of non-wetting phase entrapment and its effect on the relative permeabilities. However, it represents an intermediate operation to switch from the apparent to effective water saturation.

### 4.2.2.3 Doughty 2007

Doughty (2007) [42] applied the dependent domain theory of Mualem (1984) 4.2.1.2 to a new formulation of the  $P_c(S_l)$  relationship of Van Genuchten-Mualem (VGM), by accounting for the entrapped gas saturation. The new formulation of the capillary pressure and water saturation is described as follows :

$$P_c = P_0^p \left[ \left( \frac{S_l - S_{l,r}}{1 - S_{nw}^\Delta - S_{l,r}} \right)^{\frac{-1}{m^p}} - 1 \right]^{1-m^p} \quad (4.23)$$

where  $P_0^p$ ,  $m^p$ ,  $S_{l,r}$  are the VGM parameters of the main wetting (p=w) and the main drying (p=d). The amount of trapped non wetting phase saturation  $S_{gr}^\Delta$  saturation depends on the the recent reversal point from drainage to imbibition  $S_{tp}$  and on the input parameter of maximum residual gas saturation  $S_{gr,max}^\Delta$ , which is a characteristic of the soil, calculated from the main wetting curve and linearly given by the Land formulation (equation (4.14)). The figure (4.5) represents a hysteresis scanning curves coming from the main drying curve for the same parameters of VGM model in figure (4.2). The turning points are chosen to demonstrate the non-wetting phase entrapment ; numerical values are  $P_{c,1} = 4.25 \times 10^3$  Pa,  $P_{c,2} = 1 \times 10^3$  Pa, and  $P_{c,3} = 3 \times 10^3$  Pa.



**Figure 4.5 :** Schematic illustration of water-gas hysteresis using the Doughty (2007) [42] model. The parameters of Van Genuchten model are the same as in the figure (4.2)

Using the Van Genuchten model equation(4.9) Doughty [42] integrates the equation (4.21) to obtain an explicit expression for relative water permeability  $k_{l,r}$  and relative gas permeability  $k_{g,r}$  :

$$k_{r,l}(\bar{S}_l) = \bar{S}_l^\tau \left[ 1 - \left( 1 - \frac{\bar{S}_{gt}}{1 - \bar{S}_{tp}} \right) \times \left( 1 - (\bar{S}_l + \bar{S}_{gt})^{\frac{1}{m}} \right)^m - \left( \frac{\bar{S}_{gt}}{1 - \bar{S}_{tp}} \right) \times \left( 1 - (\bar{S}_{tp})^{\frac{1}{m}} \right)^m \right]^2 \quad (4.24)$$

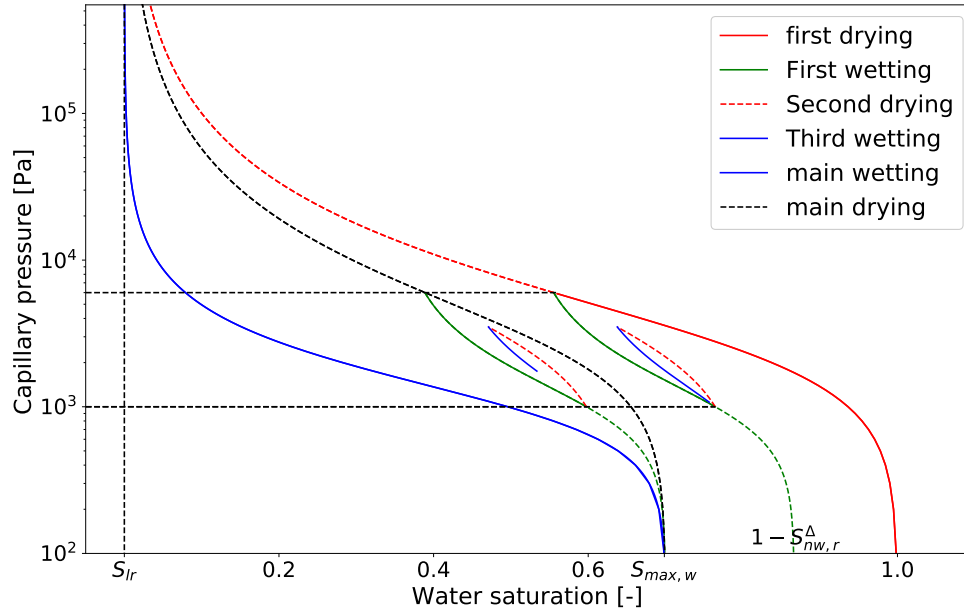
$$k_{r,g}(\bar{S}_l) = (1 - (\bar{S}_l + \bar{S}_{gt}))^{\tau'} \times (1 - (\bar{S}_l + \bar{S}_{gt})^{\frac{1}{m}})^{2m} \quad (4.25)$$

This model was implemented by Doughty (2007) [42] in the iTOUGH2 code [48], with three scanning curves, first wetting, second drying, and semilog straight lines to approximate the third wetting curve as suggested by Niemi et al. (1988)[97].

The Doughty (2007) [42] model uses a clever technique to represent the non-wetting phase entrapment saturation. This model as presented in Doughty (2007) [42] and in Doughty (2013) [41] presents the drawback of making many approximations near full water saturation which is the main state in our studies. In addition this model is not based on empirical aspects, it only uses the Mualem (1984) [141] model applied to a

scaling new wetting curve after the first reversal point from a main drying path to the first wetting path.

#### 4.2.2.4 Beriozkin and Mualem 2018



**Figure 4.6** : Schematic representation of Beriozkin and Mulaem hysteresis model (2018) [15] with two parallel sequences of scans departing from the main wetting curve (MWC) and from the first drying curve (FDC).

Beriozkin and Mualem (2018) [15] concluded that the hysteresis model with non-wetting phase entrapped suggested by Parker and lenhard (1987) [67] is based on invalid presumptions and the use of entrapped non-wetting phase formulate of Land (1968) [75] implies non-parallelism between two primary wetting departing from the main drying and first drying curve as substantiated in Mualem model (1974) [96]. The non-parallelism means that two paths of imbibitions that start from the main drying and the first drying under an equal change of capillary pressure do not imply the same variation in saturation. Beriozkin and Mualem (2018) [15] affirmed that Parker and lenhard (1987) [67] model present a superfluous intermediate operations of predicting effective saturation from apparent saturation. Using the scaling technique presented by Mualem and Beriozkin (2009) [94], Beriozkin and Mualem (2018) [15] proposed a fully explicit equations to predict a desired scanning curve up to the third curve and expressed as follows :

The primary wetting curve from the first turning point  $(S_{tp,1}, P_{c,1})$  :

$$S_{1,w}(P_c) = S_{max,w} + \frac{S_{max,w} - S_{tp,1}}{S_{max,w} - S_d(P_{c,1})} (S_{max,w} - S_w(P_c)) \quad (4.26a)$$

The secondary drying curve from the second turning point  $(S_{tp,2}, P_{c,2})$  is :

$$S_{2,d}(P_c) = S_{tp,1} + \frac{S_{max,w} - S_{tp,1}}{S_{max,w} - S_w(P_{c,1})} \frac{S_w(P_{c,2}) - S_w(P_{c,1})}{S_d(P_{c,2}) - S_d(P_{c,1})} (S_d(P_c) - S_d(P_{c,1})) \quad (4.26b)$$

And the tertiary wetting curve departing from the third turning point  $(S_{tp,3}, P_{c,3})$  is :

$$S_{3,w}(P_c) = S_{max,w} - \frac{S_{max,w} - S_{tp,1}}{S_{max,w} - S_w(P_{c,1})} \times [(S_{max,w} - S_w(P_{c,1})) + \frac{S_d(P_{c,2}) - S_d(P_{c,3})}{S_w(P_{c,2}) - S_w(P_{c,3})} \frac{S_w(P_{c,2}) - S_w(P_{c,1})}{S_d(P_{c,2}) - S_d(P_{c,1})} (S_w(P_{c,2}) - S_w(P_c))] \quad (4.26c)$$

For scanning curves departing from the first drying curve  $(S_{l_s})=1$  a parallel shift is used by adding to each scanning equations (4.27a, 4.27b, 4.27c) a value of  $1-S_{max,w}$ . For a sequence of scanning curves departing from the main wetting curves the scanning curves are given as follows :

The primary drying curve from the first turning point  $(S_{tp,1}, P_{c,1})$  :

$$S_{1,w}(P_c) = \frac{S_{tp,1}}{S_d(P_{c,1})} S_d(P_c) \quad (4.27a)$$

The secondary wetting curve departing from the second turning point  $(S_{tp,2}, P_{c,2})$  is :

$$S_{2,d}(P_c) = S_{tp,1} - S_{tp,1} \frac{S_d(P_{c,1}) - S_d(P_{c,2})}{S_{tp,1} - S_w(P_{c,2})} \frac{S_{tp,1} - S_w(P_c)}{S_d(P_{c,1})} \quad (4.27b)$$

And the tertiary drying curve departing from the third turning point  $(S_{tp,3}, P_{c,3})$  is :

$$S_{3,w}(P_c) = \frac{S_{tp,1}}{S_d(P_{c,1})} \times [S_d(P_{c,2}) + \frac{S_d(P_{c,1}) - S_d(P_{c,2})}{S_{tp,1} - S_w(P_{c,2})} \frac{S_w(P_{c,3}) - S_w(P_{c,2})}{S_d(P_{c,3}) - S_d(P_{c,2})} (S_w(P_c) - S_w(P_{c,2}))] \quad (4.27c)$$

The explicit equations (4.27) are applied to normalized water saturation where  $S_{max,d} = 1.0$  and  $S_{l,r} = 0$ .

The hysteresis model of Beriozkin and Mualem (2018) [15] give an explicit formulation of the scanning curve without the need of iterative solution to compute the value in the scanning curves at each grid block and at each iteration, which may be very promising for reducing the computational cost of hysteresis as reported by Doughty (2013) [41]. However, this model was never verified and implemented.

### 4.2.3 Conclusion

In this section, we have described and reviewed hysteresis models with detailed equations and graphics. From the above review of models, we conclude that hysteresis models of Doughty (2007) [42] and Beriozkin and Mualem (2018) [15] are respectively modifications of the original models of Mualem (1984) [141] and Mualem (1974) [96], where the modifications take into account the non-wetting phase entrapment in the hysteresis loops. The non-wetting phase entrapment can be represented in a hysteretic model by different formula (Land (1968) [75], Linear law of Mualem (1974) [96], Aissaoui et al. (1983) [5]). We think that representation of the non wetting phase saturation only by the first turning point is based on invalid hypotheses, In fact this representation does not take into account a higher order of scanning curves and how they can induce release of a fraction of trapped non-wetting phase. For example, taking a primary wetting curve departing from the main drying curve produce a residual gas saturation of  $S_{gr,1}^{\Delta}$ , after the second drying curve a third wetting curve may produce a residual gas saturation of  $S_{gr,2}^{\Delta} \leq S_{gr,1}^{\Delta}$  which is not taken into account even a portion of entrapped non-wetting phase was release due to the second drying path, the model kept the first  $S_{gr,1}^{\Delta}$  entrapment value in order to avoid a pumping error.

The empirical model presented above did not take into account the rate of process, which is an important factor for fluid transport in porous media as described by Topp et al. (1967) [128]. Hannes et al. (2016) [54] proposed three classification of Temporal Dynamics of Soil Water Retention. The first class is the nonequilibrium process where fast changes may occur in water retention. The second class is quasi-equilibrium, where relatively slow changes in water retention are pursued by fluid redistribution. The third class is the temporal dynamics of soil structures, where the variation of pore structure may occur due to a chemical or mechanical process. Using laboratory data of soil water retention at different flow process, they showed that the empirical models of Parker and Lenhard, (1987) [99], Mualem, (1984) [141], and Poulouvassilis and Kargas, (2000) [107] failed to reproduces the hysteresis of a nonequilibrium process, especially when the rate of changes in water saturation is high.

The representation of hysteresis depends on the primary variables which the code uses to solve the conservative equation. If the saturation is used as a primary variable, the release of trapped non-wetting phase saturation is assumed by a high saturation at the specified time step. However, when the capillary pressure is used, the release of non wetting phase saturation can not be modeled using the empirical models presented above.

## 4.3 Comparative study of water retention hysteresis models

In the previous section we have analysed and reviewed different hysteresis models one by one; in this section we proceed with intercomparisons of these hysteresis models at least in terms of hysteretic water retention curves. Many studies focused on the comparison of hysteresis models (Pham et al., (2005) [102]), Zhang et al., (2014) [147], and Terleev et al. (2018) [127]). These studies showed that the conceptual models are simple and more accurate for predicting the scanning curves by using the main curves only. However, these studies did not cover all conceptual hysteresis models, and does not include most recent concepts like the non-wetting phase entrapment phenomena presented in the recent studies of Doughty et al. (2007) [42] and Beriozkin and Mualem (2018) [15]). In this section, we test the performance of the five hysteresis models discussed in section 2 in reproducing the hysteresis data of different porous materials (Sand, Cement, Bentonite) collected from the literature.

### 4.3.1 Data preparation and comparison criteria

The characteristics of five hysteresis data collected from the literature are presented in Table (4.1). The experimental data of water content  $\theta$ - $P_c$  are normalized to  $S_l$ - $P_c$  via the equation ((4.28)).

$$S_l = \frac{\theta - \theta_r}{\theta_s - \theta_r} \quad (4.28)$$

The experimental data of water retention curve measured with a relative humidity (RH) S- RH are transformed to S- $P_c$  using Kelvin relation (equation (4.29)).

$$P_c = \frac{\rho_l RT}{M_l} \ln(RH) \quad (4.29)$$

where  $R = 8.314 \text{ J} \times \text{K}^{-1} \text{ J} \times \text{mol}^{-1}$  is the gas constant, T(K) is the absolute temperature and  $M_l$  is the molar mass of liquid water molecule ( $\text{kg} \times \text{mol}^{-1}$ ).

First, the Van Genuchten model [131] is fitted to experimental main wetting and main drying curves. We make the choice of  $S_{l,s,d} = S_{l,s,w}$  in the fitting procedure of the main curves with the VG model (equation (2.14) for the hysteresis models (Mualem 1974, Mualem 1984, and Haverkamp 2002). Second, the hysteresis models are used to predict the scanning curves based on iterative solution for scanning curves equations of

Material	References	Type of soil	Scanning curves
1	Terleev et al 2019 [127]	Dune sand	First wetting
2	Baroghel-Bouny et al 2007 [13]	Paste(CEM I)	First wetting, Secondary drying
3	Huang et al., 2005 [62]	Compacted Sand	First wetting, Secondary drying, Third wetting
4	Qiao et al., 2021 [114]	Bentonite MX80	First wetting
5	Lins et al., 2007 [84]	Hostun sand	First wetting, Secondary drying, Third wetting

**Table 4.1 :** Hydraulic properties of different porous materials studied

each model. The goodness of fit of measured scanning points is evaluated using the Mean Absolute Error (MAE) defined by equation (4.30) :

$$MAE = \frac{1}{n} \sum_{i=0}^n |S_i - \tilde{S}_i| \quad (4.30)$$

where  $S_i, \tilde{S}_i$  are the measured and predicted values of water saturation, n is the number of measured data points. We define MAE(N,p-k) as the mean absolute error of the kth measurement curve of the Nth scanning curve at the path  $p \in \{w, d\}$ .

### 4.3.2 Results and discussions

No	Mualem 1974	Mualem 1984	Haverkamp 2002	Doughty 2007	Beriozkin and Mualem 2018
1	0.057376	0.057376	<b>0.041484</b>	0.056555	0.060396
2	0.025105	0.032210	0.248106	0.057228	<b>0.023964</b>
3	0.028895	0.057330	0.239818	0.088316	<b>0.027986</b>
4	0.040658	0.040658	0.043215	0.04062	<b>0.04062</b>
5	0.024720	<b>0.019982</b>	0.153037	0.058866	0.021562
Mean	0.035351	0.041511	0.145132	0.060317	<b>0.034906</b>

**Table 4.2 :** MAE results for the scanning curves fit of each material experimental data by the different hysteresis models. The column No refer to the number of soil as presented in the table (4.1).

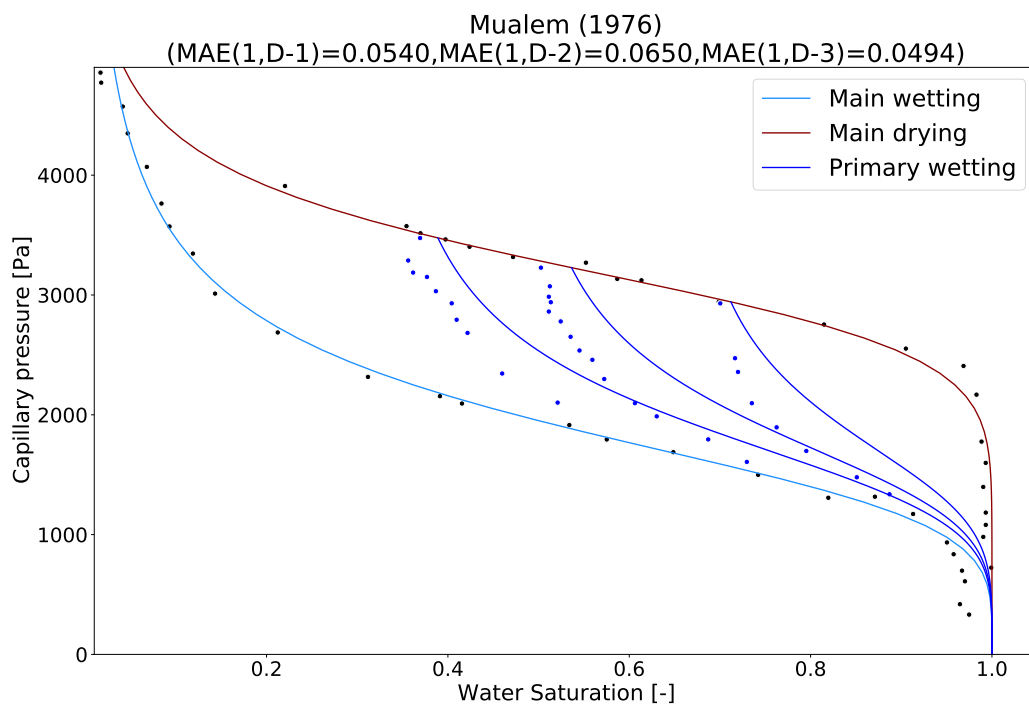
Figures (4.7, 4.8, 4.9, 4.10, 4.11) present the scanning curves predicted by the five hysteresis models, showing details on the MAE for each scanning curve above each



plot. The global Mean Absolute Error for each material and for each hysteresis model is presented in Table (4.2). our results are coming from fitting the main wetting and drying curves to the experimental points  $P_c(S)$ , and from predicting the scanning curves from the theoretical hysteresis model(s) programmed by us as a Python script.

From the comparison of the values of MAE, we can conclude that all hysteresis models represent well the tendencies of scanning loops, except for the Haverkamp et al. (2002) model, which fails to predict the main wetting branches for all materials except material  $N^\circ 4$ . The Mualem (1974) and Mualem 1984 models share the same first drying curve, but the Mualem model (1974) exhibits better results than Mualem 1984 for higher order scanning curves (e.g., Materials  $N^\circ 2, 3$ ).

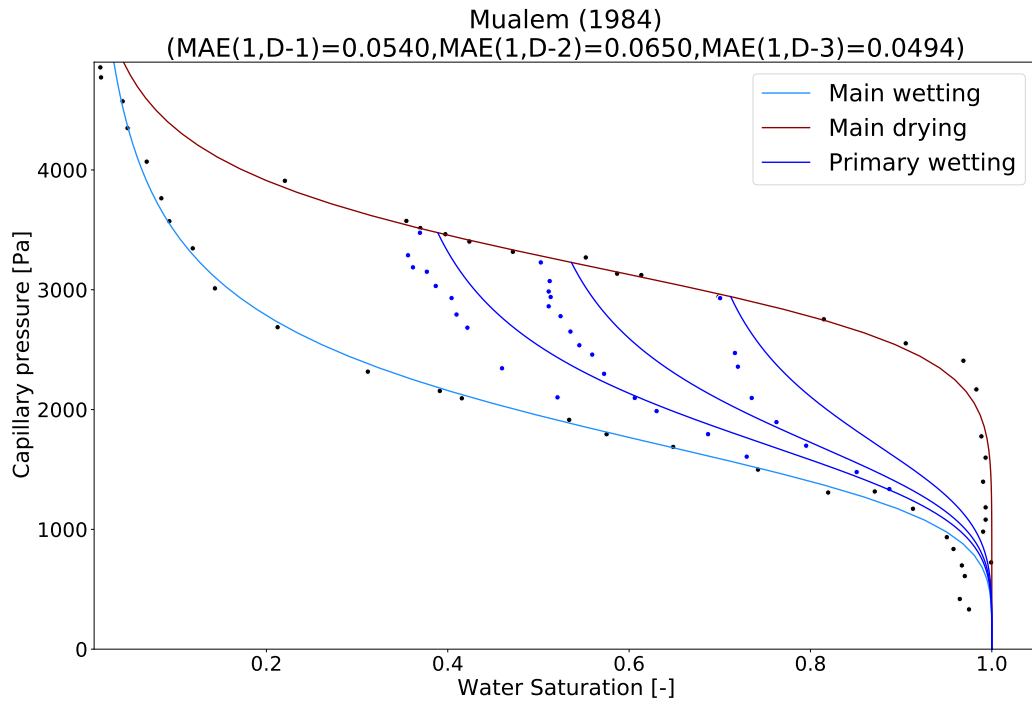
The Doughty (2007) model is an application of the Mualem (1984) model with a new wetting curve determined after a reversal point from main drying to first wetting. The Doughty (2007) model present a high error compared to the Mualem (1984) model, and therefore the introduction of non-wetting phase entrapment saturation enhances the Mualem (1974) model, but not the Mualem (1984) model.



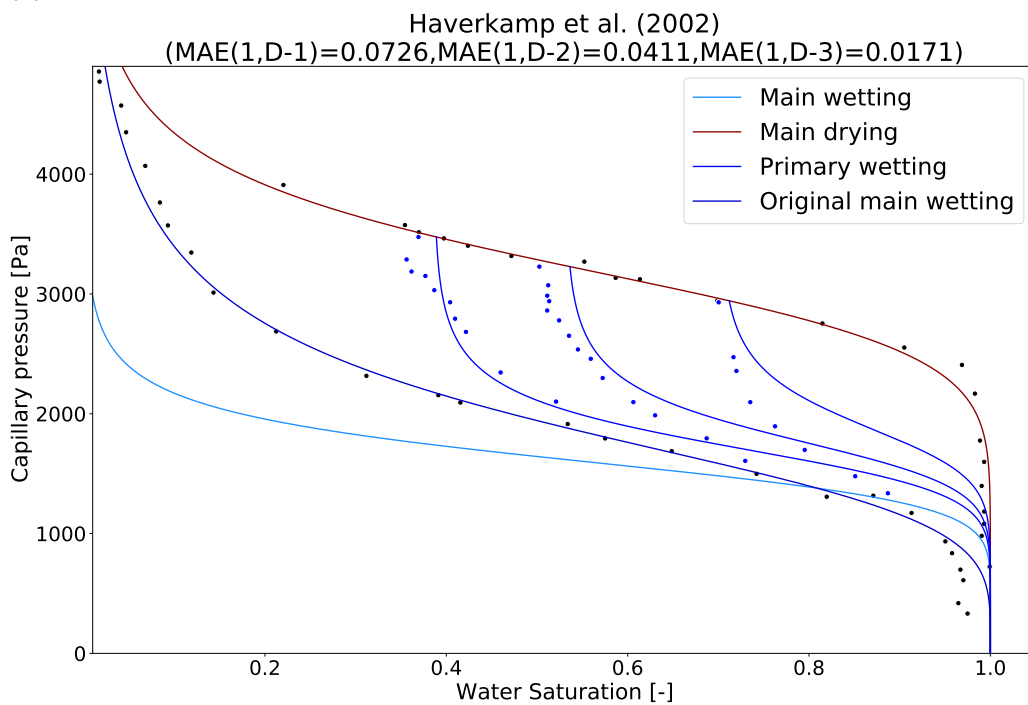
(a)

Finally, the Beriozkin and Mualem (2018) [15] model presents an even better prediction of experimental data, as can be seen from the MAE values in Table (4.2). In addition, the Beriozkin and Mualem (2018) [15] model gives an explicit formulation of the saturation of a given scanning curve, without the need of additional computation of an iterative solution of the equation representing the scanning curves, which is an advantage

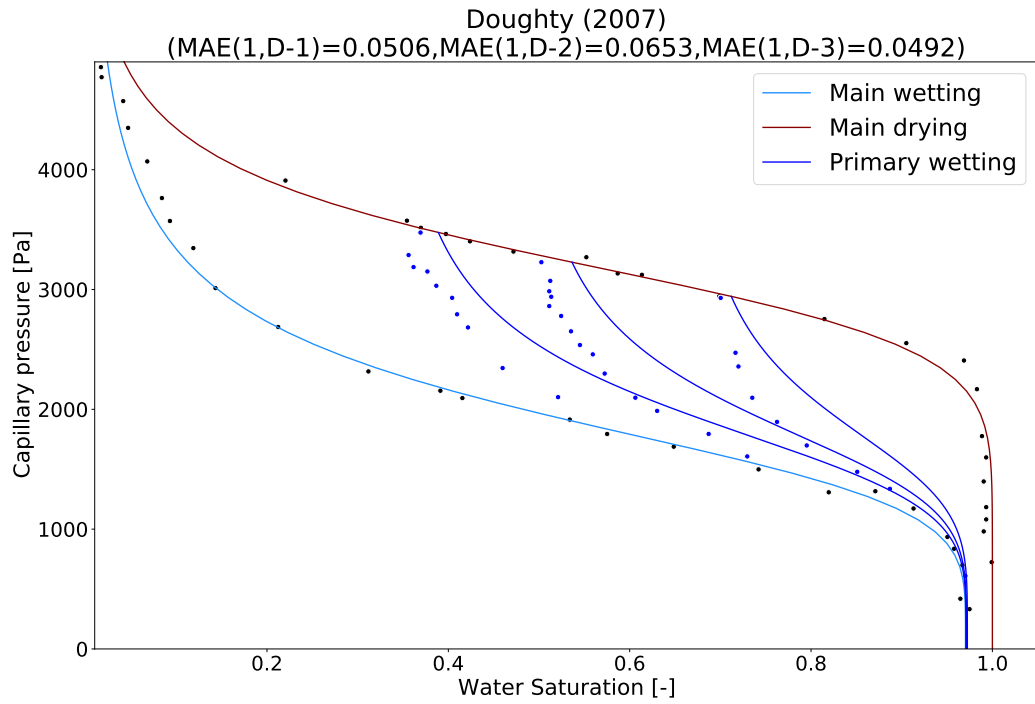
over the others models (Mualem (1974) [96], Mualem (1984) [141], Haverkamp et al. (2002) [57], and Doughty (2007) [42]).



