



HAL
open science

Modélisation du transport par advection diffusion couplé à une réaction de dissolution dans les milieux poreux

Noubough Alhaj Sleiman

► To cite this version:

Noubough Alhaj Sleiman. Modélisation du transport par advection diffusion couplé à une réaction de dissolution dans les milieux poreux. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. INSA de Rennes, 2023. Français. NNT : 2023ISAR0032 . tel-04791499

HAL Id: tel-04791499

<https://theses.hal.science/tel-04791499v1>

Submitted on 19 Nov 2024

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

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

THESE DE DOCTORAT DE

L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES
APPLIQUEES RENNES

ECOLE DOCTORALE N° 602
Sciences pour l'Ingénieur
Spécialité : « Génie-Civil »

Par

« Noubough ALHAJ SLEIMAN »

**« Modélisation du transport par advection diffusion couplé à une
réaction de dissolution dans les milieux poreux »**

Thèse présentée et soutenue à Rennes, le 21/02/2023
Unité de recherche : Laboratoire de Génie Civil et Génie Mécanique
Thèse N° : 23ISAR 05 / D23 - 05

Rapporteurs avant soutenance :

Monsieur Aurelian FATU Professeur, Université de Poitiers – IUT Angoulême
Monsieur Abdelghani SAOUAB Professeur, Université Le Havre Normandie

Composition du Jury :

Madame Azita AHMADI SENICHAULT Professeure à l'ENSAM Bordeaux
Monsieur Aurelian FATU Professeur à l'IUT d'Angoulême
Monsieur Abdelghani SAOUAB Professeur à l'Université du Havre
Monsieur Khaled BOURBATACHE Maître de Conférences INSA Rennes
Monsieur Franck LOMINÉ Maître de Conférences INSA Rennes
Monsieur Mustapha HELLOU Professeur INSA Rennes (Directeur de thèse)

Abstract

In this work, a numerical code based on the Lattice Boltzmann Method (LBM) was implemented in PARallel LAttice Boltzman Solver (PALABOS) to study the geometry changes induced by the dissolution of a mineral during mass transport in different types of porous media. For this purpose, different reactive boundary conditions were analysed and tested in order to build an appropriate numerical model.

This model was implemented and validated by comparing the results obtained with previous studies. We first simulated the geometries of a single fracture and an elementary cell with circular inclusion. The simulations were performed for a wide range of transport and reaction regimes with varying Péclet (Pe) and Damköhler (Da) numbers. The results show non-uniform deformations in both cases during dissolution. They also show that the evolution of the macroscopic properties of the medium is strongly related to the dissolution regime. For the circular inclusion the anisotropy was quantified by the tortuosity tensor. We extended the medium to a sequential repetition of several elementary cells and then to random and complex media. The results show that the evolution of the macroscopic properties of the medium is related not only to the dissolution regime but also to its geometry at the pore scale. We observe also the dissolution regimes uniform, channelled, frontal, ramified dissolution according to Pe and Da numbers.

Résumé

Dans ce travail, un code de calcul basé sur la Lattice Boltzmann Method (LBM) a été implémenté dans PARallel LAttice Boltzman Solver (PALABOS) pour étudier les changements de géométrie induits par la dissolution d'un minéral lors du transport de masse dans différents types de milieux poreux. Pour ce faire, différentes conditions aux limites réactives ont été analysées et testées afin de construire un modèle approprié.

Ce modèle a été implémenté et validé en comparant les résultats obtenus avec les résultats de la littérature. Ainsi, on a d'abord simulé la dissolution d'une fracture simple et une inclusion circulaire. Les simulations ont été réalisées pour une large gamme de régime de transport et de réaction en variant les nombres Péclet (Pe) et Damköhler (Da). Les résultats montrent des changements de géométrie non-uniformes dans les deux cas pendant la dissolution. Ils montrent aussi que l'évolution des propriétés macroscopiques du milieu est fortement liée au régime de dissolution. Pour l'inclusion circulaire l'anisotropie a été quantifiée par le tenseur de tortuosité. L'étude est étendue au transport réactif dans un milieu à répétition séquentielle de plusieurs cellules élémentaires puis à des milieux aléatoires et complexes. Les résultats montrent que l'évolution des propriétés du milieu, telles que la porosité, la perméabilité et la tortuosité, est liée non seulement au régime de dissolution mais aussi à sa géométrie à l'échelle des pores. On observe également les régimes de dissolution uniforme, canalisée, frontale, ramifiée selon les valeurs des nombres adimensionnels Pe et Da .

Remerciements

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde et très sincère reconnaissance à l'équipe d'encadrement de m'avoir initiée au monde de la recherche. Je remercie infiniment Monsieur Mustapha Hellou, Professeur (HDR) à l'INSA de Rennes et directeur de ma thèse, pour m'avoir proposé ce sujet et en avoir dirigé les travaux. J'exprime également toute ma gratitude à Messieurs Franck Lominé et Khaled Bourbatche, Maîtres de Conférences à l'INSA de Rennes, pour avoir encadrer l'ensemble de ces travaux de recherche ainsi que pour leurs idées et discussions scientifiques pertinentes. Je tiens à exprimer ma gratitude à tous les trois pour la confiance qu'ils m'ont accordée pendant ces quatre années, pour leur disponibilité totale et pour m'avoir fait bénéficier de leur expérience, de leurs conseils et de leur critiques constructives.

Je tiens à remercier Franck Lominé, pour ses efforts continus dans le domaine, en particulier sur le coté numériques (code) utilisé dans le cadre de ma thèse. J'ai énormément appris grâce à sa rigueur et à sa passion pour le travail accompli. Il m'a permis d'acquérir des compétences clés, tant sur le plan personnel que professionnel, qui me seront utiles tout au long de ma carrière.

Je tiens à remercier Khaled Bourbatche, pour son engagement constant et son suivi attentif de mes travaux de recherche tout au long de ma thèse. Je tiens à le remercier tout particulièrement pour sa patience et sa facilité de communication, qui ont été essentielles à la réussite de mon projet. Outre son expertise dans le domaine, il a toujours pu suggérer de nouvelles approches pour résoudre les problèmes et m'orienter dans la bonne direction lorsque j'ai rencontré des difficultés. Au fil du temps et durant ce long parcours, j'ai pu voir son côté humain, gentil, humble, serviable, tolérant... Il a toujours été présent pour me motiver, m'a offert son temps et son attention, et m'a encouragé à persévérer dans mes efforts.

Mes remerciements vont également aux membres du jury qui m'ont attribué le grade de docteur. Je remercie Messieurs Aurelian Fatu et Abdelghani Saouab d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse. Merci pour le temps que vous avez consacré pour lire et juger mes travaux. Je remercie également très chaleureusement Madame Azita Ahmadi Senichault pour avoir présidé et fait partie de mon jury. Sa participation a été d'une grande valeur pour moi et

j'ai apprécié ses commentaires et ses suggestions. Je suis reconnaissant envers tous les membres du jury pour leur évaluation minutieuse de mon travail, qui ont contribué à son amélioration et à sa validation et qui ont mis en évidence de nouvelles interactions possibles avec d'autres domaines.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude envers Messieurs Nicolas Lecoq et Remi Marsac, les membres du comité de suivi de travail de thèse, pour leur contribution à mon parcours doctoral. Leurs conseils avisés et leur implication dans mes recherches m'ont permis de progresser dans mon travail de thèse.

Je remercie tous les membres du Laboratoire de Génie Civil et Génie Mécanique (LGCGM). Je remercie les secrétaires et les membres de l'école doctorale pour leur aide dans les démarches administratives.