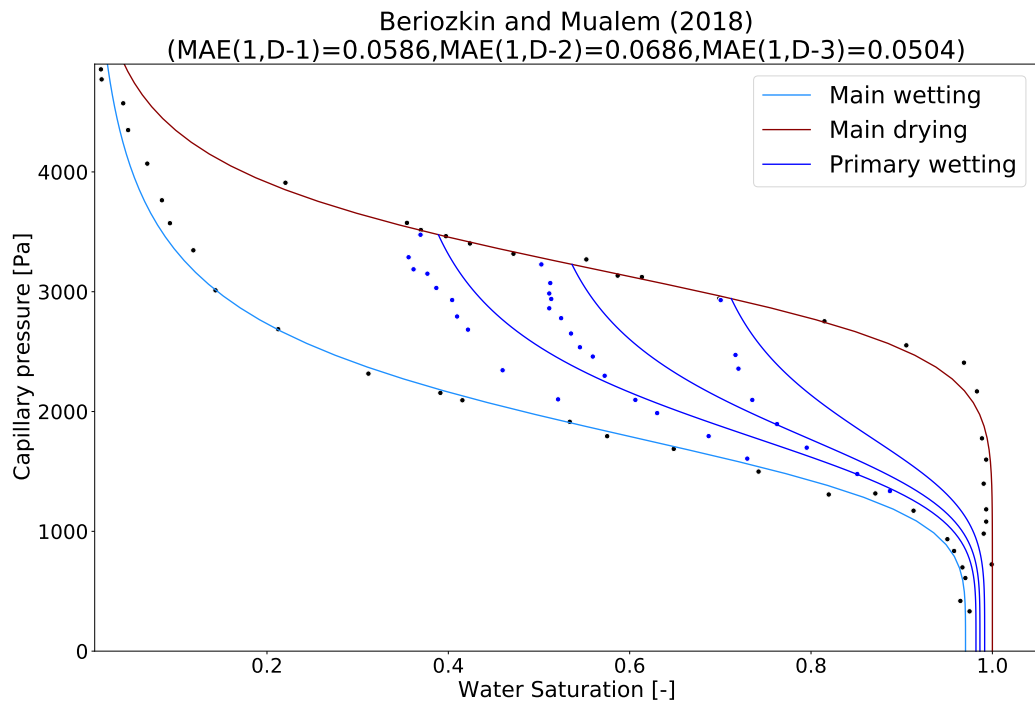
(b)



(c)

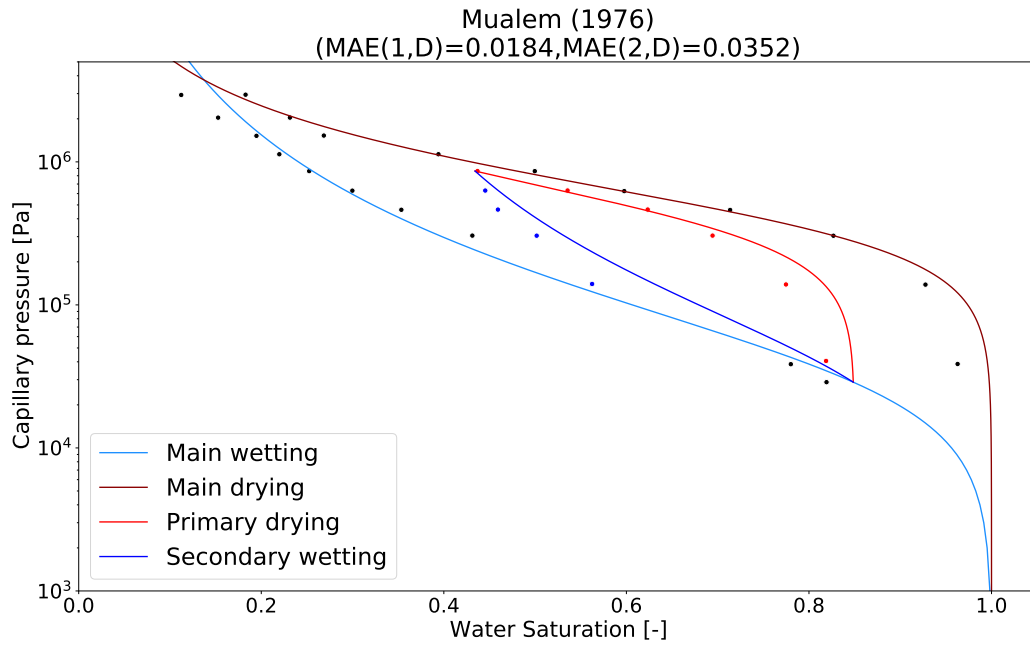


(d)

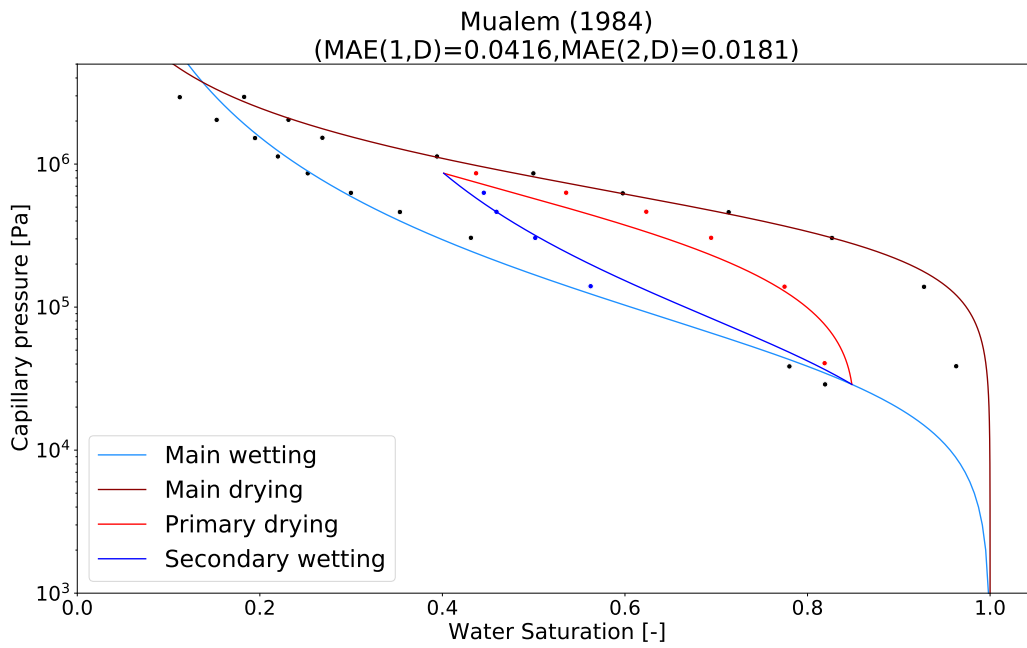


(e)

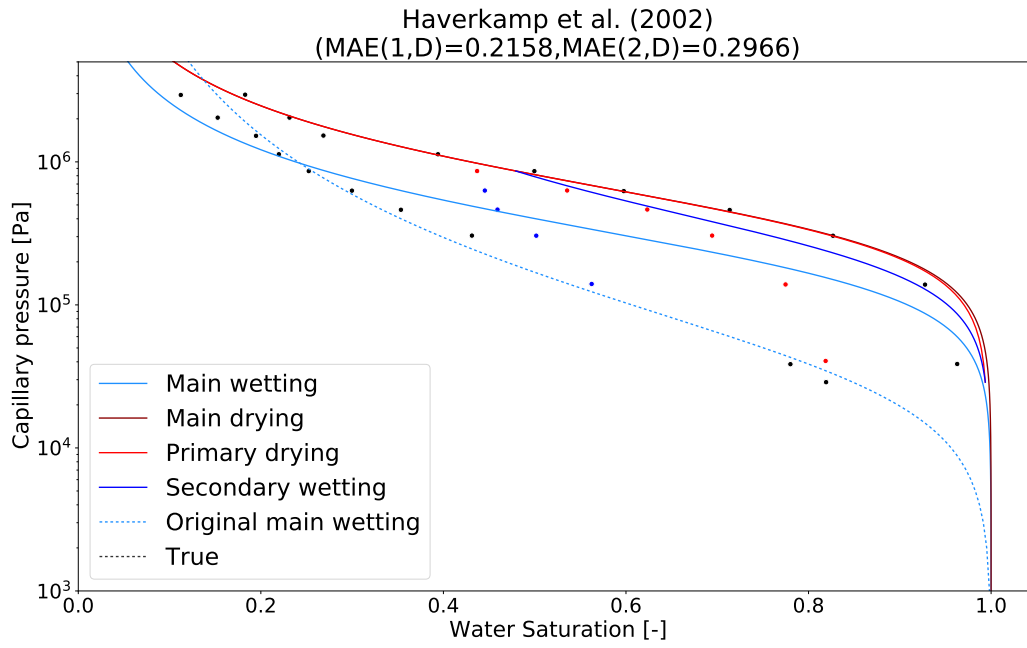
**Figure 4.7 :** Fitted main wetting and main drying curve of the Dune Sand from Terleev et al. 2019 [127] and three predicted primary wetting scanning curves departing from the main drying branch by the five hysteresis models.



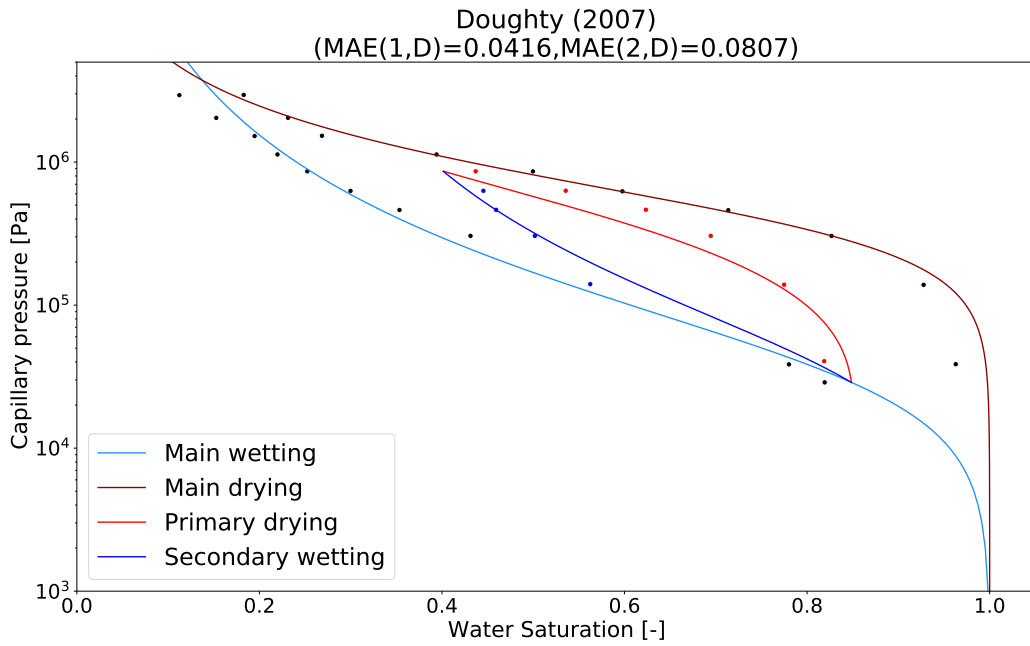
(a)



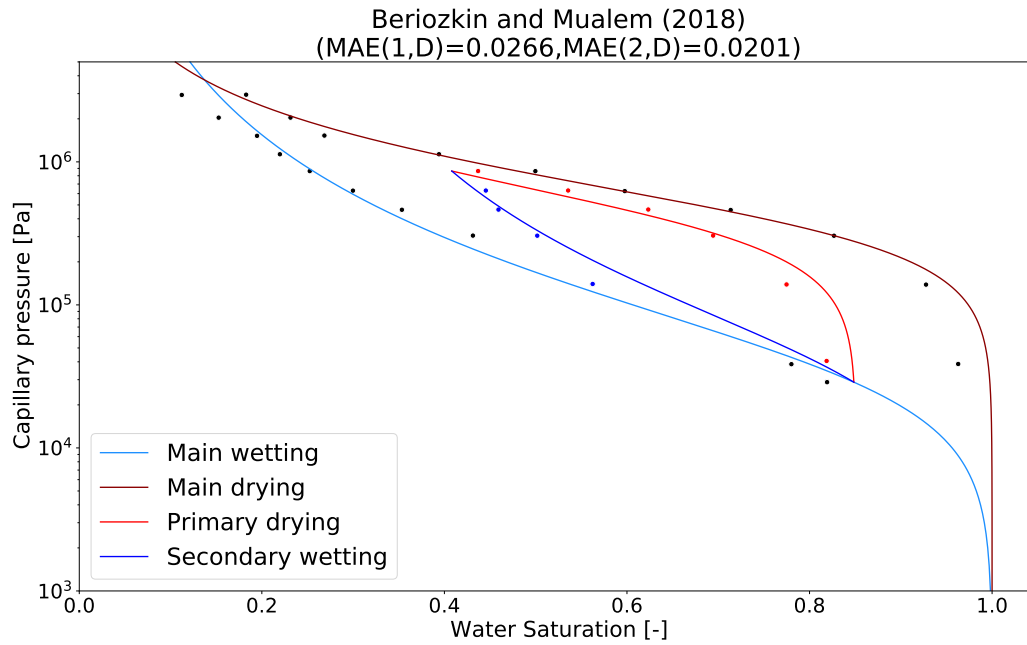
(b)



(c)

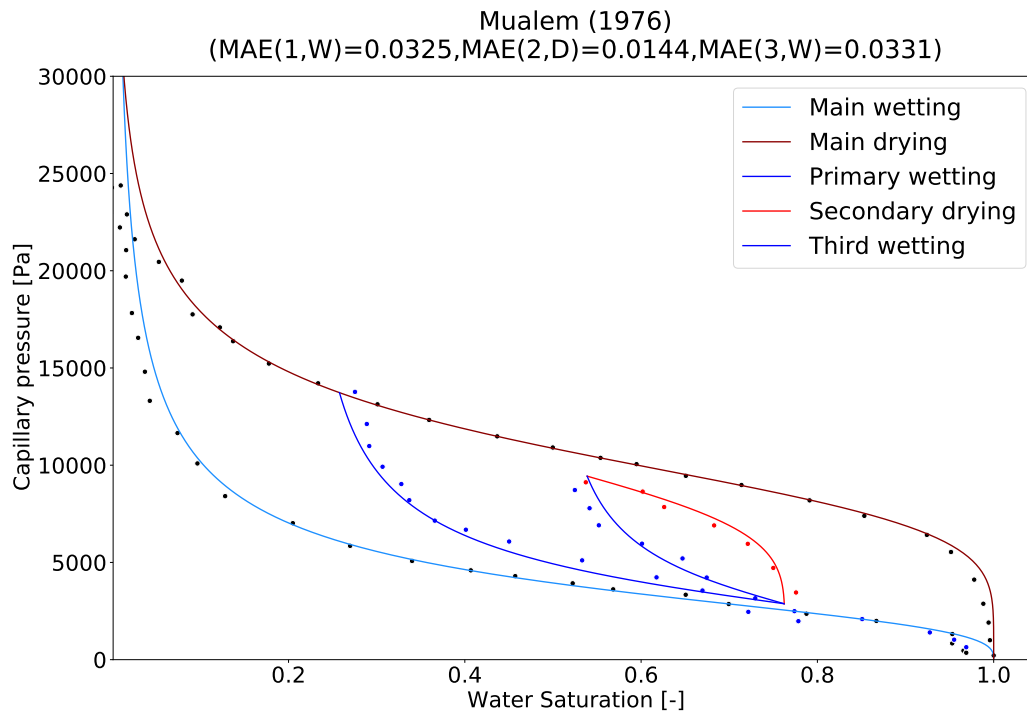


(d)

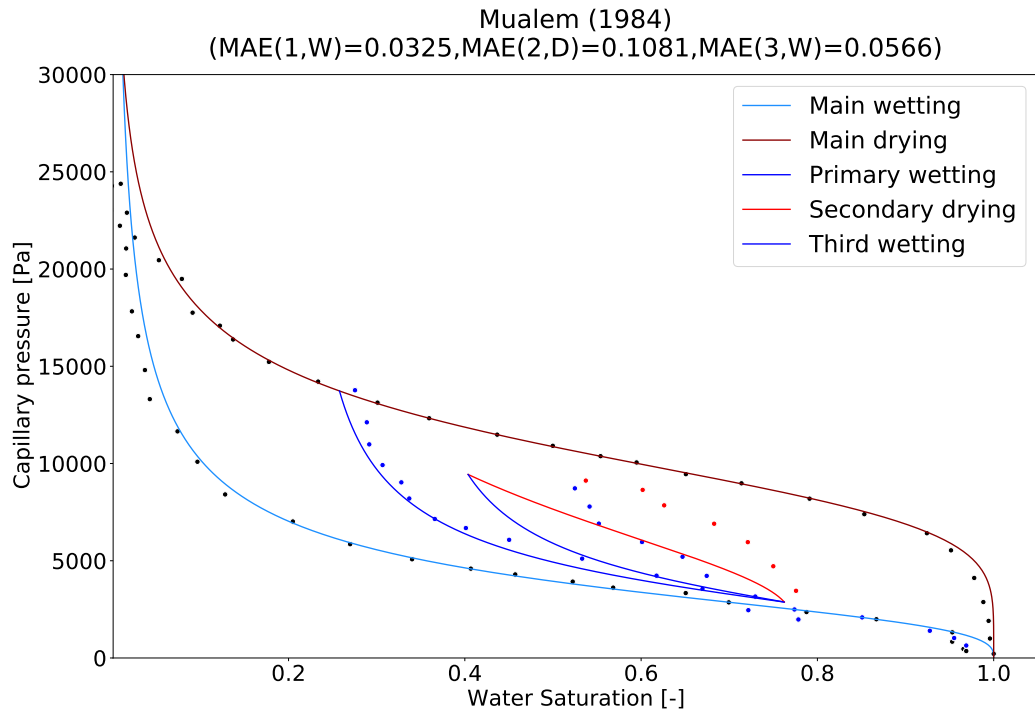


(e)

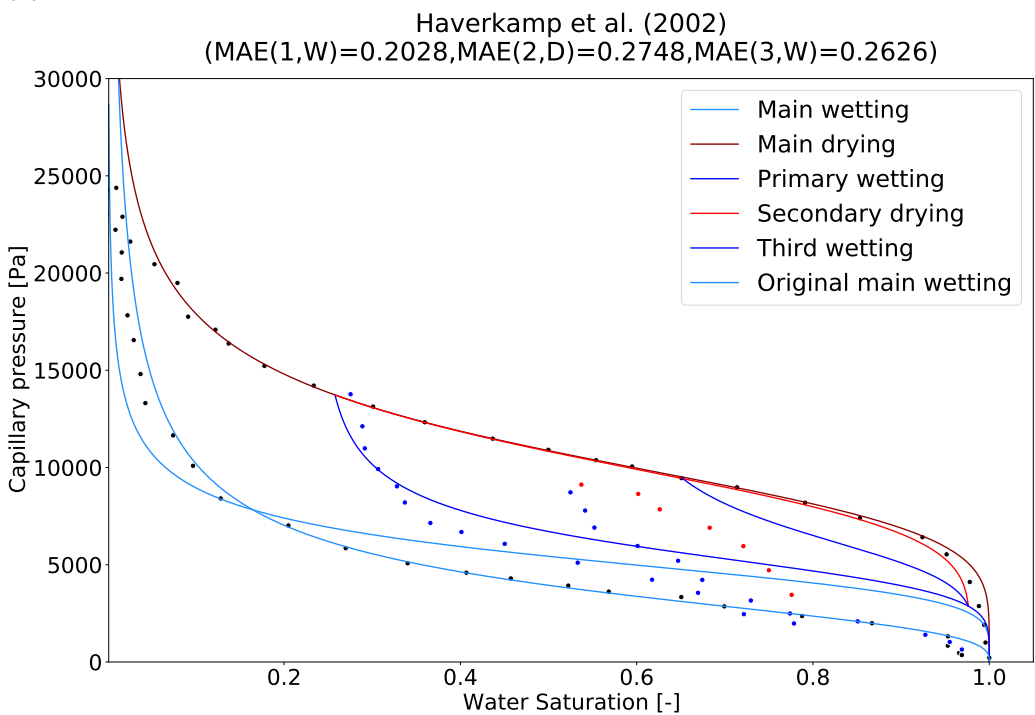
**Figure 4.8** : Fitted main wetting and main drying curve of the Paste (CEM I) from Baroghel-Bouny et al 2007 [13] and predicted first wetting scanning curve and second drying curve by the five hysteresis models.