Un grand merci à tous mes amis doctorants. Je vous souhaite tous le meilleur pour la suite. Une pensée particulière va à Sokohou Josué Yokopi. Au-delà de son soutien moral, je le remercie chaleureusement pour tous ces moments de travail, de détente et de fous rires que nous avons partagés. Sa présence a été précieuse pour moi, car il m'a permis de décompresser et de me ressourcer lors de moments difficiles. Grâce à cette ambiance conviviale que nous avons, j'étais encore plus motivée pour donner le meilleur de moi-même.

Je remercie mes camarades avec qui j'ai partagé tant de bons moments pendant ces années en France. La rencontre avec de nombreux collègues et amis du monde entier a été une expérience enrichissante qui restera gravée dans ma mémoire. Je tiens particulièrement à remercier la communauté libanaise à Rennes et Montpellier, avec qui j'ai partagé des moments inoubliables.

Je tiens à exprimer ma sincère gratitude à Dominique Foure, qui a été une présence inestimable pour moi tout au long de mon séjour à Rennes. Sa présence et son soutien indéfectible ont été une source de réconfort et de motivation pour moi durant la thèse. Je suis heureuse de l'avoir rencontrée et d'avoir eu la chance de travailler à ses côtés. Merci beaucoup, Dominique.

Je tiens aussi à remercier mes meilleurs amis, Mariam El Hassan, Tony Abou Zeindan et Marwa Alaaedine, qui ont été présents à mes côtés tout au long de ma thèse et qui ont contribué à alléger les moments difficiles. Leur soutien inconditionnel et leur amitié précieuse ont été un pilier important de ma réussite, et je leur en suis profondément reconnaissant.

Enfin, je tiens à exprimer mes remerciements les plus profonds à ma chère famille. Je remercie chaleureusement mon père et ma mère Bassel et Jamila pour leur soutien quotidien tout au long de mes études, leur appui et leur encouragement. Je vous remercie pour m'avoir

transmis le goût de la science, du travail et de la persévérance. Je remercie également mes chères soeurs Ghaya et Hanine, mes confidentes pour tous les moments qu'on a vécu ensemble. Elles m'ont toujours apporté tout le support indispensable dans toutes les phases difficiles de ma vie. Merci surtout de m'accepter tel que je suis, d'accepter les heures de colère, de fatigue, de stress...

Merci de m'avoir fait confiance et d'avoir toujours cru en moi. Vos encouragements m'ont toujours donné la force de continuer et de devenir la personne que je suis aujourd'hui.

Voici un chapitre de ma vie qui se clôt, je commence le suivant...

Table des matières

Table des figures	xv
Liste des tableaux	xxi
Liste de Symboles	xxiii
Introduction	1
Contexte général	1
Problématique scientifique	2
Objectifs	5
Organisation du manuscrit	6
1 L'état de l'art sur la modélisation du transport de masse réactif dans les milieux poreux	7
1.1 Introduction	8
1.2 Milieux poreux	9
1.2.1 Différentes échelles de description	9
1.2.2 Caractéristiques des milieux poreux	10
1.3 Formulation mathématique du transport réactif	11
1.3.1 Ecoulement du fluide	11
1.3.2 Transport de masse	12
1.3.3 Réactions chimiques	14
1.4 Méthode de Boltzmann sur réseau pour un écoulement	17
1.4.1 Equation de transport de Boltzmann	18
1.4.2 Equation de Boltzmann sur réseau	19
1.4.3 Opérateur de collision	21
1.4.4 Fonction d'équilibre	25

1.4.5	Conditions aux limites	26
1.5	Méthode de Boltzmann sur réseau pour le transport réactif	33
1.5.1	Équation de Boltzmann sur réseau pour le transport réactif d'une seule composante	33
1.5.2	Choix de la fonction de distribution d'équilibre	34
1.5.3	Choix du réseau	34
1.5.4	Conditions aux limites pour le transport réactif	35
1.6	Evolution de la microstructure	38
1.7	Conclusion	40
2	Développement d'un modèle de transport réactif avec la méthode Lattice Boltzmann	43
2.1	Introduction	44
2.2	Implémentation du modèle dans Palabos	44
2.2.1	Choix des paramètres et des unités de simulation	45
2.2.2	Description de l'algorithme	46
2.3	Validations du modèle de transport réactif	49
2.3.1	Écoulement de Poiseuille	49
2.3.2	Diffusion en régime transitoire	54
2.3.3	Diffusion et réaction chimique	55
2.3.4	Evolution de la microstructure	62
2.4	Conclusion	81
3	Modélisation des changements de microstructures dans des milieux poreux	83
3.1	Introduction	84
3.2	Différents types de tortuosité	85
3.3	Dissolution d'une inclusion circulaire	87
3.3.1	Etude de l'influence de la résolution spatiale et des conditions aux limites sur les résultats de la dissolution	88
3.3.2	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation perméabilité – porosité.	92
3.3.3	Evolution de la morphologie au cours de la dissolution	94
3.3.4	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation tortuosité – porosité.	97
3.4	Dissolution d'un milieu poreux périodique	101

3.4.1	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation perméabilité – porosité	103
3.4.2	Evolution de la morphologie au cours de la dissolution	104
3.4.3	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation surface spécifique – porosité	106
3.4.4	Suivi temporel de l'évolution des inclusions circulaires cellule par cellule	109
3.5	Dissolution des milieux poreux aléatoires	111
3.5.1	Génération des milieux poreux	111
3.5.2	Effet du caractère aléatoire de la structure poreuse sur les propriétés du milieu poreux	112
3.6	Transport réactif dans les milieux complexes	115
3.7	Conclusion	119
	Conclusion générale et perspectives	121
	A La loi de distribution des vitesses de Maxwell	127
	B Lien entre l'équation de lattice Boltzmann et l'équation d'advection diffusion	131
	Bibliographie	137

Table des figures

1	Schématisation d'un milieu poreux à différentes échelles	3
1.1	L'ordre de déroulement des processus physico-chimiques	8
1.2	Schématisation d'un milieu poreux à différentes échelles	10
1.3	Déplacement de la particule sous l'effet \mathbf{F}	18
1.4	Réseaux D2Q5 et D2Q9 et D3Q15	20
1.5	Cycle LBM : schéma collision-propagation	24
1.6	Schéma des fonctions de distribution inconnues dans le cadre d'un réseau D2Q9	27
1.7	Discrétisation du domaine de simulation	28
1.8	Représentation du "Full way bounce-back" et "Half way bounce-back" en fonction du temps	29
1.9	Schématisation d'une frontière courbe et des nœuds du réseau. Les nœuds de fluide sont illustrés par des cercles bleu, les nœuds de frontière par des cercles noirs et les nœuds solides par des carrés marron	37
1.10	A gauche une interface marquée et à droite une interface diffuse. Le champ scalaire désigne l'indicateur qui représente l'épaisseur de l'interface	38
1.11	Schéma des volumes de contrôle dans un domaine. La fraction volumique du solide $\epsilon = 0$ pour le fluide, $\epsilon = 1$ pour le solide et varie sur les nœuds d'interface solide-liquide	39
2.1	Algorithme complet pour résoudre le problème de transport réactif	48
2.2	Schématisation d'un écoulement de Poiseuille et des conditions aux limites associées	50
2.3	Comparaison des profils de vitesses numériques de la LBM et la solution analy- tique pour un écoulement de Poiseuille à différents instants	51
2.4	(a) profils de vitesse normalisés par la vitesse maximale pour différents nombres de Re. (b) Erreur relative en fonction du nombre de Reynolds	53
2.5	Profils de vitesse (a) et de pression (b) pour différents types de conditions aux limites à l'entrée et à la sortie du canal	53

2.6	Comparaison des profils de concentration numériques et analytiques à différents instants	56
2.7	Solution analytique (lignes solides) et solution LBM (lignes pointillées avec marqueurs circulaires) pour une réaction d'entrée traitée par la condition de Meng pour différentes valeurs de Da et t . Dans tous les cas, $\frac{C_{eq}}{C_{ref}} = 1$, $C_0 = 0$ et $\tau_g^* = 1$	58
2.8	Comparaison de l'erreur relative (à $x = 0$) sur l'échelle logarithmique pour différents schémas de conditions aux limites avec $Da = 5$ et $\tau_g^* = 1$	59
2.9	Présentation du schéma du milieu simulé, des conditions aux limites et des paramètres utilisées dans la diffusion-réaction	60
2.10	Comparaison des contours de concentration numérique des trois traitements de la réaction en LBM par rapport au contour analytique pour le cas diffusion-réaction	60
2.11	Schématisation de la dissolution d'une couche de calcite	62
2.12	Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps pour différents C_{eq} avec $k = 10^{-2.05}[\text{m s}^{-1}]$. A gauche la variation de la position de l'interface en fonction de temps et à droite celle de concentration en fonction de la variations de la position	64
2.13	Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps due à la dissolution pour différentes valeurs du nombre de Damköhler Da avec $C_{eq} = 0.75 C_{ref}$	66
2.14	Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps due à la précipitation pour différents valeur de C_{eq} avec $k = 10^{-2.05}[\text{m s}^{-1}]$	67
2.15	Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps due à la précipitation pour différents valeur de Damköhler avec $C_{eq} = 0.75 C_{ref}$	68
2.16	Schématisation du milieu à fracture simple et des conditions aux limites	69
2.17	Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour $Pe = 5$ et $Da = 0.001$	72
2.18	Aperçu de l'évolution de la pression et de la morphologie en fonction de l'avancement de la dissolution du milieu	72
2.19	Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée à différentes valeurs de Pe et Da correspondant à la dissolution du milieu fracturé de la figure 2.16	73
2.20	Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour $Da = 0.001$. La ligne continue correspond à la relation analytique (2.16) entre la perméabilité et la porosité	74
2.21	Comparaison des relations perméabilité-porosité normalisées à l'ensemble des résultats de la littérature [114, 115, 161]	75

2.22	Aperçu de l'évolution de la morphologie en fonction de la progression de la dissolution du milieu pour différents Péclet et Damköhler avec une porosité normalisée $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.2$, $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.6$, $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.8$ et $\frac{\phi}{\phi_0} = 2$	77
2.23	Evolutions de la concentration normalisée et de la morphologie du milieu en fonction du nombre de Péclet et de Damköhler pour une porosité normalisée $\frac{\phi}{\phi_0} = 2$	78
2.24	La porosité normalisée et la perméabilité normalisée en fonction du temps pour un $Pe=50$ avec différents Da	79
2.25	La porosité normalisée et la perméabilité normalisée en fonction du temps pour un $Da=5$ avec différents Pe	79
2.26	La porosité normalisée et la perméabilité normalisée en fonction du temps pour différentes valeurs de C^*	80
2.27	La perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour différentes valeurs de C^*	81
3.1	Milieu poreux sélectionné dans lequel la tortuosité hydraulique et géométrique ont été comparées en suivant le chemin géométrique dans la figure 3.1a et hydraulique dans la figure 3.1b. La couleur correspond au champ de vitesse dans le domaine. Les régions en rouge représentent les zones les plus perméables du milieu	85
3.2	Schématisation du milieu à inclusion circulaire avec les conditions aux limites associées	87
3.3	L'évolution temporelle de la porosité résultant du test de convergence de la grille	89
3.4	Influence des conditions aux limites sur les bords inférieur et supérieur sur la variation en temps de la porosité et la perméabilité	90
3.5	Distributions du champ de vitesse et de concentration dans le domaine d'inclusion circulaire à l'état stationnaire pour un $Pe=600$. Dans les figures 3.5a et 3.5c, le domaine est délimité par des parois solides en haut et en bas sur lesquelles la vitesse est nulle. Dans les figures 3.5b et 3.5d, le domaine est considéré comme étant ouvert avec des conditions périodiques dans la direction y	91
3.6	Influence des conditions aux limites aux bords supérieur et inférieur du milieu simulé sur la variation de sa perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée	92
3.7	Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour différentes valeurs de Pe et Da	93
3.8	Evolution de la morphologie de l'inclusion au cours de la dissolution pour différentes valeurs de Péclet et de Damköhler. Les porosités normalisées sont $\frac{\phi}{\phi_0} = 1$ (noir), $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.3$ (vert), $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.6$ (bleu) et $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.75$ (rouge)	95
3.9	Suivi de l'évolution de la surface normalisée figure 3.9a et du volume du solide figure 3.9b pour différents régime de dissolution de l'inclusion circulaire.	96

3.10	Les tortuosités dans les directions x dans la figure 3.10a et y dans la figure 3.10b en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction lente ($Da = 0.1$)	98
3.11	Relation entre les tortuosités dans les directions x dans la figure 3.11a et y dans la figure 3.11b en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction rapide. Les distributions du scalaire de la tortuosité pour les cas extrêmes sont également présentées	99
3.12	Rapport des composantes diagonales de la tortuosité T_{xx} et T_{yy} en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction rapide 3.12b et lente 3.12a	100
3.13	Modèle idéalisé utilisé pour la simulation du milieu poreux à l'échelle du pore. Il est constitué d'une succession d'inclusions circulaires dans des cellules élémentaires	101
3.14	Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée du milieu poreux pour différentes combinaisons de Pe et Da	103
3.15	Illustration du champ de concentration normalisé C/C_{ref} milieu poreux pour différentes valeurs de Pe et de Da	104
3.16	Illustration du champ de vitesse normalisée par $U_{max} = 0.165 [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe = 600$ et $U_{max} = 1.65 \times 10^{-4} [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe = 0.6$ dans le milieu	105
3.17	Variation de la surface spécifique normalisée en fonction de la porosité normalisées pour différents Pe et Da pour un milieu poreux périodique	107
3.18	Rapport des composantes diagonales de la tortuosité T_{xx} et T_{yy} en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction rapide dans un milieu poreux	108
3.19	Suivi de la variation temporelle de la porosité normalisée cellule par cellule pour différents régimes de transport réactif	110
3.20	Milieus poreux numériques d'une longueur $L_x = 0.0035 [m]$ et d'une largeur $L_y = 0.0025 [m]$ avec divers désordres. Figure 3.20a : Structure d'arrangement ordonnée; figures 3.20b, 3.20c, 3.20d, 3.20e, 3.20f : Structure d'arrangement arbitraire. Le noir indique les solides réactifs; le blanc est l'espace des pores	112
3.21	Relation perméabilité-porosité pour les milieux poreux de la figure 3.20 avec $Pe=60$ et $Da=10$	113
3.22	Illustration du champ de vitesse normalisé par $U_{max} = 6.5 \times 10^{-3} [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe=60$ et $U_{max} = 6.5 \times 10^{-5} [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe=0.6$ dans le milieu poreux 3.20d pour différents nombres de Pe et Da	114
3.23	Illustration du champ de concentration normalisé par $C_{ref} = 10^4 [mol \cdot m^{-3}]$ dans le milieu poreux 3.20d pour différents nombres de Pe et Da	114
3.24	Trois représentations des milieux poreux générés par Porespy avec différents "blobnissess"	115