(a)

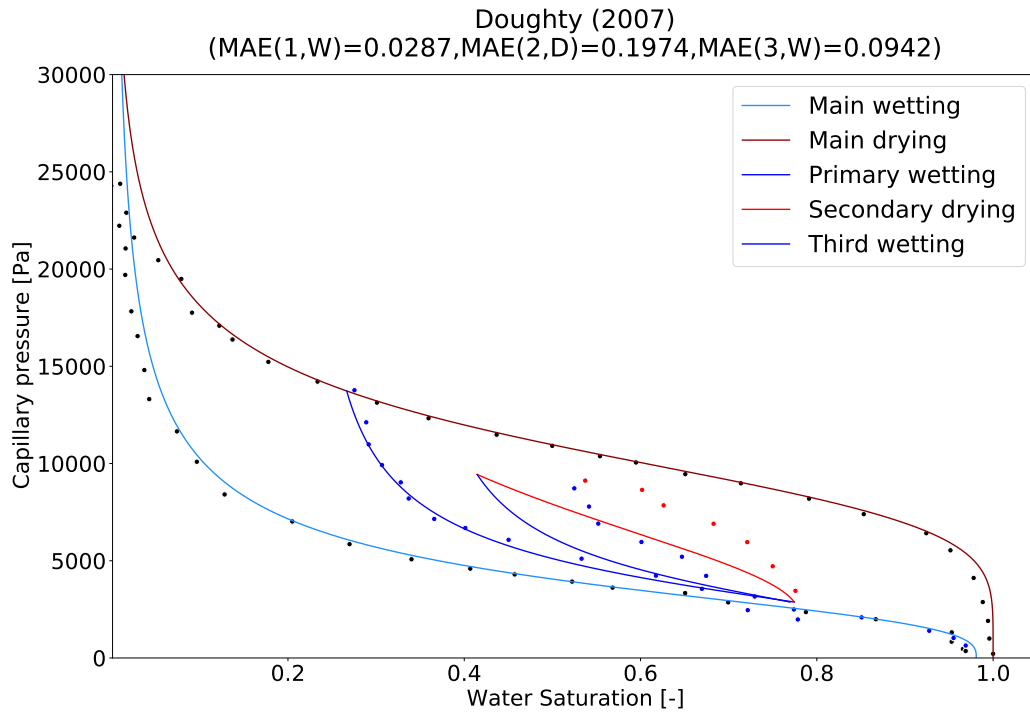


(b)

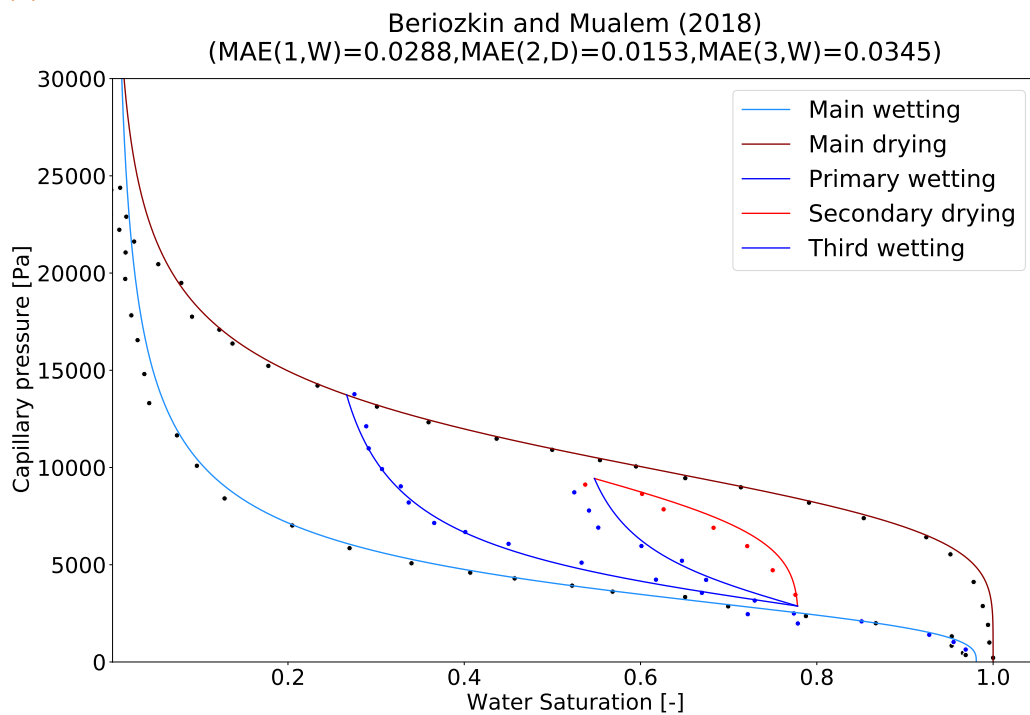


(c)



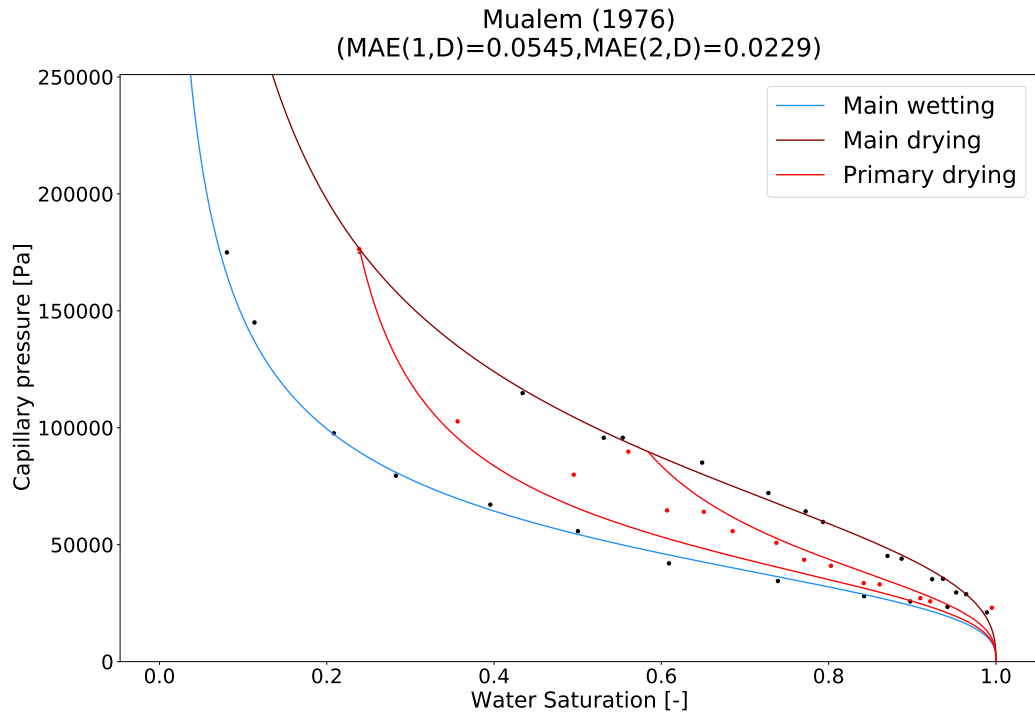


(d)

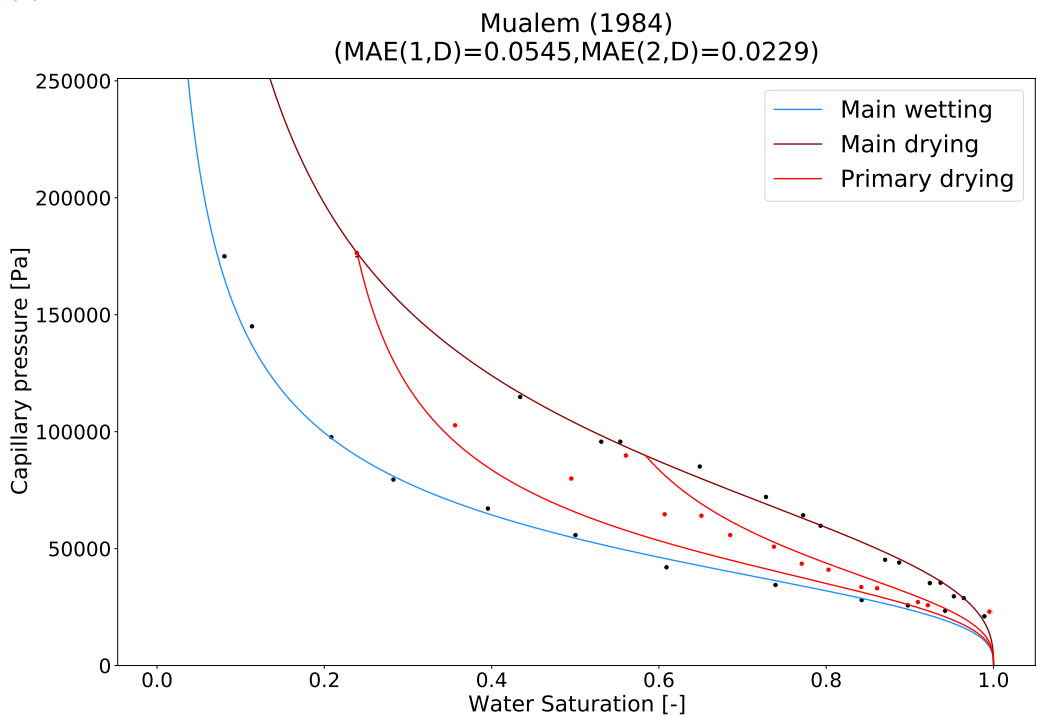


(e)

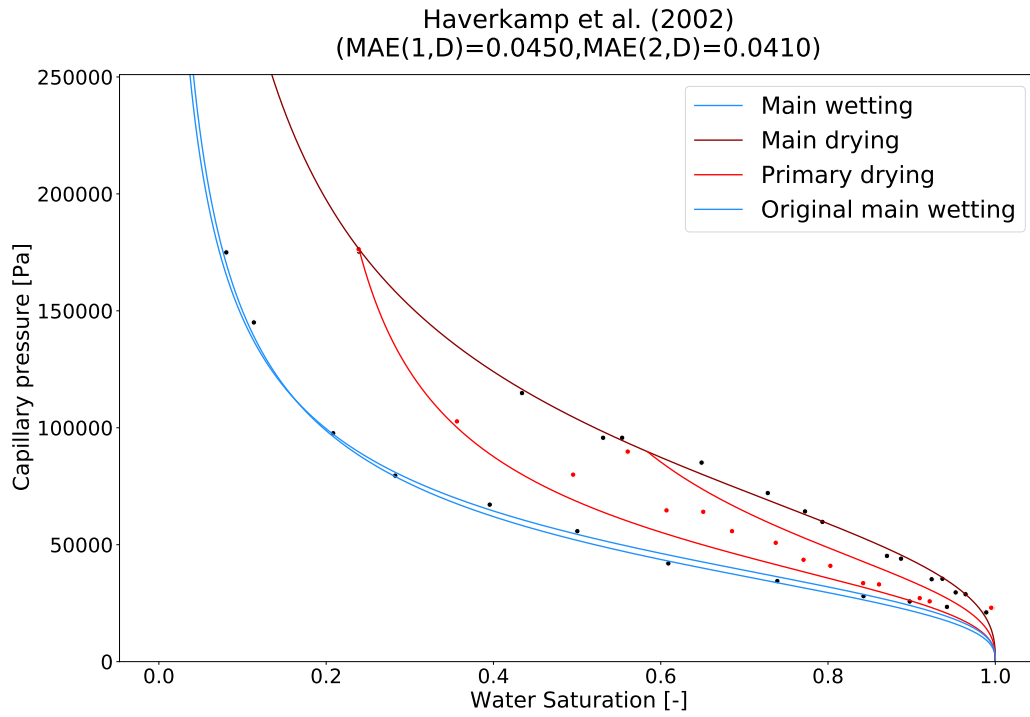
**Figure 4.9** : Fitted main wetting and main drying curve of the Compacted Sand from Huang et al., 2005 [62] and predicted scanning curve by the five hysteresis models.



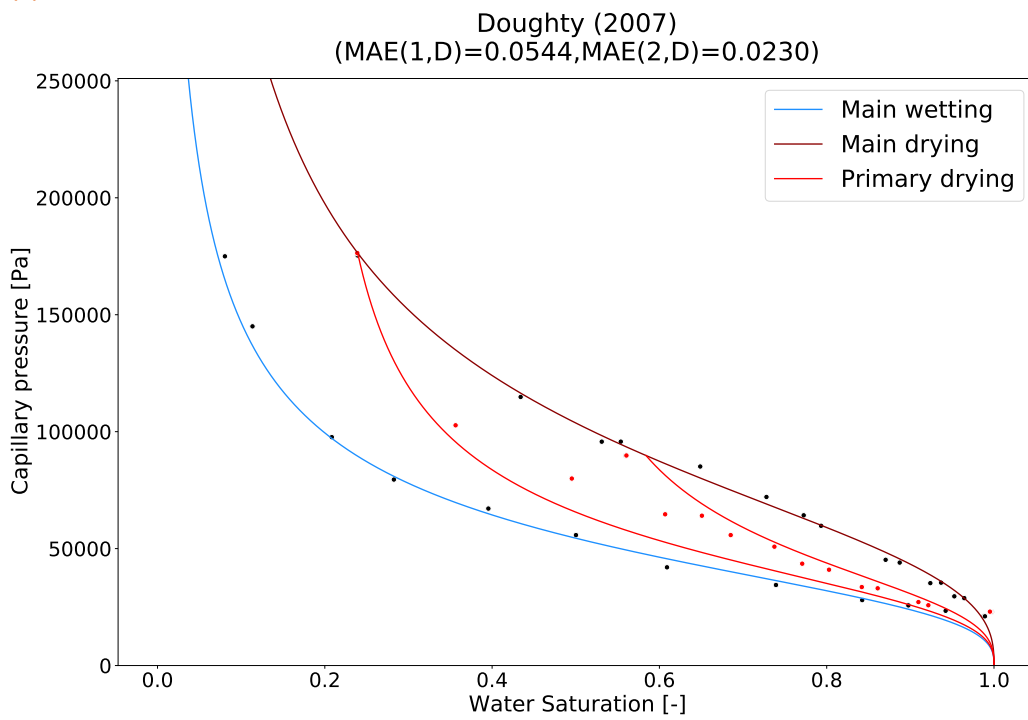
(a)



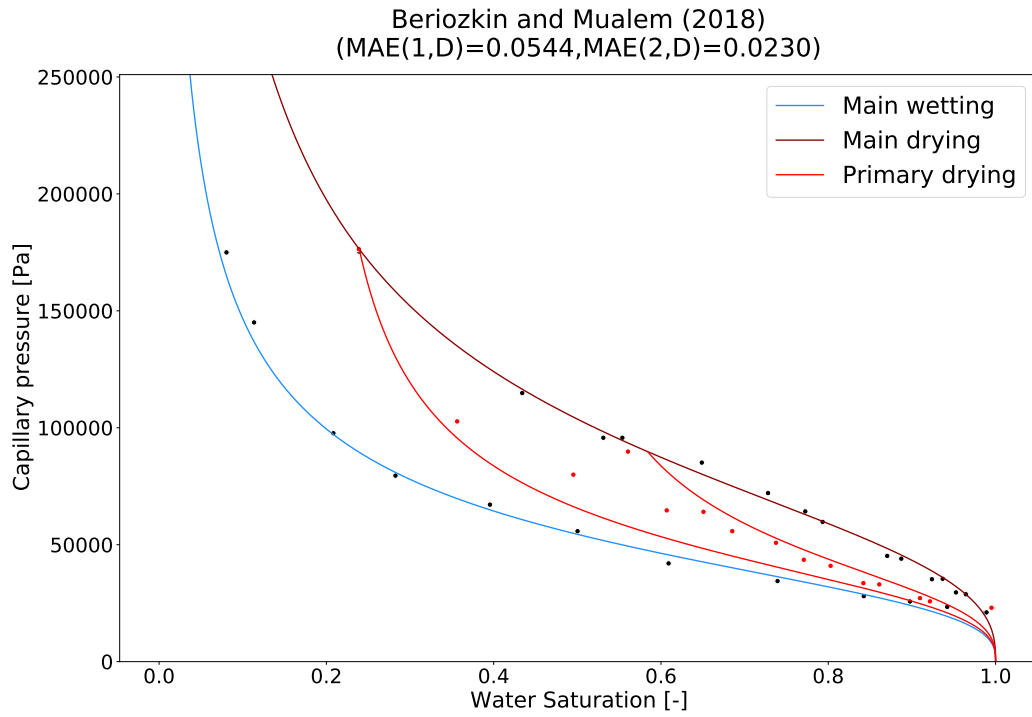
(b)



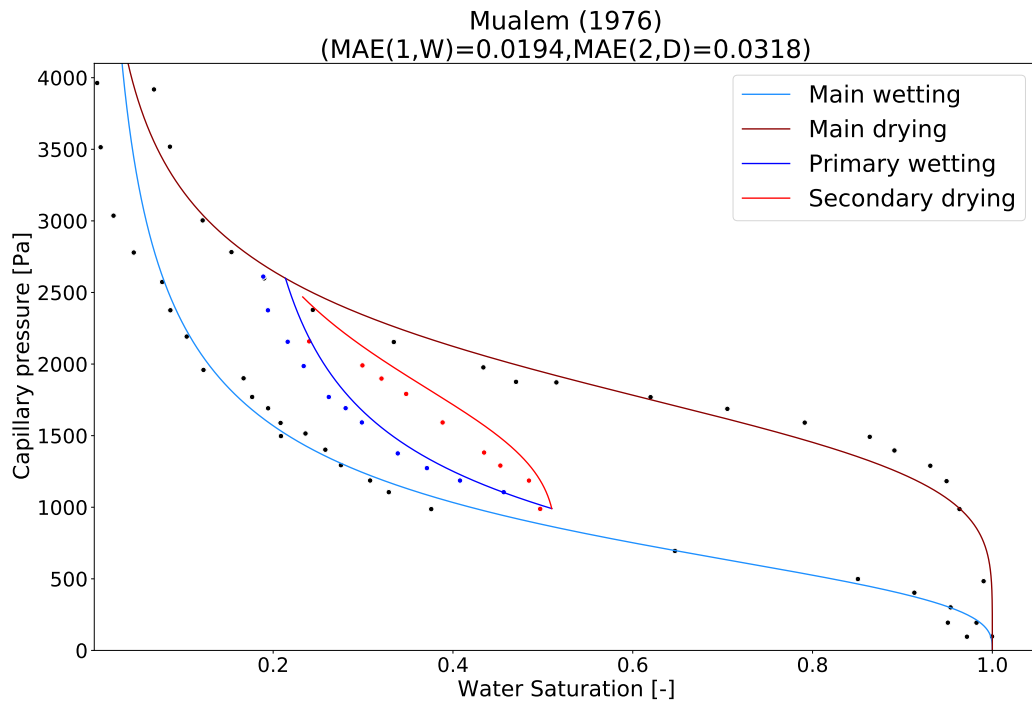
(c)

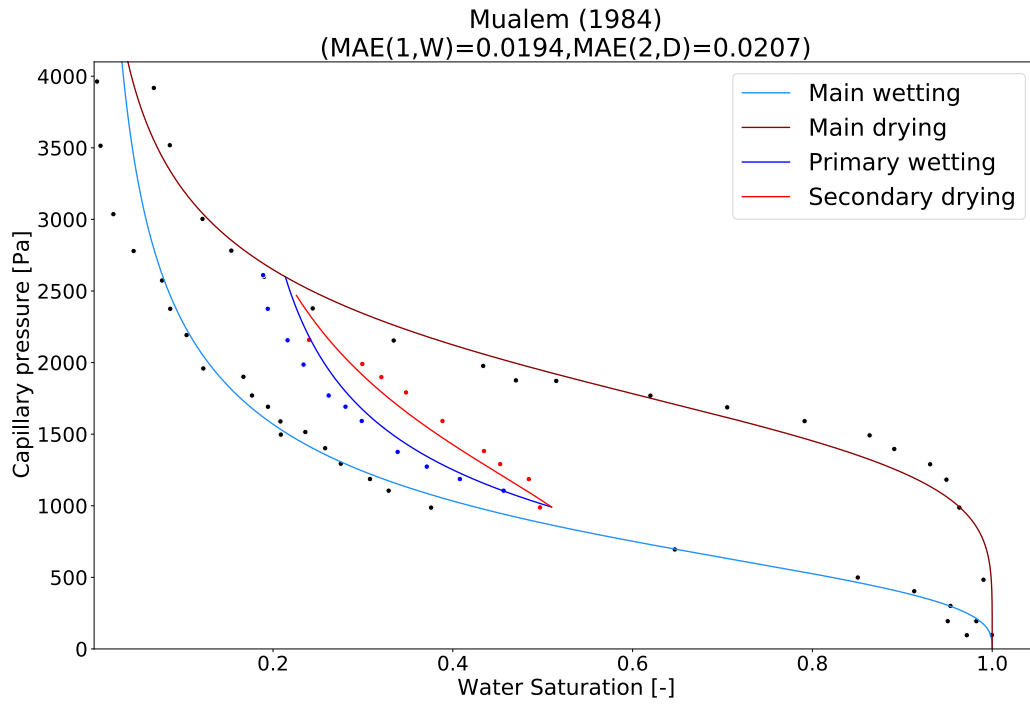


(d)

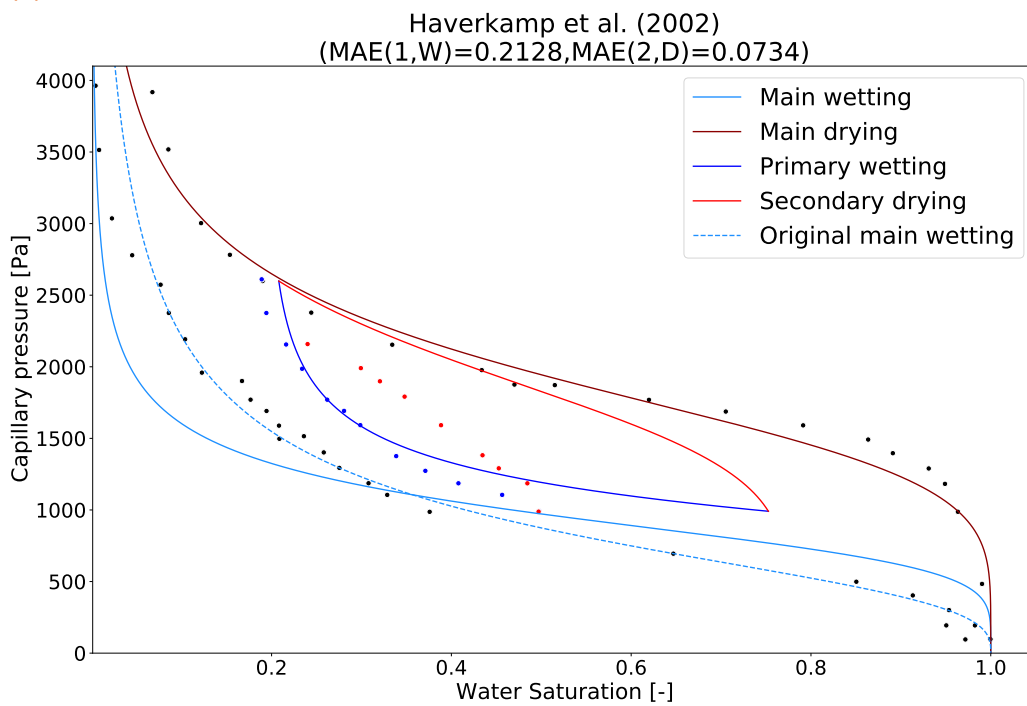


**Figure 4.10 :** Fitted main wetting and main drying curve of the Bentonite MX80 Qiao et al., 2021 [114] and predicted first wetting scanning curve by the five hysteresis models.

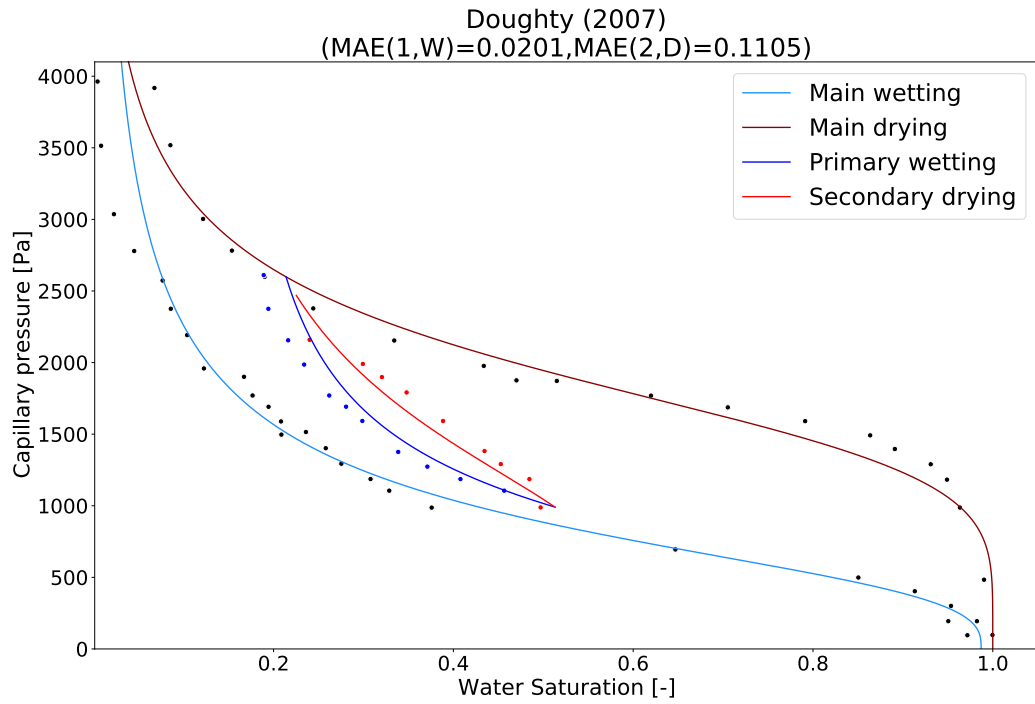




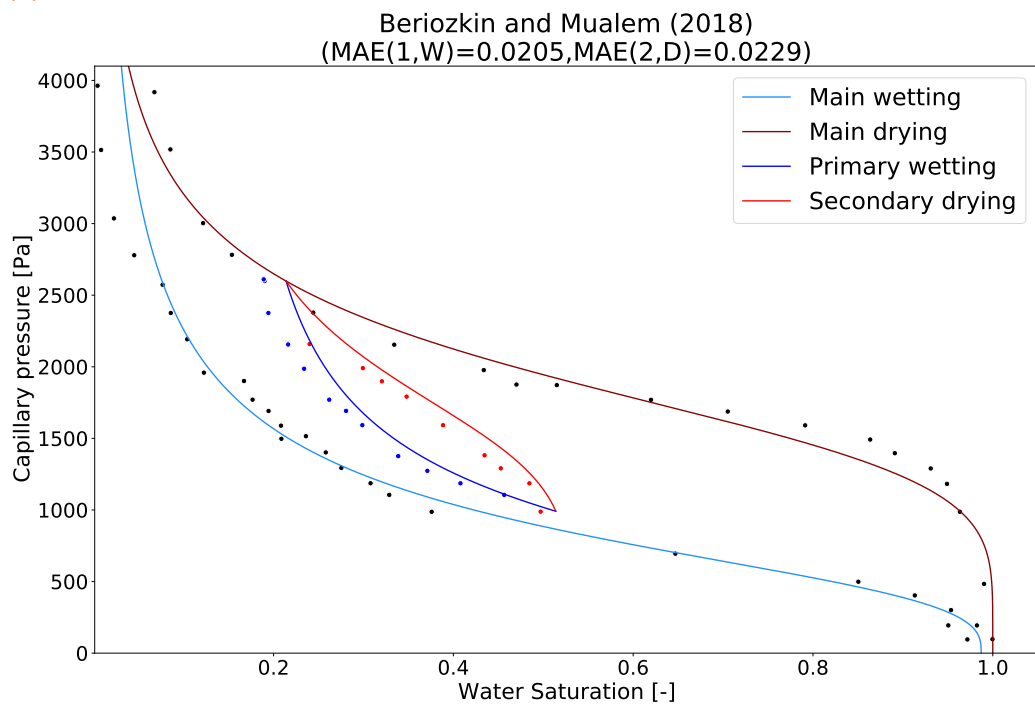
(b)



(c)



(d)



(e)

**Figure 4.11** : Fitted main wetting and main drying curve of the Hoston sand Lins et al. (2007) [84] and predicted first wetting and the second drying scanning curves by the five hysteresis models.