3.25	Figure 3.25a : Échantillon du milieu poreux composé de terre avec une porosité ouverte de 30% produit au laboratoire LGCGM de l'INSA-Rennes. Figure 3.25b : transformation du milieu 3.25a en image matricielle numérique prête à l'utilisation dans la simulation	116
3.26	Schématisation du milieu poreux simulé et des conditions aux limites	116
3.27	Distributions du champ de vitesse à $Pe = 10.7$, $Da = 10$	117
3.28	Distributions du champ de concentration normalisée à $Pe = 10.7$, $Da = 10$	117
3.29	Distribution de la concentration normalisée à $Pe = 1.2$, $Da = 10$	118
3.30	Distribution de la concentration normalisée à $Pe = 1.2$, $Da = 1$	118
3.31	Distribution de la concentration normalisée à $Pe = 1.2$, $Da = 0.1$	118
3.32	Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée à différentes valeurs de Pe et Da correspondant à la dissolution du milieu poreux à structure compliquée de la figure 2.16	119
A.1	Position des particules ayant des vitesses entre \mathbf{v} et $\mathbf{v} + d\mathbf{v}$	128

Liste des tableaux

1.1	Tableau des coefficients w_i des réseaux D2Q5, D2Q9 et D3Q15	22
1.2	Comparaison des différentes approches des conditions aux limites	32
2.1	Les paramètres utilisés dans l'étude numérique	46
2.2	Paramètres de simulation correspondant à l'écoulement de Poiseuille avec un temps de relaxation $\tau^* = 1$	50
2.3	Erreur relative sur la solution de Poiseuille numérique en fonction de N et du temps de relaxation τ^*	52
2.4	Paramètres de simulation utilisés pour la validation du problème de diffusion unidirectionnelle transitoire avec $\tau_g^* = 1$	55
2.5	Erreur relative entre la solution LBM et solution analytique de la diffusion pure pour différentes résolutions et temps de relaxation τ_g^*	55
2.6	Paramètres de la simulation de la dissolution unidirectionnelle	63
2.7	Temps de la dissolution complète t_f du domaine solide obtenus par COMSOL et par LBM pour différentes valeurs de C_{eq}	65
2.8	Temps de la dissolution complète t_f du domaine solide obtenus par COMSOL et par LBM pour différentes valeurs de Da	65
2.9	Temps requis pour la précipitation dans le canal afin de le réduire à sa moitié pour différents C_{eq}	66
2.10	Temps requis pour la précipitation dans canal afin de le réduire à sa moitié pour différents Da	67
2.11	Paramètres de la simulation de dissolution dans le milieu fracturé de la figure 2.16	70
3.1	Paramètres utilisés dans les simulations de la dissolution d'une inclusion circulaire de porosité $\phi_{geom} = 0.497$	88
3.2	La différence entre la porosité réelle et la porosité calculée numériquement à l'état initial en fonction de la résolution N (nombre de segment Δx dans la direction y)	89

3.3	Paramètres utilisés dans les simulations de la dissolution d'une suite périodique de grain circulaire	102
3.4	Paramètres de la simulation de dissolution dans le milieu de la figure 3.25 . . .	117

Liste de Symboles

Acronymes et abréviations

ADE	<i>Advection-diffusion equation</i>
BC	<i>Boundary Condition</i>
CU	<i>Facteur de conversion d'unités</i>
DF	<i>Différence finie</i>
LBE	<i>Lattice Boltzmann equation</i>
LBM	<i>Lattice Boltzmann method</i>
MRT	<i>Multiple Relaxation Time</i>
NSE	<i>Navier Stokes equations</i>
SRT	<i>Single Relaxation Time</i>
TRT	<i>Two Relaxation Time</i>
VER	<i>Volume élémentaire représentatif</i>

Symboles

\mathbf{n}	<i>vecteur normal entrant vers le fluide</i>
Da	<i>Nombre de Damköhler</i>
Ma	<i>Nombre de Mach</i>
Pe	<i>Nombre de Peclet</i>
Re	<i>Nombre de Reynolds</i>
Sc	<i>Nombre de Schmidt</i>
$\chi_{l,n}$	<i>Coefficient stoechiométrique</i>
Δt	<i>Discrétisation temporelle</i>
Δx	<i>Discrétisation spatiale</i>
Γ_{sf}	<i>Interface solide-fluide</i>
\mathcal{R}_k	<i>Terme source réactif</i>
\mathcal{S}_{sf}	<i>Surface totale des interfaces solide-fluide</i>

\mathcal{S}	<i>Surface spécifique</i>
\tilde{I}_{kj}	<i>Terme source réactif</i>
μ	<i>Viscosité dynamique</i>
ν	<i>Viscosité cinématique</i>
Ω	<i>Phases</i>
U	<i>Vitesse de Darcy</i>
\mathbf{u}	<i>Vecteur de vitesse</i>
ϕ	<i>Porosité</i>
ρ	<i>Densité du fluide</i>
τ_f, τ_g	<i>Temps de relaxation</i>
\mathbf{K}	<i>Tenseur de perméabilité</i>
\mathbf{T}	<i>Tenseur de Tortuosité</i>
ε	<i>fraction Volumique</i>
C	<i>Concentration</i>
D	<i>Coefficient de diffusion</i>
f, g	<i>fonction de distribution</i>
k	<i>Taux de réaction</i>
N	<i>Résolution</i>
P	<i>Pression</i>
U_{max}	<i>Vitesse maximale</i>
V	<i>Volume</i>
w	<i>facteur de pondération</i>
Opérateurs	
\bar{A}	<i>valeur moyenne de la grandeur A sur un VER</i>
\cdot	<i>Produit scalaire</i>

∇	<i>gradient</i>
\mathcal{O}	<i>Opérateur de collision</i>
Δ	<i>Laplacien</i>
\star	<i>Adimensionnement</i>

Indices

0	<i>Initiale</i>
eff	<i>Effective</i>
eq	<i>Equilibre</i>
f	<i>Fluide</i>
i, α	<i>Directions discrètes</i>
M	<i>Molaire</i>
m	<i>minérale</i>

s	<i>Solide</i>
in	<i>Entré</i>
out	<i>Sortie</i>

Unités

kg	<i>Kilogramme</i>
lb	<i>Lattice</i>
m	<i>Mètre</i>
mol	<i>Mole</i>
N	<i>Newton</i>
Pa	<i>Pascale</i>
s	<i>Second</i>

Introduction

Contexte général

Les milieux poreux sont omniprésents dans de nombreux domaines aussi bien naturels que industriels. Ils sont bien souvent le siège d'un transport de masse qui peut interagir chimiquement avec la matrice solide entraînant alors une modification de sa microstructure qui influe à son tour sur les propriétés de transport. L'omniprésence de ces milieux explique pourquoi, ce type de transport et ses conséquences ont été et sont encore largement étudiés aujourd'hui par la communauté scientifique.

A titre d'exemple, cette dernière s'intéresse entre autres à la dégradation des matériaux de construction comme le vieillissement et la lixiviation des bétons [1–5], la séquestration géologique du dioxyde de carbone [6–10], la croissance des biofilms dans un environnement aqueux [11–16], la contamination des aquifères par le transport des polluants dans les eaux souterraines [17–20], les précipitations dans les phénomènes de Liesegang [21,22] et l'exploitation des ressources pétrolières dans les réservoirs de pétrole et de gaz [23–27].

Dans chacun de ces exemples, la modification de la structure du milieu résulte d'une réaction chimique spécifique plus ou moins complexe suivant le problème étudié. Lors de l'extraction des réservoirs de pétrole et de gaz, comme les opérations de forage, la cimentation des parois des puits, les réparations et bien d'autres, la structure du réservoir est endommagée. Ces dommages entraînent la fermeture des pores de la roche entourant le réservoir et réduisent considérablement la production de fluides pétroliers. L'une des façons les plus souhaitables d'augmenter l'efficacité des puits est de stimuler le réservoir par dissolution. Comme la plupart des réserves pétrolières mondiales sont situées dans des réservoirs carbonatés, l'injection d'acide s'est avérée être une méthode de stimulation efficace pour améliorer la production de pétrole [28].

Il existe une variété de substances chimiques pour induire une stimulation par acidification. L'une d'entre elles est l'acide carbonique induit par la dissolution du CO₂ dans l'eau. Il provient de plusieurs sources naturelles telles que l'eau de pluie (eau chargée de dioxyde de carbone

provenant de l'air) ou de sources plus profondes (eau chargée de CO₂ stocké dans le sol). Une autre solution est l'acide chlorhydrique (HCl). Il est généralement utilisé dans le traitement de l'acidification en raison de son faible coût, vitesse de réaction rapide et absence de précipité [29]. L'acide mis en réaction rentre en contact avec les roches carbonatées, les dissout et réagit avec les minéraux de celle-ci, principalement la calcite CaCO₃. Dans ce cadre la roche crée des canaux hautement conducteurs, qui peuvent réduire la résistance à l'écoulement des fluides et augmenter la porosité-perméabilité temporelle et spatiale.

Comme nous venons de l'illustrer, l'étude du transport de masses réactives au sein d'un milieu poreux est donc d'une importance primordiale aussi bien sur le plan fondamental pour déterminer les mécanismes de la migration des espèces, que sur le plan appliqué dans les domaines du génie civil, du génie pétrolier, de l'environnement, etc.

Ce travail de thèse s'inscrit dans le contexte plus général du transport de masse réactives dans les milieux poreux hétérogènes dont les pores sont saturés par un fluide monophasique. Ce transfert dépend de la nature du milieu, notamment de sa morphologie, des concentrations des espèces transportées, des conditions environnementales auxquelles le milieu est soumis, etc. Généralement, ce genre d'étude est réputé difficile en raison de la concomitance des phénomènes physico-chimiques complexes qui en résulte. D'une part, l'écoulement de la solution qui a lieu dans les pores transporte avec lui des espèces chimiques qui peuvent interagir entre elles dans le volume du fluide et également échanger de la matière avec la matrice solide via des réactions chimiques telles que des réactions de dissolution et/ou de précipitation [30–32]. D'autre part, la structure poreuse hétérogène du milieu renforce bien souvent la complexité de la description des interactions et influence les temps de transfert des espèces et le mode de transport. Par ailleurs, le problème est rendu encore plus complexe en raison de l'évolution de la structure poreuse du milieu qui modifie fortement les caractéristiques du transport.

Problématique scientifique

Le transport des masses réactives dans les milieu poreux est gouverné par divers processus se déroulant à différentes échelles de temps et d'espace. En effet, l'étude de ce type de transport doit prendre en compte l'écoulement de la solution aqueuse, le transport des espèces chimiques par advection-diffusion, les aspects réactifs mais aussi la complexité du milieu poreux. La description géométrique de ce dernier peut être établie à trois échelles spatiales.

L'échelle macroscopique allant du centimètre au mètre considère le milieu poreux comme un milieu continu pour lequel la complexité de la structure interne n'est pas explicitement

traitée. A cette échelle le Volume Élémentaire Représentatif (VER) qui détermine les propriétés effectives du milieu est défini. L'échelle microscopique, allant du nanomètre au micromètre, aussi appelée échelle du pore, à laquelle la représentation du milieu poreux est la plus proche possible de sa complexité réelle. Cette approche nécessite comme le montre la figure 1, une représentation fine de la distribution spatiale des phases fluides Ω_f et solides Ω_s , des interfaces solide-fluide Γ_{sf} qui les sépare et de leur évolution dans le temps. Elle permet également de distinguer les différents types de pores : les pores isolés remplis de fluide immobile et les pores connectés à travers lesquels le fluide peut s'écouler. Enfin, l'échelle mésoscopique allant du micromètre au centimètre, décrit la structure poreuse du milieu comme un assemblage de pores reliés par des liens formant un réseau. Cette échelle est comprise entre les échelles citées et permet de relier la représentation microscopique très complexe et la représentation macroscopique qui lisse toutes les hétérogénéités. La connaissance de toutes ces échelles est essentielle pour comprendre et résoudre le problème de transport réactif.

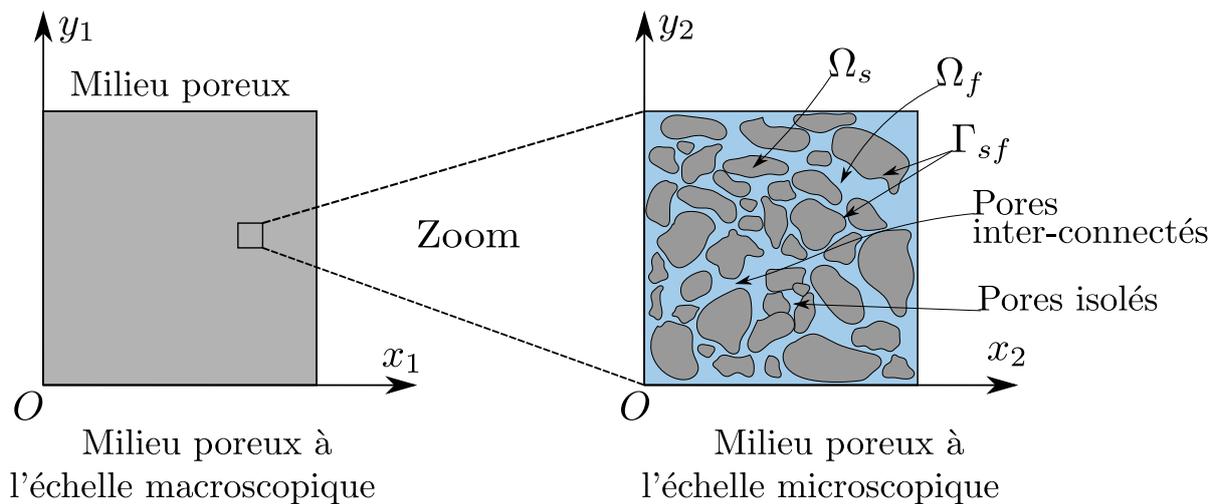


Figure 1 – Schématisation d'un milieu poreux à différentes échelles

La complexité des processus du transport réactif et la difficulté d'acquisition de données réelles fiables entraînent que la modélisation mathématique et la résolution numérique aident à la compréhension des phénomènes induits. Sa compréhension repose principalement sur sa modélisation mathématique et la résolution numérique. En effet, de nombreuses études expérimentales et théoriques (analytiques ou semi-analytiques) ont été menées pour résoudre un tel problème [33–36]. Mais compte tenu de la complexité du couplage, il n'est pas toujours possible de trouver des solutions analytiques complètes et de reproduire expérimentalement les processus couplés. Par exemple, il est difficile de révéler avec précision les processus d'évolution interne des réservoirs de gaz et de pétrole par des expériences en raison du coût élevé et de l'opacité des structures solides [37]. Prenons également l'exemple du vieillissement des bétons ou de la formation des karsts [38], ces phénomènes sont naturellement lents et sont soumis expéri-

mentalement à des conditions accélératrices et à des hypothèses simplificatrices qui peuvent influencer le résultat. Pour relier les observations expérimentales à la réalité, les chercheurs utilisent des modèles numériques ou une combinaison de ces approches [5]. En outre, ces outils permettent de faire varier les paramètres du système, tels que la géométrie de l'espace de pores, les propriétés des fluides et les conditions aux limites, afin d'évaluer leur impact, ce qui est difficile à réaliser dans les expériences [39, 40].