## 4.4 Application : Analysis and modeling of a 2-phase laboratory-scale experiment emulating CO2 trapping with and without hysteresis

To study the effect of hysteresis on the behavior of two phase flow systems, we have tested a constitutive model with and without hysteresis on the intermediate-scale laboratory experiments conducted by Trevisan et al. (2014) [129]. The experiments involve the injection of surrogate fluids in order to mimic the behavior of the supercritical scCO<sub>2</sub>-brine system at the reservoir scale. Despite some differences in the input parameters between our modeling and theirs, we will compare our simulation results with the experimental data, and we will then discuss the effect of hysteresis on plume migration.

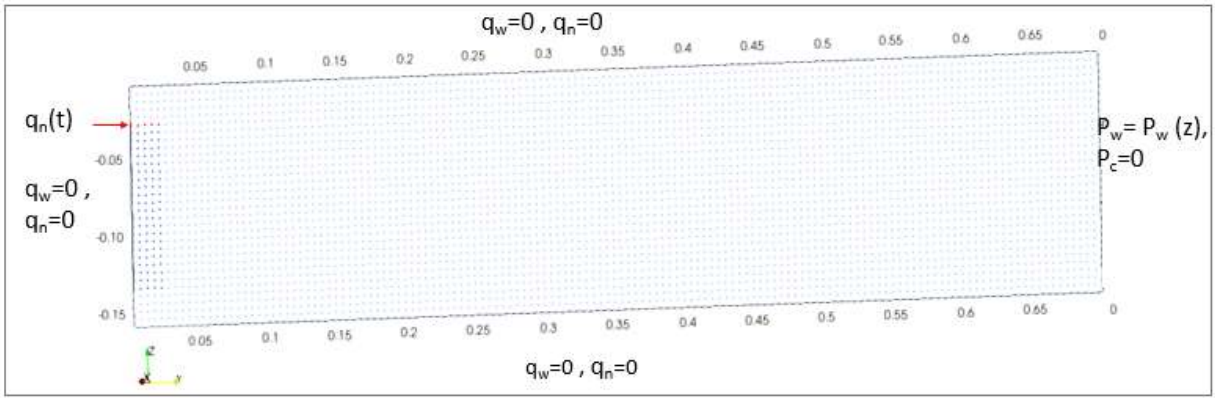
### 4.4.1 Experimental setup

The experiment involves injecting a non-wetting fluid (Soltrol 220) into a rectangular two-dimensional slab of Sand 4050 (the "aquifer"), with internal dimensions (L×W×H) equal to (91.4× 5.6× 61 cm<sup>3</sup>) with an inclination angle of 2° (Figure 4.12). The sand aquifer is initially saturated with water (the wetting fluid). The right boundary of the aquifer is at equilibrium with a hydrostatic pressure. The well injection is placed on the left boundary of the aquifer. It consists of a vertical PVC pipe with an internal diameter of 2.3 cm and a vertical length of 11 cm. The density and the viscosity of the two fluids used in the experiment are presented in table (4.3), modifications were necessary to include fluid properties in the EOS10 of the iTOUGH2 code. For more details on the experiment setup, see Trevisan et al. (2014) [129] and Cihan et al. (2017) [30].

Fluid	$\rho$ [kg.m <sup>-3</sup> ]	$\mu$ [mPa.S]
Soltrol 220	860	4.9
Glycerol-water	1210	61

**Table 4.3** : Properties of surrogate fluids used in the experiment by Trevisan et al. (2014) [129].

In our simulation, we used a uniform grid with mesh size of 0.5cm × 0.5 cm to represent the 2D domain as shown in Figure (4.12). The simulation consists of two phases : a first phase of Soltrol 220 injection at a rate of 0.7ml/min during 5.5 h, followed by a second phase of spontaneous redistribution of the fluid for 15 more days.



**Figure 4.12** : Schematic representation of the simulated 2D domain and boundary conditions, corresponding to the laboratory experiment of Trevisan et al. (2014) [129]

#### 4.4.2 Hydraulic properties and model description

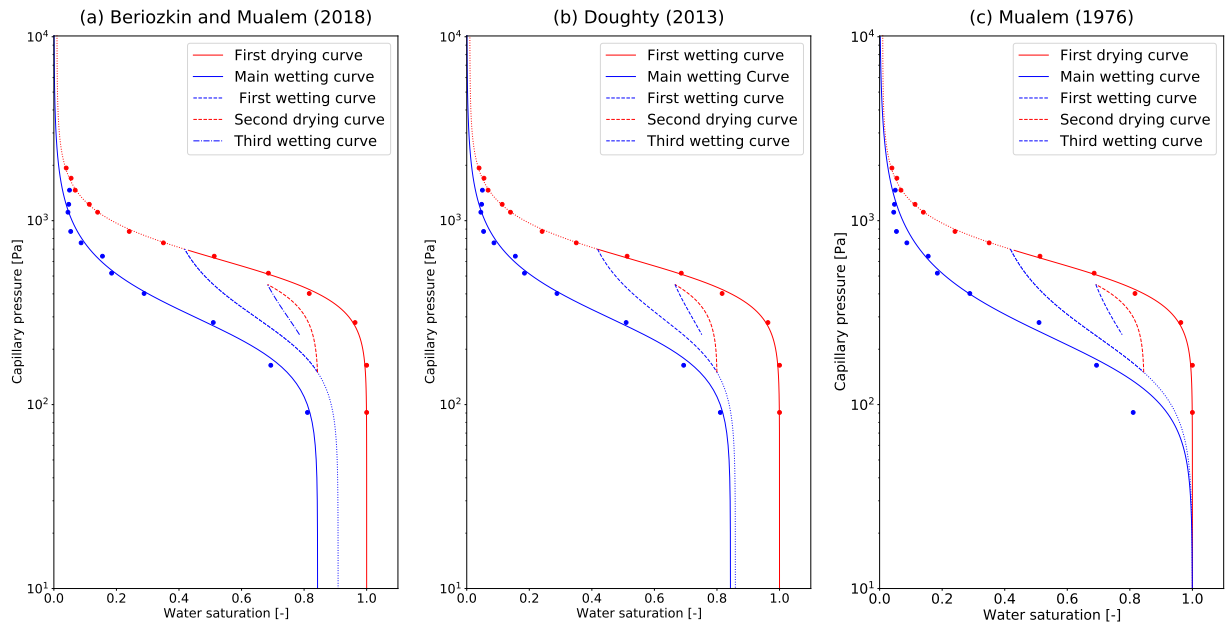
In the present work, the measured data of sand 4050 of water retention curves are fitted using the Van-Genuchten model as shown in Figure (4.13). We tested two scenarios in the fitting procedure. The first one consists in taking into account the non-wetting phase entrapment phenomenon by considering  $S_{w,max}$  as a free parameter in the fitting procedure. The second one consists in neglecting the non-wetting phase entrapment saturation by constraining the  $S_{w,max}$  to 1.0. The fitted parameters with the two scenarios are given in Table (4.4).

The hysteresis model of Beriozkin-Mualem (2018) and the model of Doughty (2007) are used here to describe the mechanism of non-wetting phase entrapment saturation (Figure (4.13)). The Mualem (1974) model is used to describe the hysteresis phenomenon without non wetting phase entrapment. The intrinsic permeability is  $k = 6.43 \times 10^{-11} [m^2]$  and the porosity is  $\phi = 0.35$ .

Scenario	$n_w$	$\alpha_w [Pa^{-1}]$	$S_{w,max}$	$S_{w,r}$	$n_d$	$\alpha_d [Pa^{-1}]$	$S_{d,max}$	$S_{d,r}$
1	2.95	$3.89 \times 10^{-3}$	0.8431	0.0073	3.91	$1.76 \times 10^{-3}$	1.00	0.0097
2	2.56	$5.26 \times 10^{-3}$	1.0	0	3.91	$1.76 \times 10^{-3}$	1.00	0.0097

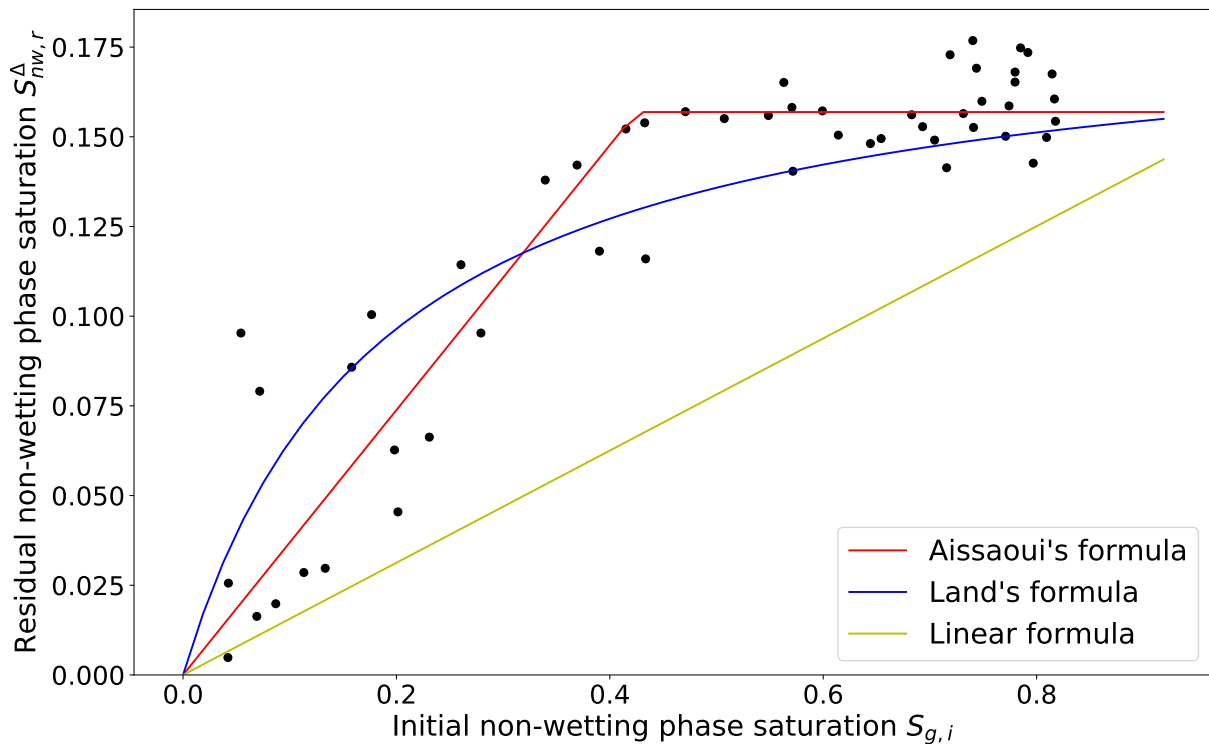
**Table 4.4** : Adjusted hydraulic parameters for the sand 40/50. the scenario 1 is for  $S_{w,max}$  as a free parameter. Scenario 2 is for fixed  $S_{w,max} = 1.0$ .





**Figure 4.13** : Illustration of the hysteresis effect on retention curve properties of sand 40/50. Scanning loops are calculated with different models. (a) Beriozkin & Mualem (2018) [15]. (b) Doughty (2007) [42]. (c) Mualem (1974) [96]

Note that there are no data points for the scanning curves, and they are entirely predicted by the afore-mentioned models. The main difference between the models of Doughty (2005) [42] and Beriozkin and Mualem (2018) [15] is the amount of non-wetting phase entrapment saturation at the end of the first wetting scanning curve. This difference is mainly related to the representation of the non-wetting phase entrapment saturation. For example, the Beriozkin-Mualem model uses a linear model to represent the relation  $S_{gr} - S_{tp}$ . Using the linear law the amount of non-wetting phase entrapment saturation at the turning point saturation  $S_{tp} = 0.41$  is 0.105. However, Doughty's model uses the Land formula (1968) [75] which generates a non-wetting phase entrapment saturation of 0.147 for the same turning point  $S_{tp} = 0.41$ . This difference between the two formula concerning the  $S_{gr} - S_{tp}$  relationships is presented in Figure (4.14) in comparison with experimental data of Sand 4050 from Trevisan et al. (2014) [129]. The fit of experimental data of  $S_{gr} - S_{tp}$  reveals that the Aissaoui et al. (1983) [5] formulation is in good agreement with measured data. This observation is also in agreement with Suzanne et al. (2003) [125] and Pentland et al. (2010) [101].



**Figure 4.14 :** Comparison of Aissaoui, linear, and Land representation of non-wetting phase entrapment for the experimental data of the Sand 40/50. The points (black dots) represent experimental entrapment data from Trevisan et al. (2017) [129].

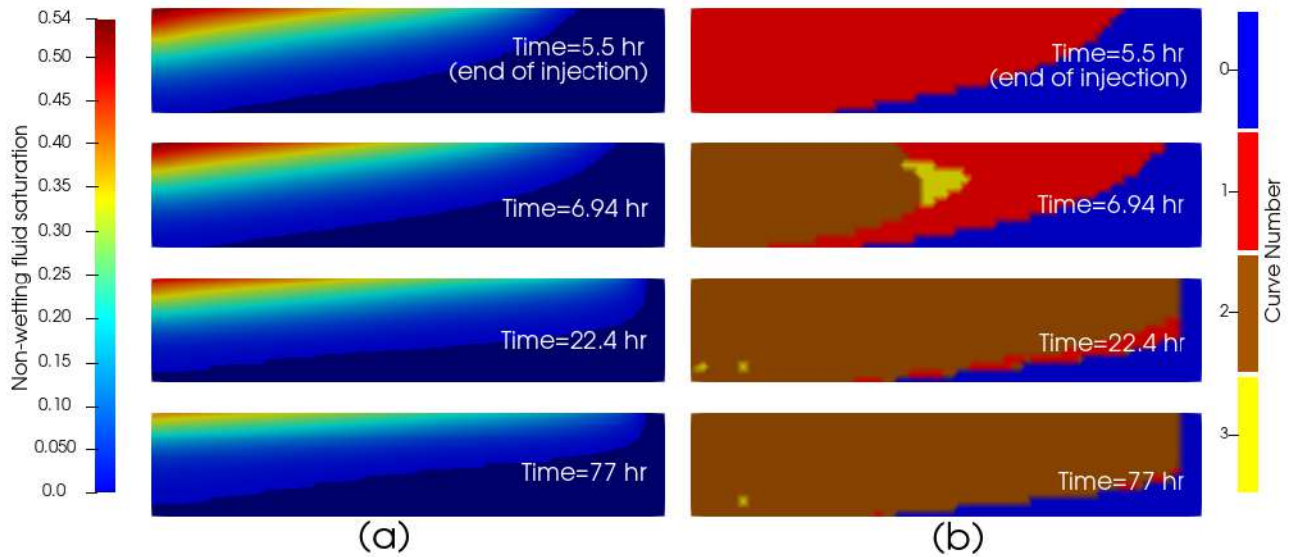
### 4.4.3 Simulation results and discussions

In this section, we present a comparison between the simulation results obtained respectively with (i) a non-hysteretic model, (ii) the hysteretic Beriozkin and Mualem (2018) model, (iii) the hysteretic Doughty (2007) model, and (iv) the hysteretic Mualem (1974) model. First, the effect of hysteresis is discussed by using the Beriozkin and Mualem (2018) model. Secondly, the effect of non-wetting phase entrapment is discussed by comparing the Doughty (2007) and Mualem (1974) models. Finally, a comparison between the simulation results and the measured saturations from the laboratory experiment is presented.

#### 4.4.3.1 Effect of different hysteresis models on the distribution of injected non-wetting fluid during the post-injection phase

As presented in section 4.3, the Beriozkin and Mualem (2018) [15] hysteretic model presents a good agreement with experimental data of different soil types. We choose to implement this model into the iTOUGH2 code [48]. Figure (4.15) shows the

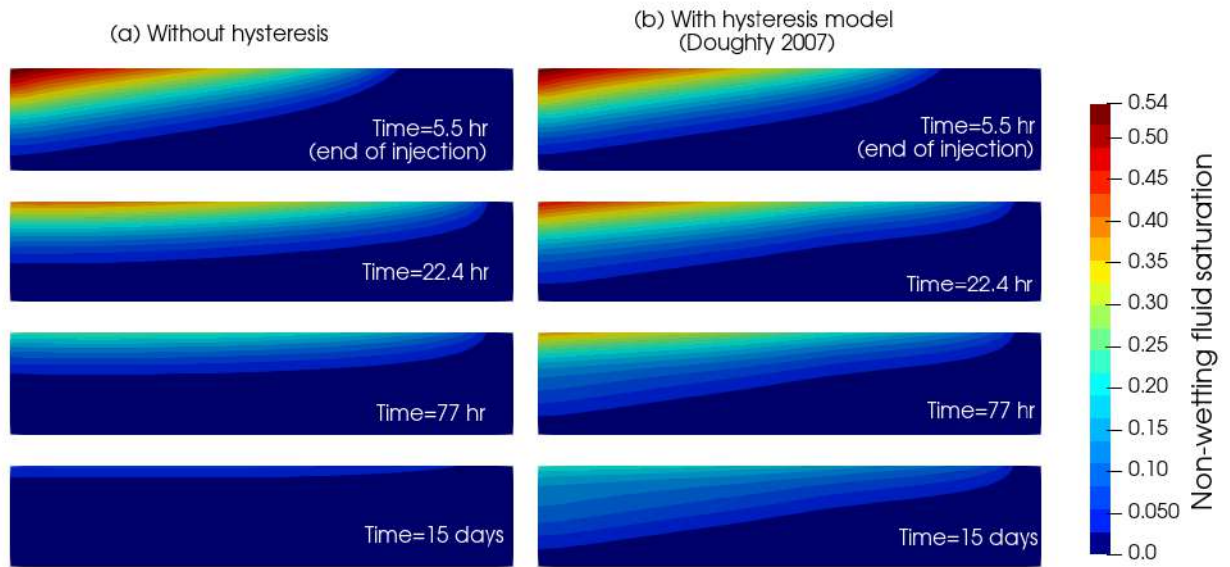
2D distribution of the non-wetting phase (Figure 4.15.a) and the demonstration of curve changes (or index number) between drying and wetting process(Figure 4.15.b). At the end of the injection, a new index curve equal to 2 starts to appear in the vicinity of the injection well, corresponding to the first imbibition path in the  $P_c - S_l$  relationships. At the same time the region of drainage (icurve=1) starts to migrate towards the other boundary. As the imbibition occurs due to the hydrostatic boundary condition, the water pushes the non-wetting fluid leading to a secondary drying of some regions (yellow color with icurve=3).



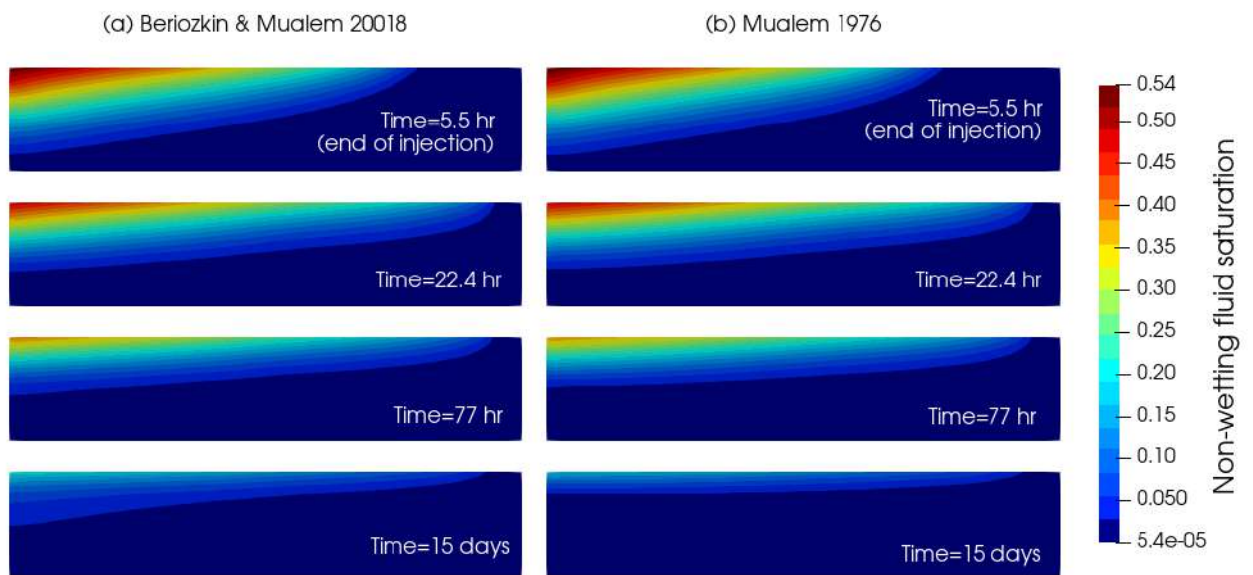
**Figure 4.15 :** (a) Simulated 2D distribution of the non-wetting fluid saturation at different time interval with the Beriozkin and Mualem (2018) hysteresis model. (b) Flow reversal index numbers where  $icurve=0$  designates fully saturation state ( $S_l = 1$ ),  $icurve=1$  designates main drying curve,  $icurve=2$  designates the first wetting curve, and  $icurve=3$  designates second drying curve.

Figure 4.16 presents a comparison between simulation results without a hysteretic model and with the hysteretic Doughty (2007) model. The amount of non-wetting phase saturation is clearly different between the two models. The hysteresis model simulates a higher non-wetting phase at the vicinity of the well injection. The imbibition process near the injection well affects the permeability of the non-wetting phase and leads to a higher non-wetting phase saturation than the non-hysteretic model which consists of much higher movement of the injected fluid during time. By the end of simulation (Time=77 hours) a significant difference in the non-wetting phase saturation between the two models is observed. This difference is due to the non-wetting phase entrapment which leads to small permeability in the imbibition region. The same observation was reported by Zhao et al. (2014) [148] where the re-imbibition curves corresponding to the first wetting curve of relative permeability is under the main drainage curve. From the

results shown in figures 4.16 4.15 no big differences are observed between the Doughty 2007 and Beriozkin and Mualem 2018 models.



**Figure 4.16 :** Simulated 2D distribution of the non-wetting fluid (Soltrol 220) saturation at different times intervals. (a) Results without hysteresis model. (b) Results with the hysteresis model of Doughty (2007).



**Figure 4.17 :** Simulated 2D distribution of the non-wetting fluid (Soltrol 220) saturation at different time intervals. (a) With hysteresis model of Beriozkin and Mualem (2018). (b) With hysteresis model of Mualem 1974

The effect of neglecting air entrapment saturation in the hysteresis models is shown in figure (4.17) where the Beriozkin and Mualem (2018) model is compared to

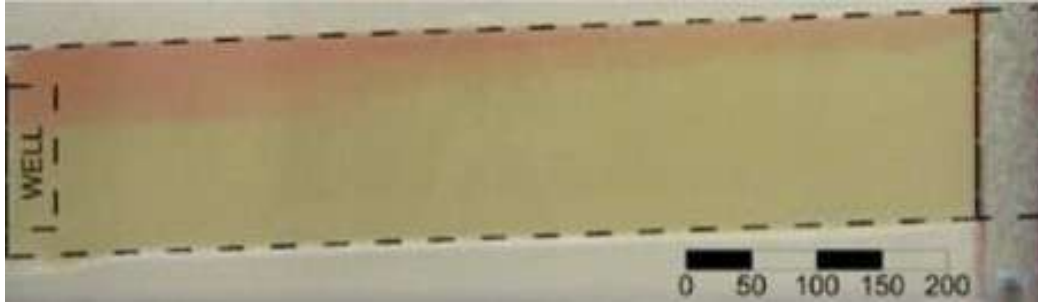
the Mualem (1974) model using respectively the parameters of scenario 1 and scenario 2 as explained above (Table 4.4). By the end of the post-injection period, the Mualem 1974 and the Beriozkin and Mualem 2018 model simulate the same evolution of the non-wetting fluid. The difference between the two models become significant as time increases ( $T > 6.94$  h). In fact, according to the Mualem (1974) model a more important non-wetting phase remains in the system compared to the Beriozkin and Mualem (2018) model, especially near the region where the imbibition process occurred. This may be due to the first imbibition scanning curve being less than the first wetting scanning curve for the model of Mualem and Beriozkin (2018). which increases the capability of the simulated porous medium to trap the non-wetting phase.

In the light of these results, hysteresis phenomenon plays an important role in modeling migration of non-wetting phases. This result is coherent with the shapes of scanning curves compared to the main drainage where the region of high scanning order (4.15.b). In fact, the scanning curve presents a less capacity of wetting phase retention compared to the main drainage, which increases the retention of the non wetting fluid. The non-wetting phase entrapment phenomenon accentuates the high retention of non-wetting phase, leading to higher quantities of non-wetting fluid in the system.

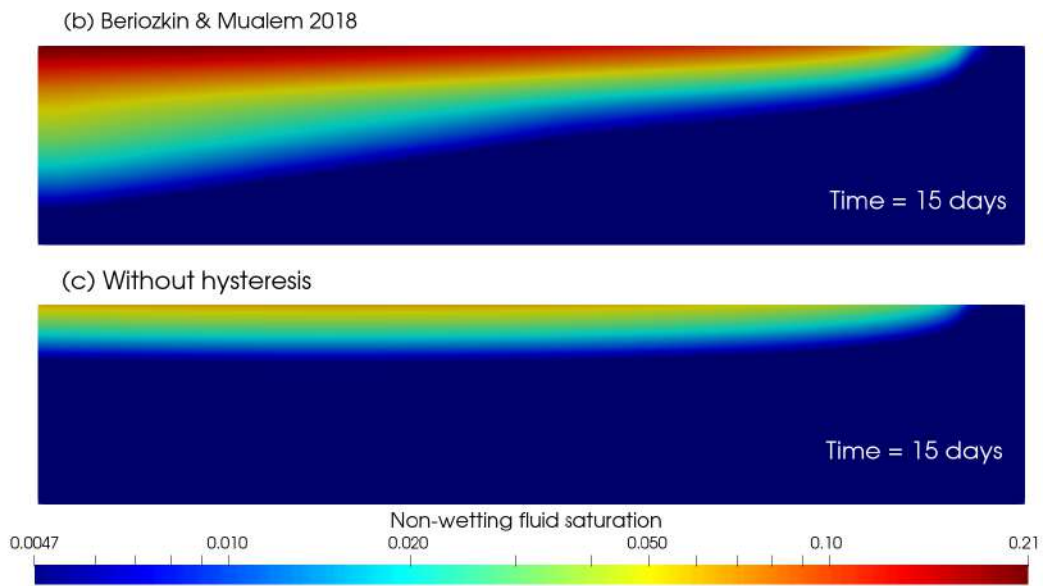
#### 4.4.3.2 Comparison of simulations with experimental observations of non-wetting fluid saturation

In this subsection a comparison of simulation results with experimental measurements of saturations is presented. The impact of the hysteresis phenomenon on migration plume is clearly observed in our simulations as in Cihan et al. (2017) [30].

Figures (4.18 and 4.19) compare the picture taken during the end of the post-injection period and the simulation results. The hysteresis model is more accurate than the non-hysteretic model to represent the non-wetting plume migration observed experimentally. Unlike the non hysteresis model, which simulates a migration of all injected non-wetting fluid toward the system. The hysteresis model succeed to reproduce the entrapment of the plume at the system



**Figure 4.18** : Picture taken during the experiment at the end of recovery periode T= 15 days from Trevisan et al. (2014) [129]



**Figure 4.19** : Simulated 2D distribution of non-wetting fluid saturation at the end of the post-injection period T=15 days. (a) With hysteretic model (Beriozkin & Mualem 2018). (b) Without hysteretic model

In order to estimate the difference between the hysteretic model and the non hysteretic model in reproducing the plume migration. The spatial moment provided by the x-ray mesurement in Trevisan et al. (2014) [129] where compared to simulated spatial moment analysis calculated using the equation (4.31) below :

$$M_{i,j}(t) = \int \int \phi(x, z) S_{nw}(x, z, t) x^i z^j dx dz \quad (4.31)$$

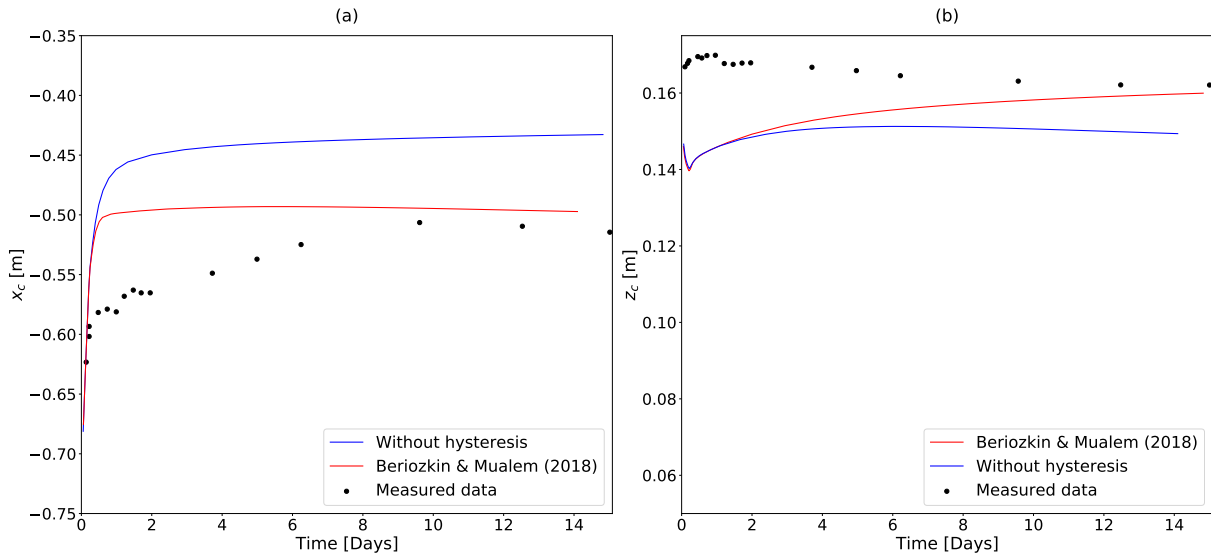
where  $M_{i,j}$  spatial moment of order i and j at the time t,  $\phi(x, z)$  is the porosity in the cell defined by the coordinate x and y. we define also, the first moment for non-wetting phase saturation  $S_{nw}$  in the x- and z-direction.



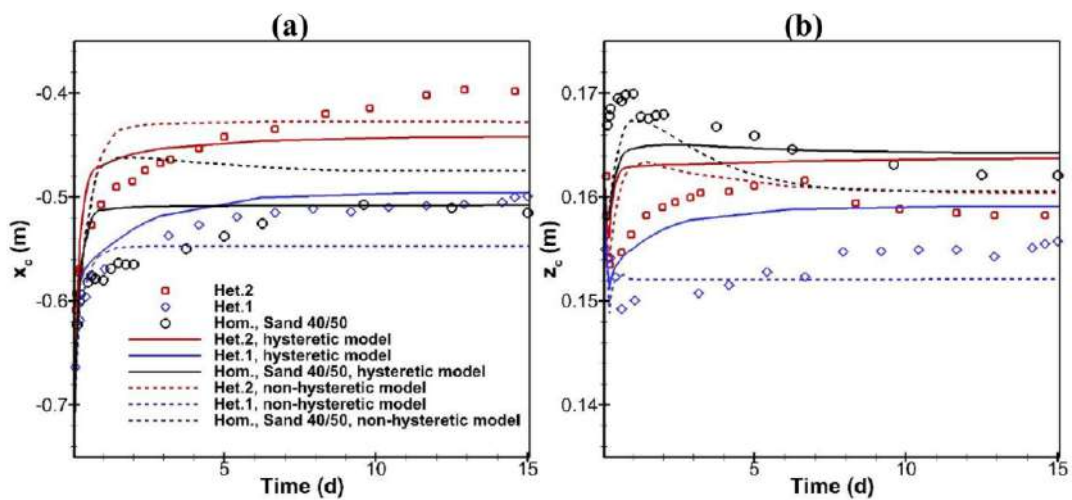
$$x_c(t) = \frac{M_{1,0}(t)}{M_{0,0}(t)} \quad (4.32)$$

$$z_c(t) = \frac{M_{0,1}(t)}{M_{0,0}(t)} \quad (4.33)$$

The coordinates  $x_c$  and  $z_c$ , can be interpreted as the coordinates of center of mass of the plume.



**Figure 4.20** : Temporal variation of horizontal ( $x_c$ ) and vertical ( $z_c$ ) position of the centroid plume. The measured data are taken from Cihan et al. (2017) [30].



**Figure 4.21** : Simulation results of temporal variation of horizontal ( $x_c$ ) and vertical ( $z_c$ ) position of the centroid plume from Cihan et al. (2017) [30]. We simulate the homogeneous experimentation which is presented by black color.

The figure (4.20) showed the time variation of the position of the plume. The hysteresis model represents reasonably well the tendencies of calculated moment analysis from experimental data, compared to the non hysteresis model. Cihan et al (2017) [30] obtained similar results for the temporal change of centroid plume as shown in the figure (4.21). Both simulations tend to approach the experimental measurement without an accurate prediction.

In the light of this simulations results and comparison with experimental data, we can conclude that the hysteresis models are more accurate to predict the plume migration in the post-injection period. The comparison of hysteresis models showed that neglecting the non-wetting phase entrapment may affect the simulation results at large times of post-injection period.

## 4.5 Conclusions (hysteresis)

In this study, we have presented a detailed review, and a quantitative assessment, of the most important conceptual models of hysteresis. Model equations and hypotheses were analyzed in detail, with comments on the required solution steps. Globally, our survey indicates that the hysteretic models of two-phase flow agreed fairly well with the experimental data, compared to the non-hysteretic models.

Our comparison between different hysteresis models suggests that the Beriozkin and Mualem model (2018) yields the best results. Mualem 1974 and Mualem 1984 models give good results on experimental data but without representing the air entrapment phenomenon (or more generally, entrapment of the non-wetting phase). Finally, the model of Haverkamp (2002) gives the least accurate results among the models that we have selected for this review, with respect to the Berkeley laboratory experiment that we have analyzed and simulated.

Our simulation results highlight the ability of hysteretic models to reproduce the experimental data of post-injection fluid plume in the Berkeley lab experiment. Neglecting the non-wetting phase entrapment may also affect the simulation results. The modeling of this experiment, where a non-wetting fluid is injected in an initially saturated reservoir, confirms the necessity of considering hysteresis in modeling such multiphase flow systems. The Beriozkin and Mualem model is found to be the most adequate to model hysteresis due to its advantages of reproducing well the experimental data, low cost computing and simple to implement.



Further developments should take into account, along with hysteresis, the existence of a capillary entry pressure (which will induce a gas entry pressure), and also, the phenomenon of capillary trapping of the non-wetting phase (e.g., of hydrogen gas).

## Conclusions en français (hystérésis)

Dans cette étude, nous avons présenté une revue détaillée, et une évaluation quantitative, des modèles conceptuels les plus importants concernant la représentation de l'hystérésis. On a analysé en détail les équations et les hypothèses de ces modèles, et commenté les étapes nécessaires pour leur résolution (quasi-analytique ou, le plus souvent, numérique). Au total, cette revue critique indique que les modèles hystérétiques diphasiques sont globalement en accord avec les données expérimentales, du moins par comparaison avec les modèles sans hystérésis.

Nos comparaisons entre les différents modèles hystérétiques suggèrent que le modèle de Beriozkin & Mualem (2018) produit les meilleurs résultats. Les modèles de Mualem 1974 et de Mualem 1984 donnent aussi d'assez bons résultats par rapport aux données expérimentales mais sans représenter le phénomène de piégeage d'air (ou de piégeage de la phase non mouillante plus généralement). Enfin, le modèle de Haverkamp (2002) donne les moins bons résultats parmi les modèles que nous avons sélectionnés pour cette revue, du moins par rapport à l'expérience de laboratoire de Berkeley que nous avons analysée et simulée.

Nos résultats de simulations mettent en évidence la capacité des modèles hystérétiques à reproduire les résultats expérimentaux de l'expérience de Berkeley en régime post-injection (migration du panache de fluide non-mouillant). La modélisation de cette expérience, dans laquelle un fluide non-mouillant est injecté dans un réservoir initialement saturé en fluide mouillant, confirme la nécessité de tenir compte de l'hystérésis dans un tel système diphasique. L'éventuel piégeage de la phase non-mouillante peut également affecter les résultats de simulation et devrait être pris en compte. Au final, nous pensons que le modèle de Beriozkin & Mualem (2018) est le modèle le plus intéressant pour représenter l'hystérésis vu son adéquation avec les résultats expérimentaux que nous avons analysés et simulés, et aussi, vu sa simplicité d'implémentation et les faibles temps calculs correspondants.

Les développements futurs sur la migration de gaz dans le stockage profond de déchets radioactifs (barrières ouvragées, roche hôte) devraient prendre en compte, outre l'hystérésis, l'existence d'une pression d'entrée capillaire non nulle (qui va induire de ce fait une pression d'entrée non nulle du gaz), ainsi que le phénomène de piégeage de la phase non mouillante (e.g., le gaz hydrogène).

# Modélisation de la migration de l'hydrogène à l'échelle d'un alvéole

**Résumé.** L'étude du transfert de gaz dans un site de stockage de déchets radioactifs est un problème multi-échelle. En effet, si la modélisation des expériences en laboratoire et in-situ contribuent au développement des nouveaux modèles pour la compréhension des mécanismes de transfert de gaz dans les matériaux argileux, la prévision de l'évolution à long terme du stockage est basée sur la simulation numérique et elle présente plusieurs défis. Dans ce chapitre, on s'intéresse à la modélisation des transferts liquide-gaz dans un site de stockage de déchets radioactifs à l'échelle d'un alvéole. Il s'agit particulièrement, d'étudier l'impact de la pression d'entrée étudiés dans le chapitre (1) sur le modèle de l'alvéole HA proposé dans le benchmark FORGE 2010. Dans un premier temps, le modèle d'alvéole HA est présenté. Puis des simulations numériques à l'échelle d'un alvéole sont présentées, avec une discussion sur l'effet d'une pression d'entrée non nulle.

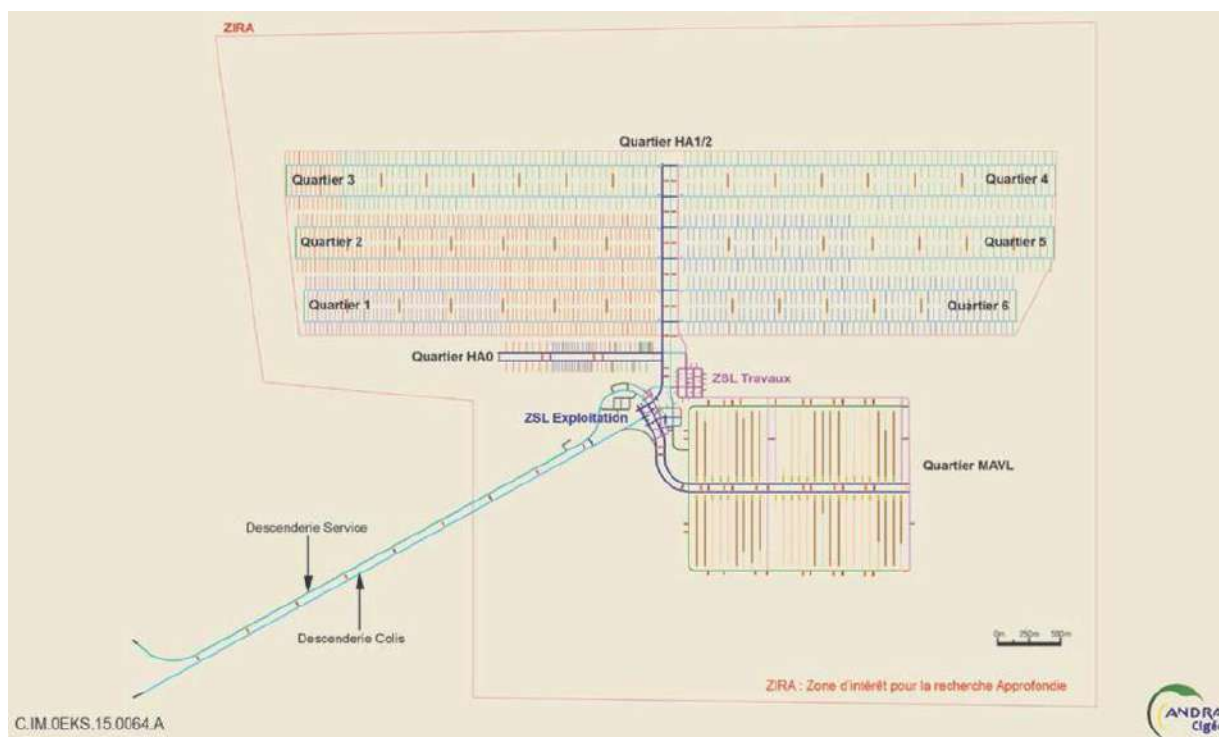
## 5.1 Introduction à la modélisation aux grandes échelles

Dans cette section, nous allons discuter des différentes échelles de modélisation du transfert d'hydrogène dans un site de stockage de déchets radioactifs. Puis nous présenterons des simulations numériques de transfert de gaz dans l'alvéole en suivant le modèle de référence que nous avons adopté, basé sur un benchmark du projet européen FORGE 2010 (Wendling et al. 2013 [138]). Une étude préliminaire de l'effet de la pression d'entrée sera aussi présentée.

### 5.1.1 L'alvéole : unité de stockage de déchets radioactifs dans le projet Cigéo

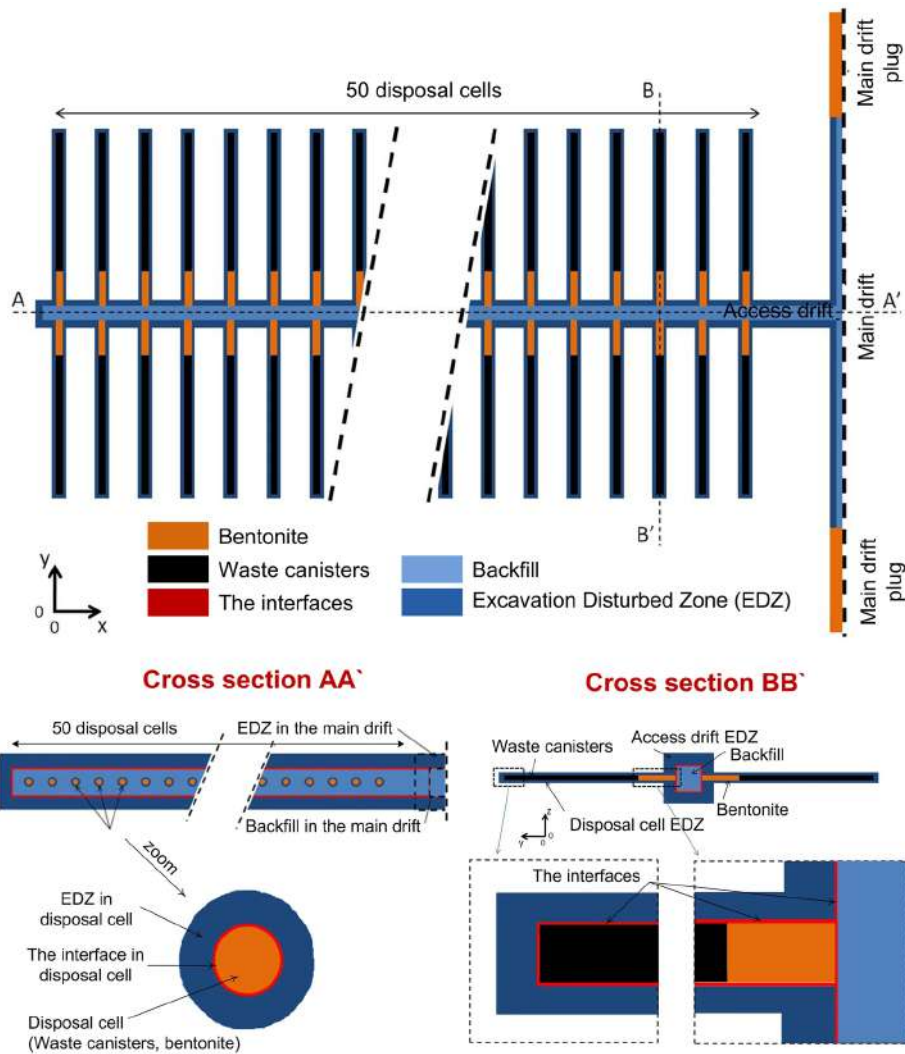
Le projet de stockage des déchets radioactifs consiste à enfouir des déchets radioactifs dans des alvéoles de stockage, creusés à une profondeur de 500 m sous la terre. L'architecture de l'installation souterraine (Figure 5.1) est composée de deux zones. Une

zone HA dédiée au stockage des déchets radioactif de haute activité (HA), et une zone dédiée au stockage des déchets radioactif de moyenne activité à vie longue (MAVL).



**Figure 5.1** : Architecture de l'installation souterraine du projet Cigéo [110]. Flèche rouge : direction de la contrainte principale (Nord-Nord-Ouest) ; flèche verte : direction du pendage des couches (Ouest-Nord-Ouest)

Chaque module, est composé de plusieurs alvéoles reliés par la galerie d'accès. Les alvéoles sont creusés sous la forme de micro-tunnels d'environ 50 cm de diamètre sur une longueur de 150 m, comme illustré en figure 5.2. Plusieurs matériaux argileux et cimentaires (Bouchon d'argile gonflant, bouchon de béton) seront utilisés dans le stockage pour permettre le sellement des alvéoles.



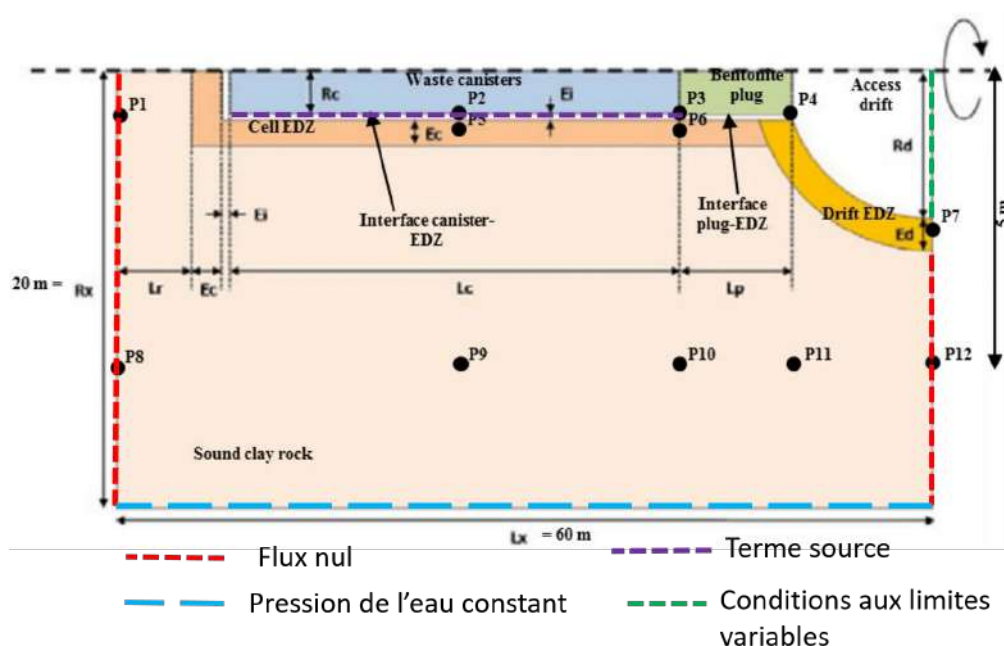
**Figure 5.2** : Schéma représentatif d'un module et de la galerie principale, avec une coupe transversale (AA) de la galerie d'accès, et une coupe transversale (BB) de l'alvéole, d'après Wendling et al. (2013) [66].

L'évaluation de l'évolution hydraulique du stockage est parmi les grands défis pour assurer la sûreté à grande échelle de l'installation. Dans cet objectif, la modélisation numérique permet d'avoir une simulation des éventuelles évolutions du stockage et de tester plusieurs architectures possibles. Toutefois, la modélisation du transfert de gaz à l'échelle du stockage reste encore une tâche difficile. En effet, la disparité des échelles des composants du stockage (de *cm* à *km*), la représentation des interfaces par des milieux poreux équivalents, la sensibilité du modèle aux données d'entrée, et les moyens de calcul nécessaires, sont toutes des contraintes qui rendent cette tâche difficile. Dans ce contexte, plusieurs exercices (tests de Benchmark) ont été réalisés dans le cadre notamment de projets européens (Talandier 2007 [126], Wendling et al. (2019) [139]) pour l'étude de transfert de l'hydrogène à différentes échelles (Alvéole, Module, Stockage). Ici, nous avons choisi d'étudier le transfert des gaz à l'échelle d'un alvéole en se basant sur le modèle d'alvéole adopté dans FORGE en 2010.

## 5.1.2 Modèle de référence pour un alvéole HA (FORGE 2010)

Dans cette sous-section, le modèle de référence déjà simulé par plusieurs équipes de différents pays dans le cadre du projet FORGE, sera considéré afin de prendre en compte une pression d'entrée non nulle. Par "modèle de référence", on comprend ici le modèle géométrique de l'alvéole (traité comme axi-symétrique), ainsi que les conditions aux limites, et enfin les paramètres hydrauliques diphasiques (ceux que nous avons déjà adoptés dans le chapitre 3).

Pour cela, on va présenter plus bas une synthèse des données expérimentales des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées et de la roche hôte. Le modèle VGMPE utilisé dans les chapitres 2 et 3 sera ajusté aux données expérimentales. Dans un premier temps, la pression d'entrée sera étudiée, et dans un second temps le modèle VGMPE sera implémenté dans un modèle hystérétique afin de prendre en compte l'effet combiné des deux phénomènes.



**Figure 5.3 :** Représentation schématique de la géométrie axisymétrique considérée pour l'exercice du modèle d'alvéole HA (Wendling et al. 2013) [138], avec illustration des points de visualisation des résultats, modifiée par Saadi et al. (2020) [118].