La modélisation à l'échelle macroscopique (échelle de Darcy) présente un grand intérêt pour l'ingénierie et la recherche [41, 42]; cependant, elle trouve son origine dans les processus et les interactions qui existent à l'échelle des pores. Les modèles de transport réactif en milieu poreux à l'échelle macroscopique sont décrits par des formulations continues basées sur des moyennes spatiales prises sur des échelles de longueur beaucoup plus grandes que les tailles typiques des pores. Au sein du VER, les propriétés du milieu sont supposées être homogènes et le changement de microstructure est pris en compte par un changement global du volume de la phase solide. En conséquence, les modèles ont tendance à surestimer les taux de réaction, comme l'ont rapporté plusieurs auteurs [43, 44]. Les hétérogénéités spatiales à plus petites échelles ainsi que leur distribution dans le milieu ne sont pas résolues, ce qui entraîne une incertitude et une perte d'information [45].

Dans ce contexte, différentes approches numériques ont été employées pour modéliser le transport réactif à l'échelle du pore dans les milieux poreux (tels que volumes finis (FV), différences finies (FD) ou éléments finis (FE)) [30, 46, 47]. Cependant, le suivi d'une interface évolutive nécessite souvent un raffinement du maillage, un remaillage adapté aux fortes variations (maillage adaptatif) ou un maillage mobile tel que la méthode Arbitrary Lagrangian et Euleurian (ALE) [48, 49] pour maintenir la qualité du maillage après une déformation importante de la forme initiale. En effet, ces méthodes deviennent rapidement gourmandes en temps et en mémoire. Cela limite leur application dans les domaines complexes tels que les milieux poreux et met en valeur l'efficacité des méthodes numériques à l'échelle des pores. Parmi les approches existant à cette échelle, nous citons les modèles de particule (Smooth Particle Hydrodynamics) [50–52], le modèle hybride couplant différents méthodes numériques [53, 54], les modèles de réseaux de pores (Pore Networks) [55–59], la méthode de Boltzmann sur réseau (Lattice Boltzmann Method) [11, 60–64] qui ont la capacité de prendre en compte les structures poreuses complexes.

La méthode de Boltzmann sur réseau (LBM) est basée sur des modèles microscopiques et des équations cinétiques mésoscopiques. Elle est devenue l'un des outils les plus efficaces pour la simulation numérique de l'écoulement, du transfert de masse et de chaleur à l'échelle du pore en raison de sa nature cinétique qui permet de représenter facilement les micro-interactions entre les fluides. D'autres avantages de la LBM sont la simplicité de la mise en œuvre de l'algorithme

et sa nature parallèle, sa capacité à modéliser des problèmes complexes (par exemple, les milieux poreux) et à incorporer plusieurs phénomènes physiques. De nombreux chercheurs ont utilisé cette méthode dans leurs travaux pour simuler des écoulements dans des milieux complexes [65, 66], dans des conditions compliquées telles que l'écoulement multiphasique et de turbulence [67–70], de multi-composants [71], de réactions dans le fluide et sur les interface solide-fluide [20], et de transfert de chaleur [72, 73]. De même, la LBM a été utilisée dans diverses études pour modéliser le transport de masse couplé à des réactions chimiques, en tenant compte de l'évolution de la microstructure.

Objectifs

L'objectif de ce travail de thèse est de modéliser le transport de masse par advection-diffusion à l'échelle du pore via la méthode lattice Boltzmann (LBM). Ce processus de transport sera couplé aux réactions chimiques des solutés à l'interface solide-fluide. Ce qui permettra par la suite d'intégrer une distribution microscopique des phases dissoutes ou précipitées dans le volume poral.

En résumé, les objectifs de cette étude comprennent les points suivants :

- Développer un outil de modélisation pour simuler l'écoulement et le transport de solutés couplés à des réactions chimiques et le valider par comparaison avec des solutions analytiques et/ou des tests de référence.
- Intégrer l'évolution de la microstructure représentée par la distribution microscopique des phases dissoutes ou précipitées dans le milieu.
- Etudier l'influence du transport réactif sur les propriétés macroscopiques par l'analyse quantitative des relations perméabilité-porosité et qualitative des évolutions de la morphologie pour différents régimes de transport et de réaction dans une fracture simple.
- Etudier quantitativement et qualitativement la dissolution d'une inclusion circulaire puis étendre l'étude à la dissolution d'une chaîne de grains comme milieu modèle de milieu poreux.
- Considérer la dissolution d'un milieu poreux complexe afin de quantifier l'évolution des valeurs de perméabilité avec la progression de la dissolution, puis identifier et classer les régimes de dissolution.

Organisation du manuscrit

À la suite de cette introduction qui présente le contexte général, la motivation de cette recherche ainsi que les objectifs fixés, le manuscrit est organisé en 3 chapitres.

Dans le chapitre 1, nous présentons une description de la physique du transport de masse dans les milieux poreux ainsi que sa formulation mathématique. Puis nous introduisons la méthode de Boltzmann sur réseau utilisée pour résoudre l'écoulement et le transport. Nous abordons ensuite la question du traitement des réactions hétérogènes comme conditions aux limites dans les équations de transport en présentant les schémas les plus utilisés dans la littérature. La description de la méthode de suivi d'interface, qui se fait en marge de la LBM, est enfin présentée pour prendre en compte l'évolution de la phase solide suite aux réactions chimiques.

Dans le chapitre 2, nous présentons le modèle numérique développé au cours de ce travail de thèse à partir de la méthode de Boltzmann sur réseau. Pour construire ce modèle, nous nous appuyons sur les résultats des comparaisons entre différentes méthodes existantes. La description fine de la microstructure est également prise en compte ce qui nous permet d'étudier et de prédire l'altération de la structure du milieu due à des réactions hétérogènes. Plusieurs tests de référence sont réalisés et les résultats obtenus sont validés avec des solutions analytiques ainsi qu'avec des résultats numériques précédemment publiés. Ainsi ce chapitre 2 présente la validation du modèle en vérifiant chaque étape séparément.

Le chapitre 3 est consacré aux résultats de la simulation de la dissolution dans différents types de milieux et à la discussion des observations. Nous nous intéressons dans un premier temps à l'étude de l'évolution de la porosité, la perméabilité et la tortuosité d'un modèle de milieu poreux basé sur une inclusion circulaire périodique. Ensuite l'étude est étendue à l'évolution morphologique suite à la dissolution de milieux hétérogènes pour lesquels une classification de régimes de dissolution est proposée.

Pour clore ce manuscrit, nous établissons dans une dernière partie une conclusion pour résumer les différents apports de cette thèse. Enfin des perspectives de travail sont évoquées afin de prolonger les travaux réalisés.

Chapitre 1

L'état de l'art sur la modélisation du transport de masse réactif dans les milieux poreux

Sommaire

1.1	Introduction	8
1.2	Milieux poreux	9
1.2.1	Différentes échelles de description	9
1.2.2	Caractéristiques des milieux poreux	10
1.3	Formulation mathématique du transport réactif	11
1.3.1	Ecoulement du fluide	11
1.3.2	Transport de masse	12
1.3.3	Réactions chimiques	14
1.4	Méthode de Boltzmann sur réseau pour un écoulement	17
1.4.1	Equation de transport de Boltzmann	18
1.4.2	Equation de Boltzmann sur réseau	19
1.4.3	Opérateur de collision	21
1.4.4	Fonction d'équilibre	25
1.4.5	Conditions aux limites	26
1.5	Méthode de Boltzmann sur réseau pour le transport réactif	33
1.5.1	Équation de Boltzmann sur réseau pour le transport réactif d'une seule composante	33
1.5.2	Choix de la fonction de distribution d'équilibre	34
1.5.3	Choix du réseau	34
1.5.4	Conditions aux limites pour le transport réactif	35
1.6	Evolution de la microstructure	38
1.7	Conclusion	40

1.1 Introduction

Dans ce premier chapitre, nous présentons tout d'abord le cadre physique du transport de masse réactif, qui comprend quatre phénomènes. Au début, le fluide composé d'une seule phase traverse le milieu avec une vitesse donnée. En s'écoulant, le fluide transporte avec lui les espèces diluées dans la solution aqueuse par le principe d'advection-diffusion. Les espèces transportées réagissent ensemble dans le fluide et échangent de la matière avec l'interface solide-fluide. Ces réactions modifient la microstructure du milieu et font évoluer l'interface solide-fluide. L'évolution de la morphologie restreint l'écoulement et le transport dans le milieu car le fluide cherche à s'orienter et à s'adapter à la nouvelle forme. La succession de ces phénomènes physico-chimiques met en évidence une forte dépendance entre eux et nécessite donc la compréhension du cycle complet présenté dans la figure 1.1.