Le modèle de l'alvéole HA issu du Benchmark FORGE 2010 (Wendling et al. (2013) [138]) est présenté dans la Figure (5.3) s'applique à la modélisation du transfert d'hydrogène au voisinage d'un alvéole de type HA (Haute Activité). Vu la cinétique attendue au voisinage de l'alvéole, et l'échelle assez petite, l'effet de la gravité a été

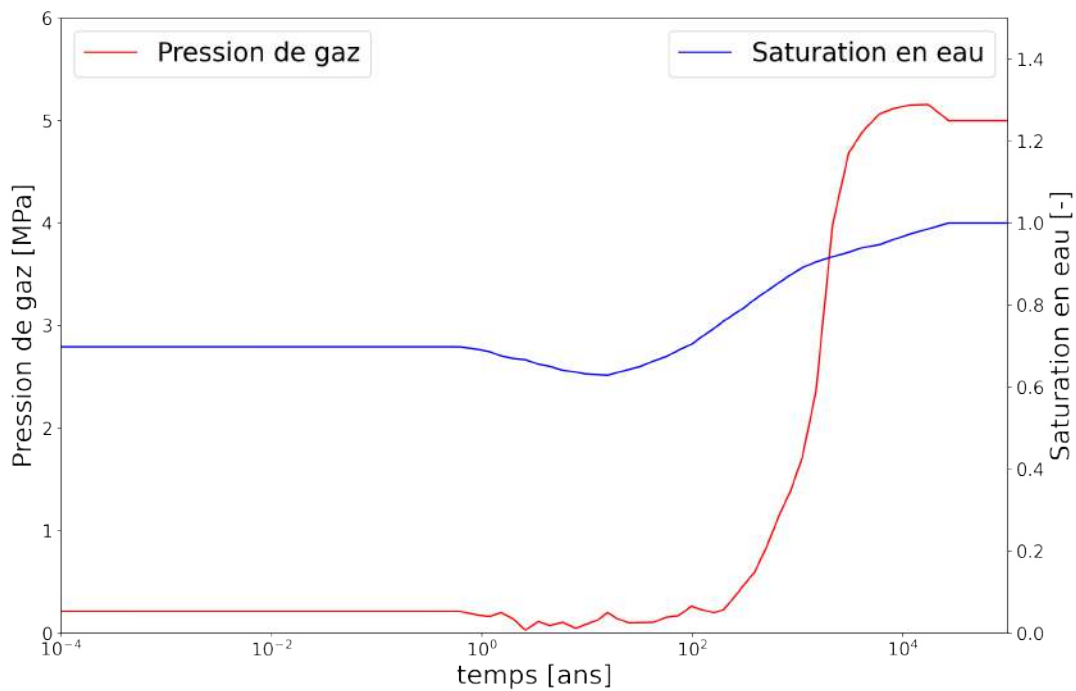
négligé par rapport aux processus capillaires, et une géométrie axisymétrique a été considérée.

*Remarque* : Le terme source de l'hydrogène est localisé dans la limite de l'alvéole. Toutefois, il y aura une entrée d'air via les conditions aux limites à l'interface galerie/alvéole. Dans notre modélisation, on a utilisé le module EOS5 qui correspond à une source d'hydrogène, ce qui ne prend pas en compte le caractère multicomposant de la phase gaz. En conséquence les outputs indiquent la saturation en gaz dans le domaine sans indiquer la composition  $H_2$ /air. Il faudra dans le futur essayer de distinguer entre ces deux composantes de gaz.

*Remarque* : la géométrie axi-symétrique semble impliquer que la partie débouchant sur la galerie d'accès (access drift) est une demi-sphère, ce qui n'est pas réaliste géométriquement ; on accepte quand même ici cette représentation (comme les modélisateurs précédents sus-cités).

On supposera que le terme source d'hydrogène est localisé sur toutes les surfaces externes du conteneur (figure 5.3), et que l'intensité de cette source est uniforme (100 mol/an/cellule) et constante sur une période d'injection de dix mille ans, puis nulle pour  $t > 10^4$  ans. Le temps total de simulation est cent mille ans ( $t_{max} = 10^5$  ans). Des conditions aux limites temporellement variables sont imposées à la limite de la galerie d'accès ; celles-ci sont présentées dans la figure (5.4).

*Remarque* : Ces conditions aux limites à l'échelle de l'alvéole sont assez difficiles à interpréter et à justifier ; elles devraient être extraites d'une simulation à plus grande échelle. La simulation effectuée dans cette partie de notre travail sera donc une réponse à ces conditions aux limites, qui peuvent être discutables. Ceci peut rendre plus difficile (ou sujet à caution) l'utilisation de cette simulation préliminaire pour comprendre la migration naturelle des gaz in-situ.



**Figure 5.4 :** Conditions aux limites variables imposées à la limite de la galerie d'accès (Wendling et al. 2013) [138].

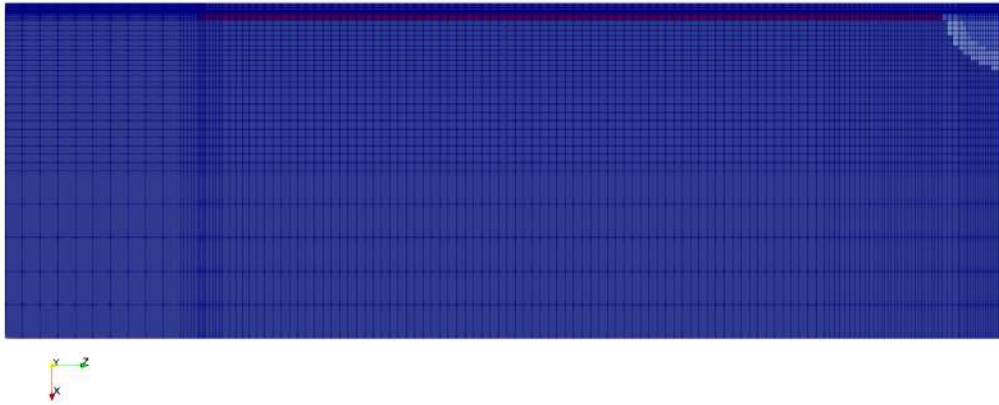
Les propriétés hydrauliques des différents matériaux (roche hôte, EDZ, bouchon, remblai) peuvent être consultées dans Wendling et al. (2013) [138].

La seule différence entre les paramètres de cette simulation et les paramètres de référence, outre la pression d'entrée dont nous reparlerons plus bas, est la perméabilité de l'interface entre l'alvéole et l'EDZ. Nous avons adopté ici pour cette interface une perméabilité de  $10^{-15} m^2$ . Une perméabilité plus grande aurait pu être souhaitable, mais vu les moyens de calcul que nous disposons, nous avons fait le choix de la diminuer. Cette hypothèse nous a permis d'accélérer considérablement les calculs et de tester plusieurs formes de maillage.

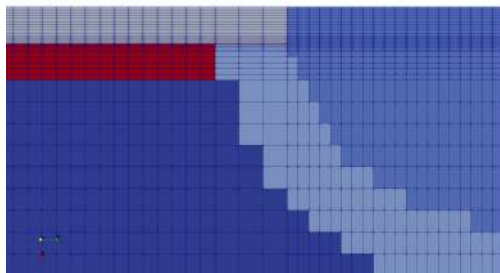
Après plusieurs tests, un maillage radial comportant 8600 cellules rectangulaires selon les coordonnées cylindriques ( $r, z$ ) a été adopté (figure 5.5). L'interface entre l'alvéole et l'EDZ a été représentée par une couche d'épaisseur 1 cm. Il faut souligner qu'on a essayé de raffiner le maillage un peu plus, mais on s'est retrouvé avec des temps de calculs très long. Vu les moyens de calcul dont nous disposons, nous restons donc avec un maillage de 8600 cellules radiales ( $r, z$ ), pour un domaine de taille (20 m, 60 m), c'est-à-dire, de rayon 20 m et de longueur 60 m. Ce domaine comprend l'alvéole (dont le



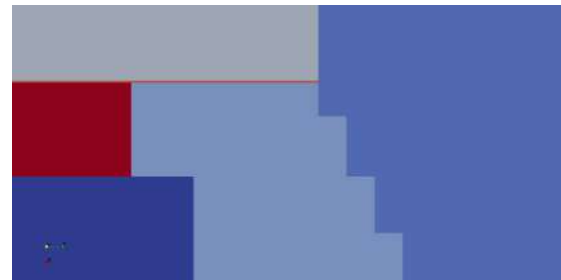
rayon est 0.5 m) ainsi que la roche hôte, l'EDZ de l'alvéole, et des zones d'interfaces : voir détails dans la figure 5.5, et ses sous-figures (a), (b), (c).



- (a) Représentation du maillage radial axisymétrique de l'alvéole et de la roche autour de l'alvéole (horizontalement : longueur 60 m ; verticalement : rayon 20 m). L'alvéole elle-même est visible en haut du domaine (son rayon est de 0.5 m), et la forme de la galerie d'accès est visible en haut à droite (rayon 3 m).



- (b) Zoom sur la zone débouchant sur la galerie d'accès



- (c) Zoom sur l'interface de 1 cm d'épaisseur entre le bouchon et l'EDZ.

**Figure 5.5 :** (a) Représentation du maillage radial axisymétrique de l'alvéole et de la roche environnante. (b) Zoom sur la localisation des différents matériaux près du débouché à la galerie d'accès. (c) Zoom sur l'interface de 1 cm d'épaisseur entre l'alvéole et son EDZ, et entre le bouchon et l'EDZ.

### 5.1.3 Etude préliminaire de l'effet de la pression d'entrée

Dans cette partie on va réaliser des simulations sur le modèle présenté dans la section (5.1.2). Dans un premier temps, nous utilisons les paramètres hydrauliques standards du Benchmark FORGE pour les courbes de rétention et de perméabilité à l'eau et au gaz, afin de simuler un état de référence : ce scénario sera noté "Alvéole\_0".

Idéalement, les paramètres des barrières ouvragées et de la roche hôte présentés dans le chapitre (1) devraient être ajustés et comparés avec les valeurs de références dans

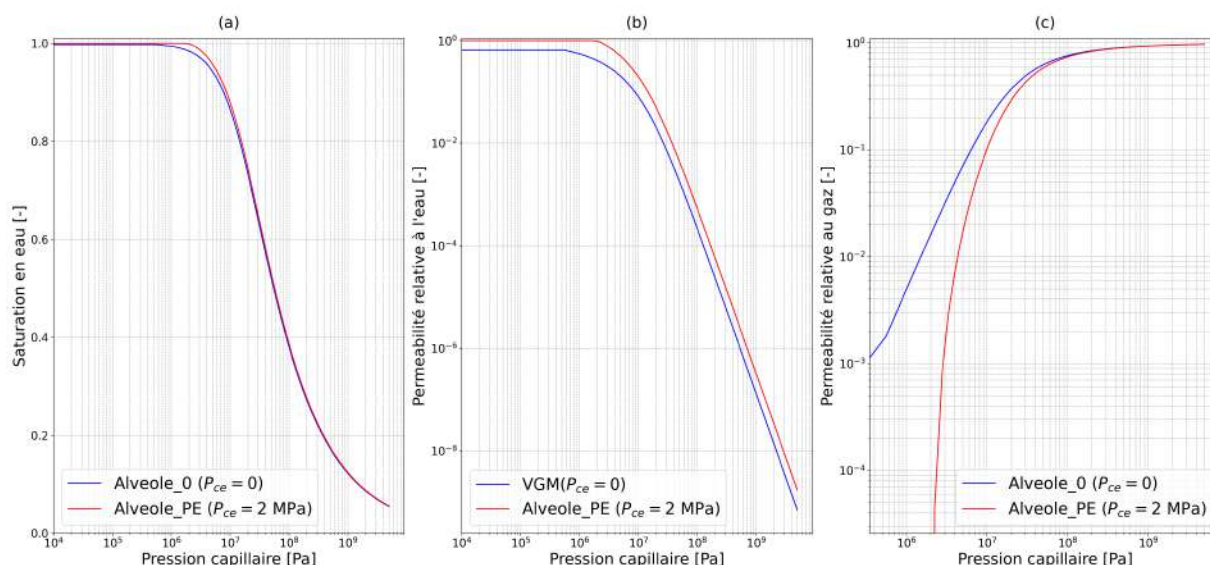
la littérature. Cependant, nous avons plutôt procédé comme suit : Pour chaque matériau on a estimé une valeur de la pression d'entrée basée sur la forme de la courbe de rétention et sur l'étude effectuée dans le chapitre (2).

La paramétrisation de la roche du Callovo-Oxfordien dans le chapitre (2) a mis en évidence une assez faible différence entre les paramètres ( $\alpha$  et  $n$ ) du modèle VGM ( $P_{c,e} = 0$ ) et ceux du modèle VGMPE ( $P_{c,e} \neq 0$ ). Par conséquent, on supposera que cette différence reste assez faible pour les autres matériaux.

Matériaux	Roche hôte	EDZ	Bouchon	Remblai	Interface
$P_{c,e}$ [MPa]	2	1	1	0	0

**Tableau 5.1 :** Valeurs de la pression capillaire d'entrée pour chaque type de matériau (en MPa)

Le tableau (5.1) montre les valeurs de la pression capillaire d'entrée  $P_{c,e}$  adoptées pour chaque matériau dans le scénario noté "Alveole\_PE". La figure (5.6) présente une comparaison de l'effet de la prise en compte d'une pression capillaire d'entrée non nulle, sur la courbe de rétention et sur les perméabilités relatives à l'eau et au gaz pour la roche hôte du COx.

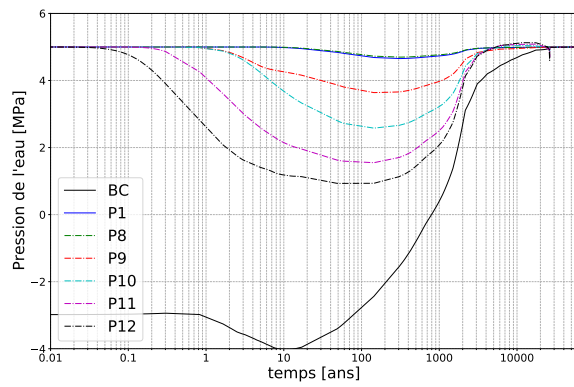


**Figure 5.6 :** Mise en évidence de l'impact d'une pression capillaire d'entrée non nulle sur les propriétés hydrauliques de la roche hôte :  $P_{c,e} = 2$  MPa pour les courbes rouges ;  $P_{c,e} = 0$  pour les courbes bleues. (a) Courbe de rétention. (b) Courbe de perméabilité relative à l'eau. (c) Courbe de perméabilité relative au gaz.

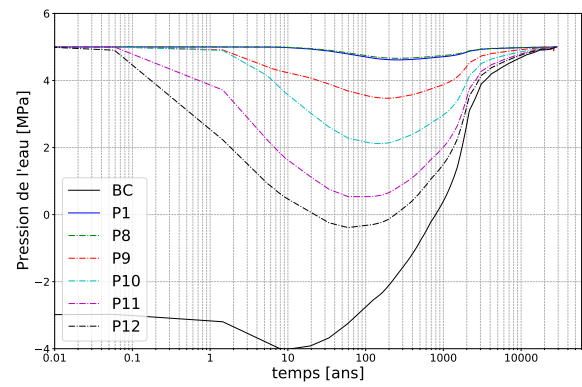
La figure (5.7) présente les résultats de la simulation numérique des variables  $P_l$ ,  $X_l^{H_2}$ , et  $S_l$  aux différents points du domaine (5.3) en considérant les deux paramétrisations, Alvéole\_0 et Alvéole\_PE. Tout d'abord il faut noter que nous obtenons des

tendances similaires à celle simulées précédemment par les différentes équipes de FORGE. Des différences de quelques ordres de grandeur sur ces variables ont été observées mais la tendance globale reste presque la même.

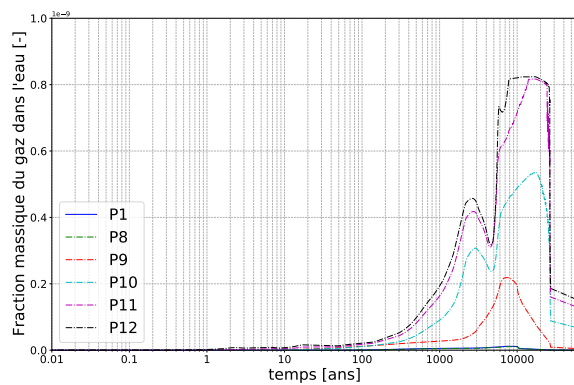
Toutefois, on observe des différences importantes entre les simulations issues de la paramétrisation Alvéole\_0 et celles issues de la paramétrisation alvéole\_PE sur les grandeurs de la pression de l'eau et de la saturation aux points d'observation. En effet, la paramétrisation alvéole\_PE ( $P_{c,e} \neq 0$ ) simule des pressions de l'eau très importantes au voisinage de l'alvéole et une faible extension du gaz dans la roche d'argile. Cette extension est traduite par la fraction massique du gaz dissoute dans l'eau comparée dans les figures 5.7.c et 5.7.d. Au contraire la paramétrisation, Alvéole\_0 ( $P_{c,e} = 0$ ) simule des pressions de l'eau très faibles et un passage de gaz plus facile dans l'EDZ. Dans le même sens, le point P6 situé dans l'EDZ ( $P_{c,e} \neq 1$ ) connaît une désaturation par le modèle Alvéole\_0 tandis qu'il reste totalement saturé dans le modèle Alvéole\_PE. Ce blockage de passage de gaz dans l'EDZ est dû au seuil de la pression d'entrée imposé par l'EDZ.



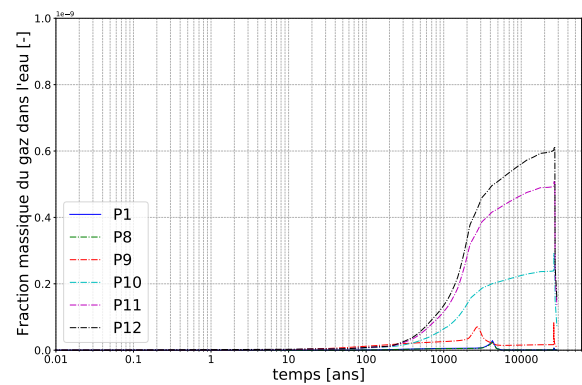
(a)



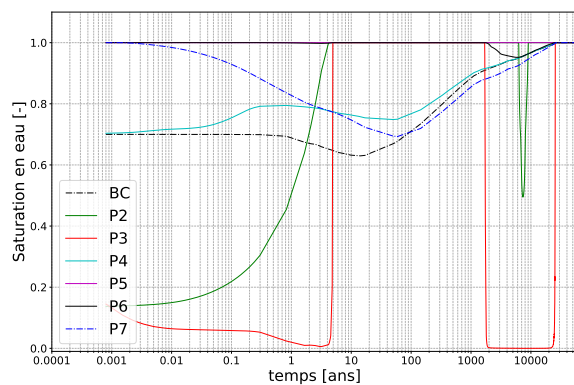
(b)



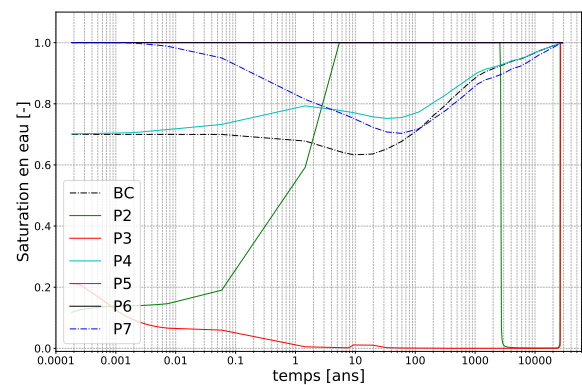
(c)



(d)



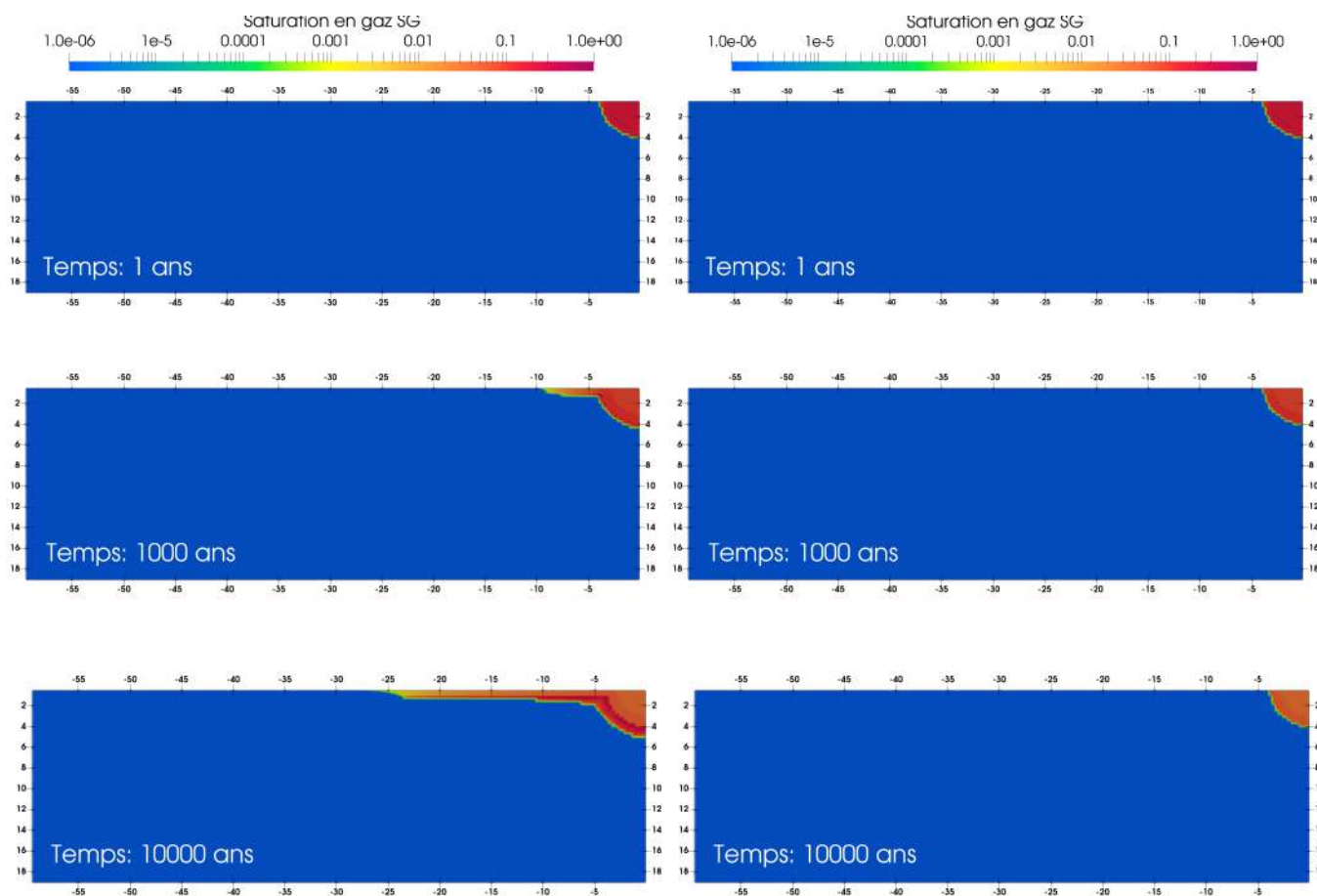
(e)



(f)

**Figure 5.7 :** Comparaison de l'évolution temporelle de la pression de l'eau (a, b), de la fraction massique du gaz dissoute dans l'eau (c, d) et de la saturation en eau (e, f) simulées avec les modèles Alvéole\_0 (a, c, e) et Alvéole\_PE (b, d, f). Les points (P1,...,P12) sont illustrés dans la figure (5.3)

La figure (5.8) présente la distribution de la saturation en gaz dans le domaine simulée à différents temps  $T = 1, 1000, 10000$  ans. Il faut souligner que pour la visualisation des graphes en 2D, on a procédé à un découpage de la géométrie sur la région de ( $R < 5$ ), la partie alvéole et Bentonite n'est donc pas présentée dans la figure (5.8).



(a)

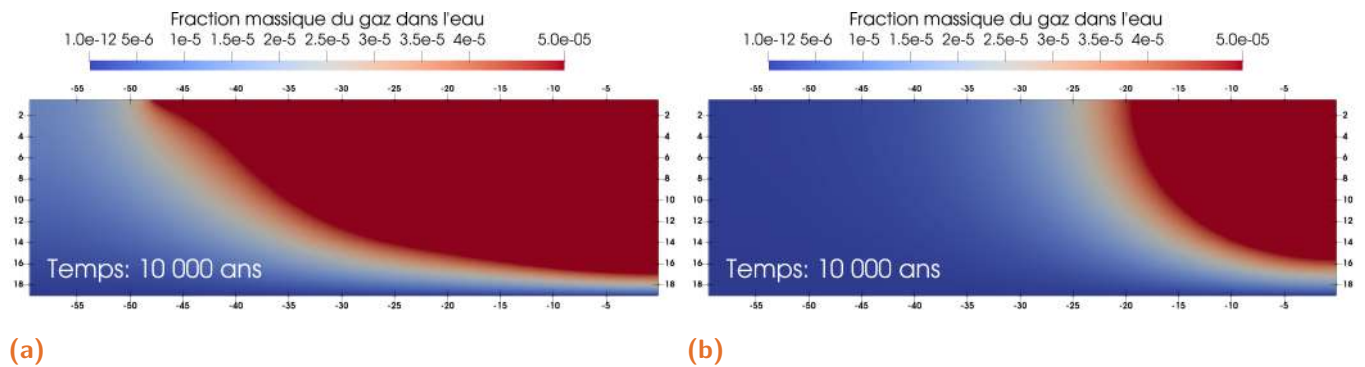
(b)

**Figure 5.8 :** Distribution spatiales de la saturation en gaz simulées aux différents temps  $T[\text{ans}]$ . (a) À gauche simulation avec les propriétés hydrauliques du modèle standard Alvéole\_0. (b) À droite, simulation avec une pression d'entrée non nulle suivant le modèle Alvéole\_PE

Les distributions spatiales de la saturation en gaz (figure 5.8) confirment notre analyse de la figure (5.7). La cinétique de migration de gaz dans le cas du scénario Alvéole\_0 se présente par un avancement du gaz dans les matériaux les plus perméables (remblai, interfaces) puis dans la roche hôte avec une cinétique très faible. La perméabilité du matériau et le paramètre clé de cette migration de gaz dans ce scénario. Toutefois dans le scénario Alvéole\_PE l'accès du gaz aux matériaux à grands seuils de pression d'entrée (roche hôte, EDZ) est plus difficile à cause de la condition supplémentaire de pression d'entrée. En effet, le gaz suit un chemin vers la galerie, ce qui augmente le flux de gaz vers la galerie d'accès.

Cette différence entre les deux paramétrisations Alvéole\_0 et Alvéole\_PE est très importante. En effet, si la première permet de dissiper la montée en pression de gaz uniformément autour de l'alvéole (figure 5.7.c) à travers une pénétration de gaz dans la roche, la seconde induit à une augmentation significative de la pression de l'eau, et

ne permet pas une diffusion étalée du gaz dissout autour de l'alvéole (Figure 5.9), mais plutôt à un passage préférentiel du gaz vers les matériaux à faible pression d'entrée.



**Figure 5.9 :** Distribution spatiales de la fraction massique de gaz dissoute dans l'eau  $X_l^{H_2}$  simulées à  $T=10\,000$  ans. (a) À gauche simulation avec les propriétés hydrauliques du modèle standard Alvéole\_0. (b) À droite, simulation avec une pression d'entrée non nulle suivant le modèle Alvéole\_PE

Les figures 5.9 et 5.8 démontrent l'impact des deux mécanismes de transfert de gaz (diffusion et advection) autour de l'alvéole. En effet, la migration de gaz dans la roche hôte s'effectue par diffusion et advection pour le modèle Alvéole\_0, cette advection est le résultat de la saturation de l'EDZ. Tandis que dans le modèle Alvéole\_PE le transfert de gaz dans la roche hôte s'effectue uniquement par diffusion. Cette différence des processus de migration de gaz entre les deux modèles, impacte la distribution de la masse dissoute autour de l'alvéole.

## 5.2 Conclusion

Dans ce chapitre consacré à l'étude préliminaire de la migration des gaz à l'échelle d'un alvéole, nous avons discuté les différentes échelles de modélisation de migration des gaz, et nous avons testé l'effet de la pression d'entrée sur une situation attendue dans le stockage à l'échelle de l'alvéole. Ces résultats sont en cohérence avec la modélisation de l'expérience in-situ (PGZ1-GAZ) en ce qui concerne l'effet d'une pression d'entrée non nulle sur la migration des gaz dans les milieux saturés. Les résultats préliminaires que nous venons de présenter confirment l'importance de la pression d'entrée dans la compréhension des mécanismes de transferts de gaz au voisinage d'un site de stockage des déchets radioactifs.

En ce qui concerne l'effet de l'hystérésis, il nous a semblé que l'ordre de grandeur de la désaturation des matériaux simulé dans cet exercice de benchmark est trop faible (10 % pour les premières cellules de l'EDZ et moins de 1 % pour la roche hôte) dans le



cas de l'EDZ avec pression d'entrée nulle) pour pouvoir réaliser de manière pertinente une étude de sensibilité à l'hystérésis.

Toutefois, au vu de l'importance de l'hystérésis démontré dans le chapitre (4) et des effets cinétiques attendus dans le stockage (cycles de drainage et imbibition, ou désaturation et resaturation), il nous semble important de tester dans le futur l'effet de l'hystérésis pour réduire les incertitudes sur la migration des gaz dans un site de stockage des déchets radioactifs.

Les conditions requises pour une telle étude de sensibilité (qui reste à réaliser) sont probablement de réduire le forçage du système par des conditions limites plus sophistiquées et moins contraignantes, d'accroître l'échelle de temps de la simulation, et probablement, d'utiliser un terme source d'hydrogène plus physique et comportant des aléas temporels.





En résumé, nous avons consacré cette étude essentiellement à la compréhension des mécanismes de transfert de gaz (hydrogène) en milieux poreux initialement saturés, dans le cadre des études d'évaluation de la sûreté d'un stockage de déchets radioactifs HA et MAVL en couche géologique profonde (roche argileuse du Callovo-Oxfordien, ou "COx"). Cette étude repose en partie sur la caractérisation des propriétés hydrodynamiques diphasiques liquide-gaz des matériaux des barrières ouvragées et de la roche hôte. Notre travail démontre l'importance de l'hystérésis et de la pression d'entrée non nulle à travers des expériences in-situ (PGZ1-GAZ) et en laboratoire (Mesures des courbes de rétention). Ces deux phénomènes ont été le plus souvent négligés dans les modélisations précédentes, ce qui peut conduire à des incertitudes sur la démonstration de la sûreté de l'installation, et sur les capacités des différentes barrières ouvragées à limiter le relachement des radionucléides.

On a assemblé et passé en revue les mesures expérimentales de ces propriétés dans le chapitre (1). Cette étude bibliographique a permis de construire une base de données sur la caractérisation des propriétés hydrauliques des barrières ouvragées.

Puis on a formulé dans le chapitre 2 un modèle capillaire bi-phasique pour prendre en compte une pression d'entrée non nulle, à partir du modèle des perméabilités relatives eau-gaz de Mualem [95] et de la courbe de rétention de Van Genuchten [131]. Deux méthodes d'ajustement (identification des paramètres) ont été présentées et implémentées par optimisation mono-objectif (dans le code RETC) et multi-objectif (avec un script Python), à partir de points de mesures expérimentaux des courbes de rétention et des perméabilités relatives à l'eau et au gaz. La nouvelle formulation du modèle a été implémentée dans le code iTOUGH2-EOS3 par deux méthodes numériques (méthode SG et méthode PC).

On a ensuite étudié spécifiquement dans le chapitre (3) l'effet de la pression d'entrée capillaire par modélisation des écoulements diphasiques à l'aide du code de calcul iTOUGH2 et d'autres outils de calcul, avec au final, une application à l'expérience d'injection de gaz in-situ dans la roche hôte COx (expérience PGZ1-GAZ), ce qui a permis de quantifier l'effet de la pression d'entrée sur une situation réelle.

Le chapitre suivant (4), a été consacré à une revue critique et une évaluation de modèles théoriques permettant de prendre en compte l'effet d'hystérésis. On a ensuite procédé à la vérification numérique de ces modèles à travers des scripts de calculs (Python). Cinq nouveaux modèles d'hystérésis ont été implémentés dans le code de calcul

iTOUGH2 en plus du modèle existant de Doughty (2007) [42]. La comparaison entre les six modèles choisis et les simulations numériques ont permis de conclure que le modèle Beriozkin et Mualem (2018) [15] est le meilleur modèle empirique à cause de sa bonne représentation du piégeage de la phase non mouillante et de son intérêt numérique. Ce modèle a été complété par la formulation de Lenhard et al. (1987) [78] pour les perméabilités relatives à l'eau et au gaz, puis implémenté dans le code iTOUGH2.

Enfin le dernier chapitre (5), présente des calculs préliminaires de simulation des transferts eau-gaz à l'échelle d'un alvéole (waste cell) à travers le benchmark FORGE 2010. Cette étude préliminaire a souligné l'importance de prendre en compte de la pression d'entrée pour la modélisation du transfert de gaz à grandes échelles.

L'objectif du présent travail est d'améliorer la modélisation des transferts de gaz (hydrogène) en milieu quasi-saturé. Au vu des résultats obtenus, on peut résumer, comme suit, les **principales conclusions** :

- La pression d'entrée est un paramètre clé pour la modélisation du transfert de gaz dans les milieux poreux initialement saturés. En effet, ce paramètre conditionne le passage d'un mode de transfert par diffusion à un mode de transport visco-capillaire. Dans le contexte du stockage de déchets radioactifs, la pression d'entrée peut imposer un seuil d'entrée à la formation argileuse, et comme cette valeur seuil diffère entre les matériaux des barrières ouvragées, un chemin préférentiel de migration des gaz peut se créer à travers les matériaux à faible pression capillaire d'entrée ;
- La prise en compte de la pression d'entrée dans un modèle biphasique bicomposant, dépend de la méthode numérique adoptée. Son implémentation peut se faire directement dans le cas où la pression capillaire  $P_c$  est une variable primaire. Sinon une condition thermodynamique supplémentaire est nécessaire ;
- Afin d'éviter les problèmes de convergence numérique, il faut effectuer un ajustement simultané des courbes de rétention et de perméabilité à l'eau et au gaz. Cette caractérisation permet de mieux reproduire la réalité physique et impose une valeur de pression d'entrée  $P_{c,e}$  commune à toutes les propriétés hydrauliques du matériau considéré ;
- En raison de la forte sensibilité de la perméabilité à l'eau au voisinage de la saturation, il sera donc nécessaire de prendre en compte une pression d'entrée non nulle dans les propriétés hydrauliques pour l'étude de transport des fluides dans les milieux poreux. Plus particulièrement, il faut être très vigilant lorsque la courbe de la perméabilité relative à l'eau est prédite à partir des paramètres de VGM issus de l'ajustement des courbes de rétention.

- L’hystérésis est un phénomène très important pour la compréhension de transfert multiphasique dans les milieux poreux. Les simulations réalisées sur l’expérience en laboratoire (Trevisan et al. (2014)[129]) ont permis de souligner la bonne capacité d’un modèle numérique de l’hystérésis à reproduire les données expérimentales et de représenter le piégeage de la phase non-mouillante. Dans le cadre du stockage des déchets radioactifs, le piégeage de l’air peut affecter les vitesses de re-saturation autour de l’installation lors de la phase post-fermeture ;
- Les résultats préliminaires obtenus jusqu’ici pour la simulation des transferts eau-gaz à l’échelle d’un alvéole indiquent les éventuelles difficultés numériques liées à ces simulations dans des milieux présentant des discontinuités (interfaces, zones endommagées) et dans lesquels les écoulements eau-gaz sont régis par des coefficients fortement non-linéaires (courbe de rétention, courbes de perméabilités eau et gaz) et parfois non-inversibles ;

Le présent travail, nous a permis de mieux comprendre quelques problématiques et de tester l’impact de certains phénomènes sur la migration des gaz dans les milieux initialement saturés. Toutefois, plusieurs challenges et perspectives ont émergé, et nous espérons que ce présent travail sera utile pour aborder ces **extensions**. Les **perspectives** et les suites à donner à cette étude sont à notre avis les suivantes :

- Dans un premier temps et sous forme d’application directe des résultats de ce travail, il sera intéressant de procéder à un traitement et analyse des données collectées pour la caractérisation des différents matériaux des barrières ouvragées (Roche hôte et EDZ, Béton , Bentonite). Ceci afin de permettre la comparaison avec les paramètres de référence, et de tester l’effet de certains phénomènes à grandes échelles spatiales et temporelles.
- Les matériaux ouvragés et la roche hôte elle-même sont hétérogènes, et comportent des interfaces matérielles ( argile/béton, matériau cimentaire/COx, e COx/mortier, COx/bentonite EDZ/roche intacte, etc) . Différents seuils de pression capillaires d’entrée pour différents matériaux des barrières ouvragées restent à prendre en compte explicitement. Ceux-ci vont conditionner un chemin préférentiel des gaz, et peuvent ainsi favoriser le transfert des radionucléides à travers les galeries et les puits de sorties.
- Il convient de prendre en compte les effets de pression d’entrée dans le modèle d’hystérésis proposé dans le présent travail (modèle de Beriozkin et Mualem 2018, cf. 4.2.2.4) par une nouvelle méthode. En effet, la façon avec laquelle on a implémenté l’hystérésis dans le code iTOUGH2 ne dépend pas des courbes capillaires choisies<sup>1</sup>,

---

1. En effet, en plus de la fonction 'domhys' qui gère le passage entre les courbes intermédiaires, on a ajouté quatre fonctions qui traduisent les courbes principales et leurs inverses. Avec cette méthode

ce qui facilite l'application des modèles d'hystérésis à différents modèles capillaires. Toutefois, et pour certains modèles d'hystérésis, l'inversibilité des courbes est une condition nécessaire au calcul des courbes intermédiaires. Ainsi, il faut distinguer dans les tests thermodynamiques entre les courbes intermédiaires et les courbes principales lors de la résolution avec la méthode PC comme variable primaire. Ces deux points sont essentiels pour pouvoir appliquer le modèle de Bériozkin & Mualem 2018 à une formulation des courbes de rétention présentant une pression d'entrée non nulle, tel que l'ancien modèle de Brooks & Corey, et surtout, notre nouveau modèle VGMPE (Van Genuchten Mualem avec Pression d'Entrée).

D'autres aspects des simulations restent à résoudre, à améliorer, et/ou, à compléter. Par exemple :

- Pour la modélisation à l'échelle de l'alvéole, on a vu que les conditions aux limites proposées dans le projet FORGE (et reprises par nous) sont assez difficiles à interpréter et à justifier. Dans le futur, ces conditions limites pourraient être extraites d'une simulation à plus grande échelle, selon une approche "téléscopique" (simulation sur un domaine grande échelle avec conditions limites sur un sous-domaine à plus petite échelle).
- De plus, toujours à l'échelle de l'alvéole, on a vu que les variations du taux de saturation dans le domaine, sur une durée simulée de  $0.909707^{times}10^{+12}$  secondes soit environ 28846 années, étaient assez faibles ( $0.10 \text{ m}^3/\text{m}^3$  pour les premières cellules de l'EDZ et moins de  $0.01 \text{ m}^3/\text{m}^3$  pour la roche hôte). Dans ces conditions on s'attend à de faibles effets d'hystérésis. Cependant, nous avons suggéré précédemment que ces faibles variations du taux de saturation sont probablement dûes aux limitations du modèle : le terme de production d'hydrogène, et les conditions aux limites assez contraignantes imposées.
- Mise en oeuvre d'un modèle de production d'hydrogène à base physique (plutôt qu'un terme source empirique de production d'hydrogène) ; ce modèle de production devra sans doute coupler la production locale d'hydrogène à la saturation locale et/ou à la pression locale de gaz. Ce modèle pourrait favoriser une forte hystérésis due à la quantité d'eau disponible. En effet, une montée en pression d'une phase gazeuse va induire un drainage des matériaux au voisinage de l'alvéole, et donc limiter la quantité d'eau disponible. Ceci pourrait diminuer la quantité d'hydrogène produite (par corrosion), ce qui provoquerait une ré-imbibition du domaine par l'eau de site.

---

d'implémentation, ce passage impose que la courbe de rétention soit inversible. Lors de l'introduction d'une pression capillaire d'entrée non nulle, il faudrait remédier à ce problème tout en considérant les conditions thermodynamiques de passage entre les phases

- Prise en compte des effets de déformation des milieux; les couplages hydro-mécaniques ont notamment des effets sur les perméabilités (par micro-fissuration ou par dilatation), et donc, sur le transfert des fluides (eau, et surtout, gaz). Ces effets mécaniques peuvent créer des chemins préférentiels et réduire le seuil de la pression d'entrée du gaz. Dans ce cas une dépendance entre contrainte mécanique et courbes de rétention sera essentielle.
- Prise en compte de façon quantitative des incertitudes des paramètres du modèle utilisé, et propagation de ces incertitudes sur les résultats de modélisation, par exemple par des méthodes probabilistes de propagation d'incertitudes inputs outputs. Ce nouveau volet peut requérir une mise en oeuvre de méthodes particulières d'échantillonnages des paramètres d'entrée, et la mise en oeuvre de simulations multiples de type Monte-Carlo, et/ou la construction de méta-modèles. La présente étude nous conduit à penser que les paramètres importants dans cette analyse d'incertitude sont : la perméabilité intrinsèque de Darcy; le terme source d'hydrogène; la pression capillaire d'entrée; et le phénomène d'hystérésis.

À la lumière de nos travaux, nous souhaitons que notre démarche ait participé à la compréhension des mécanismes de transfert de gaz dans les milieux souterrains initialement saturés d'un stockage géologique profond de déchets radioactifs (roche hôte, barrières ouvragées). Nous recommandons très fortement la prise en compte de ces deux phénomènes physiques (pression d'entrée et hystérésis) pour les études de sûreté de la future installation de stockage profond de déchets radioactifs Haute Activité et Moyenne Activité Vie Longue.



# Bibliographie

- [1] R. ABABOU, *Capillary Flows in Heterogeneous and Random Porous Media 1*. ISTE Ltd et John Wiley & Sons Inc., 2018, t. 1, p. 1-371.
- [2] R. ABABOU, „Approaches to Large Scale Unsaturated Flow in Heterogeneous, Stratified, and Fractured Geologic Media,“ U.S. Nuclear Regulatory Commission, rapp. tech., 1991, p. 1-150.
- [3] R. ABABOU et A. C. BAGTZOGLU, „BIGFLOW : A Numerical Code for Simulating Flow in Variably Saturated, Heterogeneous Geologic Media (Theory and User’s Manual, Version 1.1),“ U.S. Nuclear Regulatory Commission, rapp. tech., 1993, p. 1-139.
- [4] R. ABABOU, I. CANAMON et P. A., „Macro-Permeability Distribution and Anisotropy in a 3D Fissured and Fractured Clay Rock : Excavation Damaged Zone around a Cylindrical Drift in Callovo-Oxfordian Argilite (Bure),“ *Physics & Chemistry of the Earth (Special Issue : Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, 4th Internat. Meeting Clays, Nantes, 2010)*, 2011.
- [5] A. AISSAOUI, „Etude théorique et expérimentale de l’hystérésis des pressions capillaires et des perméabilités relatives en vue du stockage souterrain de gaz. PhD thesis, École des Mines de Paris, Paris, France,“ thèse de doct., 1983.
- [6] B. ALBERS, „Modeling the hysteretic behavior of the capillary pressure in partially saturated porous media : a review,“ *Acta Mechanica*, t. 225, n° 8, p. 2163-2189, 2014.
- [7] ANDRA, „Argile : Evolution Phénoménologique du Stockage Géologique,“ *Collection «Les rapports», Andra (France)*, 2005.
- [8] —, „Mesure de la pression de percée de gaz et importance de la cinétique de montée en pression. (Document technique externe ANDRA, CG.RP.AMFS.12.0030),“ Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA), France, rapp. tech., 2012 (July), p. 1-28.
- [9] ANDRA, „Dossier 2005 Argile Référentiel du comportement des radionucléides et des toxiques chimiques d’un stockage dans le Callovo Oxfordien jusqu’à l’homme,“ 2005.
- [10] —, „Dossier d’options de sureté : Partie exploitation,“ *Collection «Les rapports», Andra (France)*, 2015.
- [11] M. ANGELI, M. SOLDAL, E. SKURTVEIT et E. AKER, „Experimental percolation of supercritical CO<sub>2</sub> through a caprock,“ *Energy Procedia*, t. 1, n° 1, p. 3351-3358, 2009, Greenhouse Gas Control Technologies 9. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2009.02.123>.

- [12] J. AUTIO, P. GRIBI, L. JOHNSON et P. MARSCHALL, „Effect of excavation damaged zone on gas migration in a KBS-3H type repository at Olkiluoto,“ *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, t. 31, n° 10-14, p. 649-653, 2006.
- [13] V. BAROGHEL-BOUNY, „Water vapour sorption experiments on hardened cementitious materials : Part I : Essential tool for analysis of hygral behaviour and its relation to pore structure,“ *Cement and Concrete Research*, t. 37, n° 3, p. 414-437, 2007, Cementitious Materials as model porous media : Nanostructure and Transport processes. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2006.11.019>.
- [14] A. BATTISTELLI, D. SWENSON et A. ALCOTT, „Improved PetraSim-TOUGH2 capabilities for the simulation of Geothermal reservoirs,“ in *Proc of 42nd workshop on geothermal reservoir engineering, Stanford, California (USA)*, 2017.
- [15] A. BERIOZKIN et Y. MUALEM, „Comparative analysis of the apparent saturation hysteresis approach and the domain theory of hysteresis in respect of prediction of scanning curves and air entrapment,“ *Advances in Water Resources*, t. 115, p. 253-263, 2018.
- [16] P. F. BOULIN, P. BRETONNIER, V. VASSIL et al., „Sealing efficiency of caprocks : Experimental investigation of entry pressure measurement methods,“ *Marine and Petroleum Geology*, t. 48, p. 20-30, 2013.
- [17] P.-F. BOULIN, R. ANGULO-JARAMILLO, J.-F. DAIAN, J. TALANDIER et P. BERNE, „Experiments to estimate gas intrusion in Callovo-oxfordian argillites,“ *Phys. & Chem. of the Earth*, t. 33, S225-S230, 2008.
- [18] P. BOULIN, „Expérimentation et modélisation du transfert d'hydrogène à travers des argiles de centre de stockage de déchets radioactifs,“ thèse de doct., 2008.
- [19] R. BRADDOCK, J.-Y. PARLANGE et H. LEE, „Application of a soil water hysteresis model to simple water retention curves,“ *Transport in porous media*, t. 44, n° 3, p. 407-420, 2001.
- [20] J. BROMMUNDT, T. U. KAEMPFER, C. P. ENSSLE, G. MAYER et J. WENDLING, „Full-scale 3D modelling of a nuclear waste repository in the Callovo-Oxfordian clay. Part 1 : thermo-hydraulic two-phase transport of water and hydrogen,“ in *Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*, Geological Society of London, 2014. DOI : 10.1144/SP400.34.
- [21] R. BROOKS et T. COREY, „Hydraulic properties of porous media,“ *Hydrology Papers, Colorado State University*, t. 24, p. 37, 1964.
- [22] R. H. BROOKS et A. T. COREY, „Properties of porous media affecting fluid flow,“ *ASCE Journal of the Irrigation and Drainage division*, t. 92, n° 2, p. 61-90, 1966.
- [23] N. BURDINE, „Relative permeability calculations from pore size distribution data,“ *Journal of Petroleum Technology*, t. 5, n° 3, p. 71-78, 1953.
- [24] S. CARIOU, „Couplage hydro-mécanique et transfert dans l'argilite de Meuse/Haute-Marne : approches expérimentale et multi-échelle,“ thèse de doct., 2010.
- [25] J.-P. CARLIER, T. ROUGELOT et N. BURLION, „Evaluation comparative de modèles analytiques d'isothermes de sorption dans les matériaux cimentaires,“ in *Colloque Transfert*, 2012.



- [26]R. F. CARSEL et R. S. PARRISH, „Developing joint probability distributions of soil water retention characteristics,“ *Water resources research*, t. 24, n° 5, p. 755-769, 1988.
- [27]P. CHEN, C. WEI, J. WANG, H. WEI et T. MA, „Effect of Air Entrapment on Unsaturated Flow in Porous Media,“ in *Constitutive Modeling of Geomaterials*, Q. YANG, J.-M. ZHANG, H. ZHENG et Y. YAO, éd., Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2013, p. 399-407.
- [28]W. CHEN, „Etude expérimentale de la perméabilité du béton sous conditions thermiques et hydriques variables,“ thèse de doct., Ecole centrale de Lille, 2011.
- [29]W. CHEN, F. SKOCZYLAS et T. DUBOIS, „Gas relative permeability of highperformance concrete : effect of water saturation under phase desorption and sorption,“ in *Proceeding of International RILEM Conference on Advance in Construction Materials Through Science and Engineering*, t. 96, 2011.
- [30]A. CIHAN, J. BIRKHOEZER, L. TREVISAN, A. GONZALEZ-NICOLAS et T. ILLANGASEKARE, „Investigation of representing hysteresis in macroscopic models of two-phase flow in porous media using intermediate scale experimental data,“ *Water Resources Research*, t. 53, n° 1, p. 199-221, 2017.
- [31]F. COLLET, F. ACHCHAQ, K. DJELLAB, L. MARMORET et H. BEJI, „Water vapor properties of two hemp wools manufactured with different treatments,“ *Construction and Building Materials*, t. 25, n° 2, p. 1079-1085, 2011.
- [32]J. CROISÉ, A. VINSOT et D. NOY, „Osmotic flow and over pressures within the Callovo-Oxfordian argillite in the eastern part of the Paris Basin,“ in *Clays in Natural and Engineered barriers for Radioactive Waste Confinement. International Colloquy, 14-18 March 2005, Tours, France, Tours, France, 2005*.
- [33]A. CROUCHER, „PyTOUGH : a Python scripting library for automating TOUGH2 simulations,“ in *Proceedings*, 2011.
- [34]R. CUSS, J. HARRINGTON, R. GIOT et C. AUVRAY, „Experimental observations of mechanical dilation at the onset of gas flow in Callovo-Oxfordian claystone,“ *Geological Society, London, Special Publications*, t. 400, n° 1, p. 507-519, 2014. DOI : 10.1144/SP400.26.
- [35]J.-F. DAÏAN, „Equilibre et transferts en milieux poreux,“ 2013.
- [36]C. A. DAVY, F. SKOCZYLAS, J.-D. BARNICHON et P. LEBON, „Permeability of macro-cracked argillite under confinement : gas and water testing,“ *Physics & Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, t. 32, n° 8-14, p. 667-680, 2007.
- [37]R. DE LA VAISSIÈRE, „Interpretation of in-situ gas experiment PGZ1,“ t. FORGE Report D5.9 & D5.12 (06 December 2011), p. 1-64, 2011.
- [38]R. DE LA VAISSIÈRE, P. GERARD, J.-P. RADU et al., „Gas injection test in the Callovo-Oxfordian claystone : data analysis and numerical modelling,“ *Geological Society, London, Special Publications*, t. 400, n° 1, p. 427-441, 2014.
- [39]R. DE LA VAISSIÈRE, J. TALANDIER, G. ARMAND, M.-N. VU, F. H. CORNET et al., „From Two-Phase Flow to Gas Fracturing into Callovo-Oxfordian Claystone,“ in *53rd US Rock Mechanics/Geomechanics Symposium*, American Rock Mechanics Association, 2019.