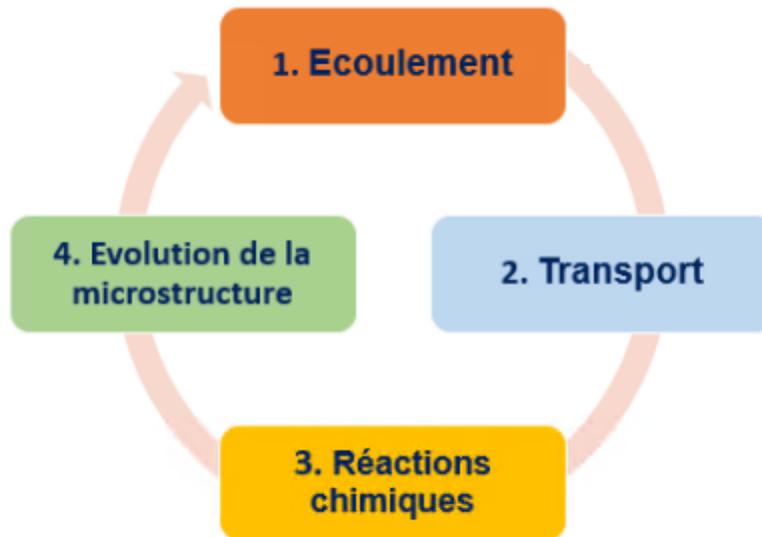


Figure 1.1 – L'ordre de déroulement des processus physico-chimiques

Dans la section 1.3, les équations aux dérivées partielles qui régissent l'écoulement du fluide et le transport par advection-diffusion sont établies. Ensuite, le concept de base des réactions chimiques et l'évolution de la microstructure sont présentés. Dans la suite 1.4 et 1.5, une description de la méthode de Boltzmann sur réseau pour l'écoulement et le transport ainsi qu'un état de l'art du traitement des réactions chimiques et de la mise à jour de la microstructure sont introduits. Enfin, une conclusion est extraite dans la section 1.5

1.2 Milieux poreux

Un milieu poreux est constitué d'une matrice solide et de vides appelés pores. Ces derniers peuvent être occupés par un ou plusieurs fluides suivant la configuration.

1.2.1 Différentes échelles de description

La description et donc l'étude d'un milieu poreux peuvent se faire à différentes échelles.

- **l'échelle du pore** : à cette échelle, appelée également échelle microscopique, la représentation du milieu poreux se doit d'être la plus proche possible de la complexité réelle du milieu. Comme le montre la figure 1, une telle description nécessite une représentation fine de la distribution spatiale des phases fluides Ω_f et solides Ω_s . La connaissance des interfaces solide-fluide Γ_{sf} et leur possible évolution au cours du temps est également nécessaire. A cette échelle, la description des écoulements et du transport se fait via la résolution des équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement. Ces équations seront présentées plus spécifiquement dans la partie 1.3.
- **l'échelle de Darcy** : à cette échelle, qualifiée également d'échelle locale, on considère un bloc du milieu poreux dont la taille est suffisamment grande par rapport à la taille des pores de telle sorte que ce dernier puisse être assimilé à un milieu continu. A cette échelle, la complexité de la structure interne n'est pas explicitement traitée. Comme nous allons le voir dans la section 1.2.2 suivante, on peut définir en tout point de l'espace des propriétés locales et voir apparaître dès cette échelle des hétérogénéités dans ces grandeurs.
- **l'échelle macroscopique** : la dernière échelle de description est l'échelle macroscopique. A cette échelle qui est donc au dessus de l'échelle locale, on peut englober un grand nombre d'hétérogénéité du milieu dans sa description.

On s'aperçoit donc que le choix de l'échelle de description du milieu poreux est importante suivant qu'on souhaite étudier des phénomènes à l'échelle des pores ou de grandeurs moyennés localement. Elle conditionne directement la description mathématique du ou des phénomènes physiques et son choix est bien souvent tributaire des informations dont on dispose pour décrire le milieu poreux.

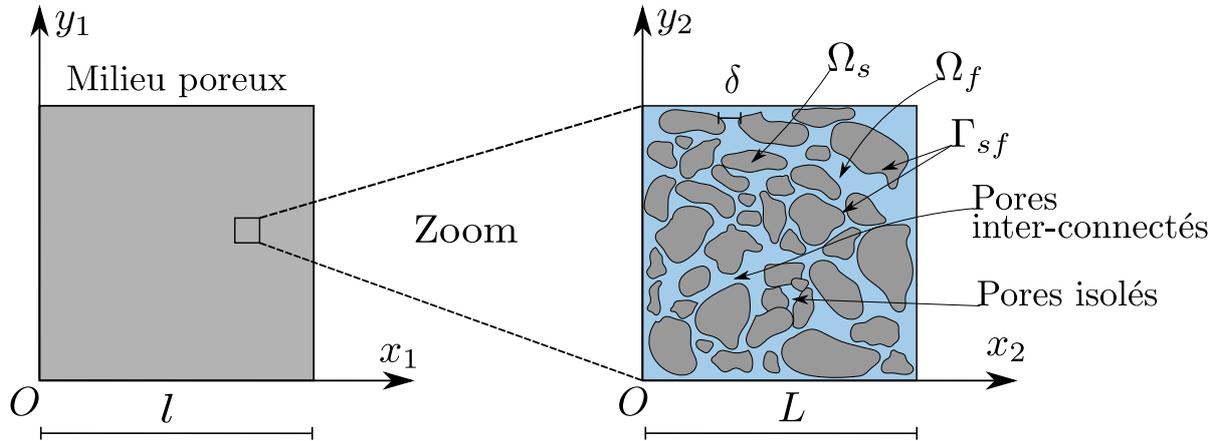


Figure 1.2 – Schématisation d'un milieu poreux à différentes échelles

1.2.2 Caractéristiques des milieux poreux

Les milieux poreux naturels sont caractérisés par une extrême complexité de la distribution irrégulière des pores (dans leur forme, leur taille et leur répartition spatiale). Ainsi, du fait de cette forte hétérogénéité à l'échelle microscopique, on définit les propriétés du système à l'échelle local via l'utilisation d'un volume élémentaire représentatif (VER).

— La porosité

La porosité ϕ est définie comme le pourcentage de vide dans un milieu poreux. :

$$\phi = \frac{V_p}{V_{VER}} = \frac{V_{VER} - V_s}{V_{VER}} = 1 - \underbrace{\frac{V_s}{V_{VER}}}_{\text{appelé la compacité}} \quad (1.1)$$

où V_{VER} est le volume total du VER constitué d'un volume solide V_s et d'un volume de pores V_p .

ϕ varie entre 0 et 1. Sa valeur ne renseigne en rien sur la taille des pores et donc sur l'aptitude d'un fluide à s'écouler à travers le milieu.