- [40]A. DOSSIER, „Argile : Tome Architecture et Gestion du Stockage Géologique,“ *Andra, Paris*, 2005.
- [41]C. DOUGHTY, „User’s guide for hysteretic capillary pressure and relative permeability functions in TOUGH2,“ Lawrence Berkeley National Lab.(LBNL), Berkeley, CA (United States), rapp. tech., 2013.
- [42]C. DOUGHTY, „Modeling geologic storage of carbon dioxide : Comparison of non-hysteretic and hysteretic characteristic curves,“ *Energy Conversion and Management*, t. 48, n° 6, p. 1768-1781, 2007, Geologic Carbon Sequestration and Methane Hydrates Research from the TOUGH Symposium 2006. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2007.01.022>.
- [43]Z. DUAN, F. SKOCZYLAS, C. WANG et J. TALANDIER, „Hydric Cycle Impacts on CO<sub>x</sub> Argillite Permeability and Young’s Modulus,“ *Rock Mechanics and Rock Engineering*, t. 54, n° 3, p. 1129-1147, 2021.
- [44]M. DYMITROWSKA, F. SMAI et A. BOURGEAT, „Thermodynamic modelling of hydrogen migration in argillite for a deep geological radioactive waste repository : IRSN contribution to FORGE,“ *Geological Society, London, Special Publications*, t. 415, n° 1, p. 167-188, 2015. DOI : 10.1144/SP415.13.
- [45]S. ESCOFFIER, F. HOMAND, A. GIRAUD, N. HOTEIT et K. SU, „Under stress permeability determination of the Meuse/Haute-Marne mudstone,“ *Engineering Geology*, t. 81, n° 3, p. 329-340, 2005.
- [46]M. FENG et D. FREDLUND, „Hysteretic influence associated with thermal conductivity sensor measurements,“ in *Proceedings from Theory to the Practice of Unsaturated Soil Mechanics in Association with the 52nd Canadian Geotechnical Conference and the Unsaturated Soil Group, Regina, Sask*, t. 14, 1999, p. 14-20.
- [47]S. FINSTERLE, „Multiphase inverse modeling : Review and iTOUGH2 applications,“ *Vadose Zone Journal*, t. 3, n° 3, p. 747-762, 2004.
- [48]S. FINSTERLE, „iTOUGH2 user’s guide,“ *LBNL-40040*, p. 130, 1999.
- [49]S. FINSTERLE et M. B. KOWALSKY, „iTOUGH2-GSLIB user’s guide,“ *Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley CA*, [http://www-esd.lbl.gov/TOUGH+/manuals/iTOUGH2\\_GSLIB\\_Users\\_Guide.pdf](http://www-esd.lbl.gov/TOUGH+/manuals/iTOUGH2_GSLIB_Users_Guide.pdf), 2007.
- [50]T. FRIES, G. ANAGNOSTOU, L. CANTIENI et al., „Determination of the hydraulic properties of the Callovo-Oxfordian Clay by 3D numerical simulation of hydraulic tests at multi-meter scale,“ in *Book of Abstracts, Clay Conference c/o Nagra*, 2017, p. 199-201.
- [51]É. C. GAUCHER, P. BLANC, F. BARDOT et al., „Modelling the porewater chemistry of the Callovian–Oxfordian formation at a regional scale,“ *Comptes Rendus Geoscience*, t. 338, n° 12-13, p. 917-930, 2006.
- [52]P. GERARD, „Impact des transferts de gaz sur le comportement poro-mécanique des matériaux argileux,“ thèse de doct., Université de Liège, Belgique, 2011.
- [53]D. HADKA, *MOEA framework : a free and open source java framework for multiobjective optimization*, 2012.

- [54]M. HANNES, U. WOLLSCHLÄGER, T. WÖHLING et H.-J. VOGEL, „Revisiting hydraulic hysteresis based on long-term monitoring of hydraulic states in lysimeters,“ *Water Resources Research*, t. 52, n° 5, p. 3847-3865, 2016.
- [55]J. HARRINGTON, R. de LA VAISSIÈRE, D. NOY, R. CUSS et J. TALANDIER, „Gas flow in Callovo-Oxfordian claystone (COx) : results from laboratory and field-scale measurements,“ *Mineralogical Magazine*, t. 76, n° 8, p. 3303-3318, 2012.
- [56]J. F. HARRINGTON, R. J. CUSS et J. TALANDIER, „Gas transport properties through intact and fractured Callovo-Oxfordian mudstones,“ *Geological Society, London, Special Publications*, t. 454, n° 1, p. 131-154, 2017.
- [57]R. HAVERKAMP, P. REGGIANI, P. J. ROSS et J.-Y. PARLANGE, „Soil water hysteresis prediction model based on theory and geometric scaling,“ *Environmental mechanics : Water, mass and energy transfer in the biosphere*, t. 129, p. 213-246, 2002.
- [58]R. HAVERKAMP, M. VAUCLIN, J. TOUMA, P. J. WIERENGA et G. VACHAUD, „A comparison of numerical simulation models for one-dimensional infiltration,“ *Soil Science Society of America Journal*, t. 41, n° 2, p. 285-294, 1977.
- [59]M. HESSE et A. WOODS, „Buoyant dispersal of CO<sub>2</sub> during geological storage,“ *Geophysical Research Letters*, t. 37, n° 1, 2010.
- [60]D. HILLEL, *Soil and water : physical principles and processes*. Elsevier, 2012.
- [61]H. M. HOCHMAN et J. D. RODGERS, „Pareto optimal redistribution,“ *The American economic review*, p. 542-557, 1969.
- [62]H.-C. HUANG, Y.-C. TAN, C.-W. LIU et C.-H. CHEN, „A novel hysteresis model in unsaturated soil,“ *Hydrological Processes : An International Journal*, t. 19, n° 8, p. 1653-1665, 2005.
- [63]O. IPPISCH, H.-J. VOGEL et P. BASTIAN, „Validity limits for the van Genuchten–Mualem model and implications for parameter estimation and numerical simulation,“ *Advances in Water Resources*, t. 29, n° 12, p. 1780-1789, 2006.
- [64]F. IRISARRI, „Stratégies de calcul pour L’optimisation multiobjectif des structures composites. 274p,“ thèse de doct., Ph. D. thesis, Université de Toulouse III–Paul Sabatier, Toulouse, France, 2009.
- [65]IRSN, *Radioactive waste management. Collecting, sorting, treating, conditioning, storing and disposing safely radioactive waste*, 2013.
- [66]W. JACQUES, *Final Report on Benchmark Studies on Repository-scale Numerical Simulations of Gas Migration : Part 2 : module Scale Benchmark*. 2013.
- [67]P. JC et L. RJ, „A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow : 1. Saturation-pressure relations,“ *Water Resources Research*, t. 23, n° 12, p. 2187-2196, 1987.
- [68]J. J. KALUARACHCHI et J. PARKER, „Multiphase flow with a simplified model for oil entrapment,“ *Transport in porous media*, t. 7, n° 1, p. 1-14, 1992.

- [69]D. KALYANMOY, A. PRATAP, S. AGARWAL et T. MEYARIVAN, „A fast and elitist multiobjective genetic algorithm : NSGA-II,“ *IEEE transactions on evolutionary computation*, t. 6, n° 2, p. 182-197, 2002.
- [70]L. KLINKENBERG, „The permeability of porous media to liquids and gases,“ in *Drilling and production practice*, OnePetro, 1941.
- [71]S. C. KREVER, R. PINI, B. LI et S. M. BENSON, „Capillary heterogeneity trapping of CO<sub>2</sub> in a sandstone rock at reservoir conditions,“ *Geophysical Research Letters*, t. 38, n° 15, 2011.
- [72]K. KUTSCHER, M. GEIER et M. KRAFCZYK, „Multiscale simulation of turbulent flow interacting with porous media based on a massively parallel implementation of the cumulant lattice Boltzmann method,“ *Computers & Fluids*, t. 193, n° 103733, 2019.
- [73]R. de LA VAISSIÈRE et J. TALANDIER, „Gas Entry Pressure in Callovo-Oxfordian Claystone : in situ Experiment PGZ1,“ in *Actes du Colloque National Transfert 2012/workshop organised in the framework of the EU FP7 project FORGE, Ecole Centrale de Lille/LML, 20-22 March*, 2012.
- [74]R. de LA VAISSIÈRE, J. TALANDIER, G. ARMAND, M.-N. VU, F. H. CORNET et al., „From Two-Phase Flow to Gas Fracturing into Callovo-Oxfordian Claystone,“ in *53rd US Rock Mechanics/Geomechanics Symposium*, American Rock Mechanics Association, 2019.
- [75]C. S. LAND, „Calculation of imbibition relative permeability for two-and three-phase flow from rock properties,“ *Society of Petroleum Engineers Journal*, t. 8, n° 02, p. 149-156, 1968.
- [76]S. LAUTRETTE, „Utilisation des fibres de carbone activé comme catalyseurs de O-et N-glycosylation : Application à la synthèse d’analogues de saponines et de nucléosides,“ thèse de doct., Limoges, 2004.
- [77]R. LENHARD, „Measurement and modeling of three-phase saturation-pressure hysteresis,“ *Journal of Contaminant Hydrology*, t. 9, n° 3, p. 243-269, 1992. DOI : [https://doi.org/10.1016/0169-7722\(92\)90007-2](https://doi.org/10.1016/0169-7722(92)90007-2).
- [78]R. LENHARD et J. PARKER, „A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow : 2. Permeability-saturation relations,“ *Water Resources Research*, t. 23, n° 12, p. 2197-2206, 1987.
- [79]R. LENHARD, J. PARKER, M. T. GENUCHTEN, F. LEIJ et L. LUND, „Modeling multiphase fluid hysteresis and comparing results to laboratory investigations,“ in *Proc. Intl. Workshop on Indirect Methods for Estimating the Hydraulic Properties of Unsaturated Soils*, edited by M. Th van Genuchten, FJ Leij, and LJ Lund, University of California, Riverside, 1992, p. 233-248.
- [80]R. LENHARD, J. PARKER et J. J. KALUARACHCHI, „Comparing simulated and experimental hysteretic two-phase transient fluid flow phenomena,“ *Water Resources Research*, t. 27, n° 8, p. 2113-2124, 1991.
- [81]R. LENHARD, J. PARKER et J. J. KALUARACHCHI, „A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow : 3. Refinements and numerical simulations,“ *Water Resources Research*, t. 25, n° 7, p. 1727-1736, 1989.

- [82]X. LI, „Modelling of hysteresis response for arbitrary wetting/drying paths,“ *Computers and Geotechnics*, t. 32, n° 2, p. 133-137, 2005. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.compgeo.2004.12.002>.
- [83]M.-F. LIBERT, L. ESNAULT et D. FÉRON, „Biocorrosion en conditions de stockage géologique de déchets radioactifs,“ *Matériaux Techniques*, t. 99, p. 581-589, 2011. DOI : 10.1051/mattech/2011112.
- [84]Y. LINS, Y. ZOU et T. SCHANZ, „Physical Modeling of SWCC for Granular Materials,“ in *Theoretical and Numerical Unsaturated Soil Mechanics*, T. SCHANZ, éd., Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2007, p. 61-74.
- [85]J. LIU, „Etude expérimentale de la perméabilité relative des matériaux cimentaires et simulation numérique du transfert d'eau dans le béton,“ thèse de doct., 2011.
- [86]J. LIU, „Etanchéité de l'interface argilite-bentonite re-saturée et soumise à une pression de gaz, dans le contexte du stockage profond de déchets radioactifs,“ thèse de doct., 2013.
- [87]L. LUCKNER, M. T. VAN GENUCHTEN et D. R. NIELSEN, „A consistent set of parametric models for the two-phase flow of immiscible fluids in the subsurface,“ *Water Resources Research*, t. 25, n° 10, p. 2187-2193, 1989.
- [88]K. LUU, „toughio : Pre-and post-processing Python library for TOUGH,“ *Journal of Open Source Software*, t. 5, n° 51, p. 2412, 2020.
- [89]T. MAISON, „Analyse à l'échelle microscopique des phénomènes d'humectation et de dessiccation des argiles,“ thèse de doct., 2011.
- [90]P. MARSCHALL, S. HORSEMAN et T. GIMMI, „Characterisation of gas transport properties of the Opalinus Clay, a potential host rock formation for radioactive waste disposal,“ *Oil & gas science and technology*, t. 60, n° 1, p. 121-139, 2005.
- [91]H. MENACEUR, „Comportement thermo-hydro-mécanique et microstructure de l'argilite du Callovo-Oxfordien,“ thèse de doct., Paris Est, 2014.
- [92]S. MJAHAD, C. A. DAVY, F. SKOCZYLAS et J. TALANDIER, „Characterization of transport and water retention properties of damaged Callovo-Oxfordian claystone,“ *Geological Society, London, Special Publications*, t. 443, p. 159-177, 2017.
- [93]S. MJAHAD, „Impact de la fissuration sur les propriétés de rétention d'eau et de transport de gaz des géomatériaux : Application au stockage géologique des déchets radioactifs,“ thèse de doct., 2012.
- [94]Y. MUALEM et A. BERIOZKIN, „General scaling rules of the hysteretic water retention function based on Mualem's domain theory,“ *European journal of soil science*, t. 60, n° 4, p. 652-661, 2009.
- [95]Y. MUALEM, „A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media,“ *Water Resources Research*, t. 12, n° 3, p. 513-522, 1976.
- [96]Y. MUALEM, „A conceptual model of hysteresis,“ *Water Resources Research*, t. 10, n° 3, p. 514-520, 1974.

- [97]A. NIEMI et G. BODVARSSON, „Preliminary capillary hysteresis simulations in fractured rocks, Yucca Mountain, Nevada,“ *Journal of Contaminant Hydrology*, t. 3, n° 2, p. 277-291, 1988, Rapid and Far-Reaching Hydrologic Processes in the Vadose Zone. DOI : [https://doi.org/10.1016/0169-7722\(88\)90036-8](https://doi.org/10.1016/0169-7722(88)90036-8).
- [98]J. PARKER, R. LENHARD et T. KUPPUSAMY, „A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media,“ *Water Resources Research*, t. 23, n° 4, p. 618-624, 1987.
- [99]J. PARKER et R. LENHARD, „A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow : 1. Saturation-pressure relations,“ *Water Resources Research*, t. 23, n° 12, p. 2187-2196, 1987.
- [100]J.-Y. PARLANGE, „Capillary hysteresis and the relationship between drying and wetting curves,“ *Water Resources Research*, t. 12, n° 2, p. 224-228, 1976.
- [101]C. H. PENTLAND, E. ITSEKIRI, S. K. AL MANSOORI et al., „Measurement of nonwetting-phase trapping in sandpacks,“ *Spe Journal*, t. 15, n° 02, p. 274-281, 2010.
- [102]H. Q. PHAM, D. G. FREDLUND et S. L. BARBOUR, „A study of hysteresis models for soil-water characteristic curves,“ *Canadian Geotechnical Journal*, t. 42, n° 6, p. 1548-1568, 2005.
- [103]Q. T. PHAM, „Effets de la désaturation et de la resaturation sur l’argilite dans les ouvrages souterrains,“ thèse de doct., Ecole Polytechnique X, 2006.
- [104]Q. T. PHAM, F. VALES, L. MALINSKY, D. N. MINH et H. GHARBI, „Effects of desaturation–resaturation on mudstone,“ *Physics and Chemistry of The Earth*, t. 32, p. 646-655, 2007.
- [105]J. R. PHILIP, „The theory of infiltration : 1. The infiltration equation and its solution,“ *Soil science*, t. 83, n° 5, p. 345-358, 1957.
- [106]A. POULOVASSILIS et E. CHILDS, „The hysteresis of pore water : The non-independence of domains,“ *Soil Science*, t. 112, n° 5, p. 301-312, 1971.
- [107]A. POULOVASSILIS et G. KARGAS, „A note on calculating hysteretic behavior,“ *Soil Science Society of America Journal*, t. 64, n° 6, p. 1947-1950, 2000.
- [108]A. POULOVASSILIS, „HYSTERESIS OF PORE WATER, AN APPLICATION OF THE CONCEPT OF INDEPENDENT DOMAINS,“ *Soil Science*, t. 93, p. 405-412, 1962.
- [109]F. PREISACH, „Über die magnetische Nachwirkung,“ *Zeitschrift für physik*, t. 94, n° 5-6, p. 277-302, 1935.
- [110]„Projet de stockage Cigéo-Examen du Dossier d’Options de Sûreté,“ rapp. tech., 2017.
- [111]K. PRUESS, C. OLDENBURG et G. MORIDIS, „TOUGH2 user’s guide, version 2.0 (revised),“ *Report no LBNL-43134. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA*, 2011.
- [112]K. PRUESS, C. M. OLDENBURG et G. J. MORIDIS, „TOUGH2 user’s guide version 2,“ 1999.
- [113]K. PRUESS, A. SIMMONS, Y.-S. WU et G. J. MORIDIS, „TOUGH2 software qualification,“ 1996.



- [114]Y. QIAO, A. TUTTOLOMONDO, X. LU, L. LALOUÏ et W. DING, „A generalized water retention model with soil fabric evolution,“ *Geomechanics for Energy and the Environment*, t. 25, p. 100-205, 2021.
- [115]B. RAEESI, N. R. MORROW et G. MASON, „Capillary pressure hysteresis behavior of three sandstones measured with a multistep outflow–inflow apparatus,“ *Vadose Zone Journal*, t. 13, n° 3, 2014.
- [116]J.-C. ROBINET, „Minéralogie, porosité et diffusion des solutés dans l’argilite du Callovo-Oxfordien de Bure (Meuse, Haute-Marne, France) de l’échelle centimétrique à micrométrique,“ thèse de doct., Poitiers, 2008.
- [117]J. RUBIN, „Numerical method for analyzing hysteresis-affected, post-infiltration redistribution of soil moisture,“ *Soil Science Society of America Journal*, t. 31, n° 1, p. 13-20, 1967.
- [118]Z. SAÂDI, M. DYMITROWSKA, F. DELERUYELLE et F. MARSAL, „An evaluation model of the impact of hydrogen ‘piston effect’ on water displacement in a deep geological disposal of radioactive waste,“ *Environmental Earth Sciences*, t. 79, n° 18, p. 1-18, 2020.
- [119]P. SCOTT, „Hysteretic effects on net infiltration,“ *Advances in infiltration*, p. 163-170, 1983.
- [120]M. L. SENTIS, „Two-phase flow modeling with TOUGH2-MP of a deep geological repository within the first benchmark of the FORGE project,“ *Nuclear Technology*, t. 187, n° 2, p. 117-130, 2014.
- [121]Y. SONG, C. DAVY, B. P. et D. TROADEC, „Understanding fluid transport through claystones from their 3D nanoscopic pore network,“ *Microporous and Mesoporous Materials*, t. 228, p. 64-85, 2016.
- [122]Y. SONG, C. DAVY, D. TROADEC et al., „Multi-scale pore structure of CO<sub>x</sub> claystone : Towards the prediction of fluid transport,“ *Marine and Petroleum Geology*, t. 65, p. 63-82, 2015.
- [123]Y. SONG, „Rétention d’eau et microstructure fine de l’argilite de Bure,“ thèse de doct., Ecole centrale de Lille, 2014.
- [124]D. B. STEPHENS et K. R. REHFELDT, „Evaluation of closed-form analytical models to calculate conductivity in a fine sand,“ *Soil Science Society of America Journal*, t. 49, n° 1, p. 12-19, 1985.
- [125]K. SUZANNE, G. HAMON, J. BILLIOTTE, V. TROCME et al., „Experimental relationships between residual gas saturation and initial gas saturation in heterogeneous sandstone reservoirs,“ in *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*, Society of Petroleum Engineers, 2003.
- [126]J. TALANDIER, *Couplex-Gaz Benchmark Synthesis of results for case*, 2007.
- [127]V. TERLEEÏ, W. MIRSCHEL, A. NIKONOROV et al., „Five models of hysteretic water-retention capacity and their comparison for sandy soil,“ t. 193, p. 02-036, 2018.
- [128]G. TOPP, A. KLUTE et D. PETERS, „Comparison of water content-pressure head data obtained by equilibrium, steady-state, and unsteady-state methods,“ *Soil Science Society of America Journal*, t. 31, n° 3, p. 312-314, 1967.

- [129]L. TREVISAN, A. CIHAN, F. FAGERLUND et al., „Investigation of mechanisms of supercritical CO<sub>2</sub> trapping in deep saline reservoirs using surrogate fluids at ambient laboratory conditions,” *International Journal of Greenhouse Gas Control*, t. 29, p. 35-49, 2014.
- [130]N. K. TWARAKAVI, H. SAITO, J. ŠIMUNEK et M. T. van GENUCHTEN, „A new approach to estimate soil hydraulic parameters using only soil water retention data,” *Soil Science Society of America Journal*, t. 72, n° 2, p. 471-479, 2008.
- [131]M. T. VAN GENUCHTEN, „A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils 1,” *Soil science society of America journal*, t. 44, n° 5, p. 892-898, 1980.
- [132]M. T. VAN GENUCHTEN, F. J. LEIJ et S. YATES, „The RETC code for quantifying the hydraulic functions of unsaturated soils,” 1991.
- [133]A. VINSOT, S. METTLER et W. S., „In situ characterization of the Callovo-Oxfordian pore water composition,” *Physics and Chemistry of the Earth (Parts A/B/C, Vol. 33, Supplement 1)*, t. 33, n° 1, S75-S86, 2008.
- [134]T. VOGEL, M. T. VAN GENUCHTEN et M. CISLEROVA, „Effect of the shape of the soil hydraulic functions near saturation on variably-saturated flow predictions,” *Advances in Water Resources*, t. 24, n° 2, p. 133-144, 2000.
- [135]H. M. WAINWRIGHT et S. FINSTERLE, „Global Sensitivity and Data-Worth Analyses in iTOUGH2 : User’s Guide,” Lawrence Berkeley National Lab.(LBNL), Berkeley, CA (United States), rapp. tech., 2016.
- [136]M. WAN, P. DELAGE, A. M. TANG et J. TALANDIER, „Water retention properties of the Callovo-Oxfordian claystone,” *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, t. 64, p. 96-104, 2013. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2013.08.020>.
- [137]H. WANG, W. XU, M. CAI et J. ZUO, „An experimental study on the slippage effect of gas flow in a compact rock,” *Transport in Porous Media*, t. 112, p. 117-137, 1 2016.
- [138]J. WENDLING, *Final Report on Benchmark Studies on Repository-scale Numerical Simulations of Gas Migration : Part 1 : Cell Scale Benchmark*. 2014.
- [139]J. WENDLING, D. JUSTINAVICIUS, M. SENTIS et al., „Gas transport modelling at different spatial scales of a geological repository in clay host rock,” *Environmental Earth Sciences*, t. 78, n° 6, p. 1-16, 2019.
- [140]A. C. WISEALL, R. J. CUSS, C. C. GRAHAM et J. F. HARRINGTON, „The visualization of flow paths in experimental studies of clay-rich materials,” *Mineralogical Magazine*, t. 79, n° 6, p. 1335-1342, 2015.
- [141]M. YECHYZKEL, „A modified dependent-domain theory of hysteresis,” *Soil science*, t. 137, n° 5, p. 283-291, 1984.
- [142]H. YUAN, „Caractérisation expérimentale de propriétés poromécaniques et de transfert de l’argilite du CO<sub>x</sub>,” thèse de doct., Ecole Centrale de Lille, Génie Civil, Laboratoire de Mécanique de Lille, France, 2017, p. 1-125.



- [143]H. YUAN, F. AGOSTINI, Z. DUAN, F. SKOCZYLAS et J. TALANDIER, „Measurement of Biot’s coefficient for COx argillite using gas pressure technique,“ *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, t. 92, p. 72-80, 2017.
- [144]B. YVEN, S. SAMMARTINO, Y. GERAUD, F. HOMAND et F. VILLIERAS, „Mineralogy, texture and porosity of Callovo-Oxfordian argillites of the Meuse/Haute-Marne region (eastern Paris Basin),“ *Mémoires de la Société géologique de France*, t. 178, n° 1, p. 73-90, 2007.
- [145]C. ZHANG, O. CZAIKOWSKI et T. ROTHFUCHS, „Thermo-Hydro-Mechanical Behaviour of the Callovo-Oxfordian Clay Rock–Final report of the BURE-HAUPT,“ *EC-TIMODAZ project, GRS-266*, 2010.
- [146]Z. ZHANG, „Modelling of sorption hysteresis and its effect on moisture transport within cementitious materials,“ thèse de doct., Paris Est, 2014.
- [147]Z. ZHANG, M. THIÉRY et V. BAROGHEL-BOUNY, „A review and statistical study of existing hysteresis models for cementitious materials,“ *Cement and Concrete Research*, t. 57, p. 44-60, 2014. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2013.12.008>.
- [148]B. ZHAO, C. W. MACMINN, H. E. HUPPERT et R. JUANES, „Capillary pinning and blunting of immiscible gravity currents in porous media,“ *Water Resources Research*, t. 50, n° 9, p. 7067-7081, 2014.