— La perméabilité

Le tenseur de perméabilité \mathbf{K} intrinsèque d'un milieu poreux exprime son aptitude à laisser circuler, à travers ses pores, un fluide sous l'effet d'un gradient de pression ou d'un champ de gravité. Cette quantité est liée à la loi de Darcy et dépend de la structure du solide, en particulier de la porosité. Il peut être déterminé via la relation de Darcy :

$$\mathbf{U} = -\frac{1}{\mu} \mathbf{K} \nabla P \quad (1.2)$$

dans laquelle P est la pression et μ la viscosité dynamique du fluide.

— **La surface spécifique**

Elle permet d'évaluer la surface de contact qu'offre un réseau poreux, à un fluide qui circule au travers. Elle désigne le rapport de l'aire de la surface totale des interfaces solide-fluide \mathcal{S}_{sf} sur le volume de l'échantillon V_{VER} ,

$$\mathcal{S} = \frac{\mathcal{S}_{sf}}{V_{VER}} \quad (1.3)$$

La surface spécifique a une grande importance pour les phénomènes faisant intervenir les interfaces solide-fluide tels que l'adsorption, l'absorption, la dissolution, la précipitation, l'échange de chaleur etc.

1.3 Formulation mathématique du transport réactif

Dans cette section, nous présentons les équations permettant la description des différents phénomènes physiques intervenant dans ce travail de thèse. Après avoir présenté les équations permettant de décrire les écoulements de fluide, nous nous intéresserons au transport de masse. Puis nous verrons comment décrire les réactions chimiques (entre les espèces transportées et avec la matrice poreuse). Enfin nous verrons comment décrire mathématiquement l'évolution de la microstructure du milieu poreux.

1.3.1 Ecoulement du fluide

Considérons un fluide de masse volumique ρ [kg m^{-3}] et un volume élémentaire de ce fluide de vitesse \mathbf{u} [m s^{-1}]. L'écoulement de ce volume élémentaire est décrit par les équations de Navier-Stokes qui reflètent la conservation de la masse et de la quantité de mouvement [74, 75]. Elles sont données par :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (1.4a)$$

$$\frac{\partial(\rho \mathbf{u})}{\partial t} + \rho \mathbf{u} (\nabla \cdot \mathbf{u}) = -\nabla p + \mu \Delta \mathbf{u} \quad (1.4b)$$

où, p est la pression du fluide [Pa], μ la viscosité dynamique [$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$] et $\Delta = \nabla \cdot \nabla$ l'opérateur laplacien.

Si le fluide est incompressible, l'équation (1.4a) devient :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (1.5)$$

L'adimensionnalisation montre qu'en introduisant une longueur caractéristique L [m] et une vitesse de référence caractéristique U [$m\ s^{-1}$], on peut alors définir un temps et une pression caractéristique ce qui conduit à ce que l'équation (1.4b) devienne

$$\frac{\partial \mathbf{u}^*}{\partial t^*} + \mathbf{u}^* (\nabla \cdot \mathbf{u}^*) = -\nabla p^* + \frac{1}{\text{Re}} \Delta \mathbf{u}^* \quad (1.6)$$

où les grandeurs étoilées sont les grandeurs dimensionnées. Re est le nombre de Reynolds. Ce dernier caractérise le régime d'écoulement en établissant le rapport entre les forces inertielles et les forces visqueuses.

$$\text{Re} = \frac{UL}{\nu} \quad (1.7)$$

avec ν est la viscosité cinématique.

Ainsi, si la vitesse est suffisamment faible pour que les effets visqueux soient prépondérants devant les effets inertiels, l'équation (1.4b) se réduit à :

$$\nabla p = \mu \Delta \mathbf{u} \quad (1.8)$$

La condition d'adhérence aux interfaces solides se résume dans le cas d'un écoulement en milieu poreux à :

$$\mathbf{u} = 0 \quad \text{sur } \Gamma_{sf} \quad (1.9)$$

1.3.2 Transport de masse

Le transport de masse a lieu dans les écoulements où le fluide entraîne dans son mouvement des quantités de matières. Ce transport est gouverné par deux processus principaux : l'advection et la diffusion [76]. L'advection présente le déplacement des espèces chimiques en fonction de la vitesse du fluide dans le milieu environnant. La diffusion, quant à elle, reflète le mouvement aléatoire des espèces dû à l'agitation moléculaire dans le fluide et tend à homogénéiser la composition du milieu. La distribution de la concentration au sein du milieu n'étant pas homogène, un gradient de concentration est créé entre deux points voisins exprimant un flux de particules des régions de plus forte concentration vers les régions de plus faible concentration, selon la loi de Fick. Pour une espèce k dont la concentration aqueuse est notée C_k [$\text{mol}\ \text{m}^{-3}$], ce flux s'écrit :

$$\mathbf{j}_k = -\mathbf{D}_k \nabla C_k \quad (1.10)$$

où \mathbf{D}_k est le tenseur de diffusion moléculaire [$\text{m}^2\ \text{s}^{-1}$] de l'espèce k . Combinant les deux

mécanismes d'advection et de diffusion, nous obtenons l'équation de transport des espèces chimiques traduisant la conservation de la masse sur chaque élément de volume comme suit [77, 78] :

$$\frac{\partial C_k}{\partial t} + \underbrace{\nabla \cdot (\mathbf{u}C_k)}_{\text{advection}} = \underbrace{\nabla \cdot (D\nabla C_k)}_{\text{diffusion}} + \underbrace{\mathcal{R}_k}_{\text{terme source}} \quad \text{dans } V_p \quad (1.11)$$

\mathbf{u} est la vitesse du fluide [m s^{-1}] et \mathcal{R}_k est un terme source représentant la création ou disparition de masse pour l'espèce k [$\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$]. On peut toutefois noter que ce terme général peut représenter différents types de réactions. En effet, comme nous le présenterons dans la section 1.3.3 ce terme peut représenter des réactions homogènes, qu'elles soient à l'équilibre ou hors-équilibre. Au niveau d'une interface entre le fluide un solide, si on note \tilde{I}_{kj} [$\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$] la densité de flux de création ou destruction de masse de l'espèce k pour la réaction j , l'équilibre des flux conduit à la condition :

$$(\mathbf{u}C_k - D_k\nabla C_k) \cdot \mathbf{n} = \tilde{I}_{kj} \quad \text{sur } \Gamma_{sf} \quad (1.12)$$

qui, en raison de la condition d'adhérence sur Γ_{sf} , se réduit à

$$-D_k\nabla C_k \cdot \mathbf{n} = \tilde{I}_{kj} \quad \text{sur } \Gamma_{sf} \quad (1.13)$$

où \mathbf{n} est la normale à l'interface, choisie de manière à pointer du solide vers le fluide. Pour un système contenant N espèces chimiques, il y aura donc une équation de transport pour chaque espèce soit N_k équations de transport.

Comme énoncé précédemment, D_k est un tenseur, néanmoins lorsque la diffusion est isotrope, celui-ci peut s'écrire sous la forme d'un scalaire. Comme cette hypothèse d'isotropie de la diffusion sera également faite dans ce travail, nous noterons donc à partir de maintenant le tenseur de diffusion de l'espèce k comme un scalaire D_k . Dans le cas d'une seule espèce nous utilisons D pour simplifier la notation.

Le modèle de transport (1.11) et le modèle d'écoulement (1.4) sont couplés. Le couplage entre les deux modèles est supposé passif dans le sens où on suppose que les espèces aqueuses sont suffisamment diluées pour que les variations de densité du fluide soient négligeables. Ainsi, le champ de vitesse de l'écoulement peut être résolu indépendamment via l'équation 1.4 puis utilisé dans l'équation 1.11 pour déterminer les concentrations de chaque espèce. Avec cette hypothèse d'incompressibilité, l'équation 1.11 devient

$$\frac{\partial C_k}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C_k = D_k \Delta C_k + \mathcal{R}_k \quad \text{dans } V_p \quad (1.14)$$

De manière similaire à l'adimensionnalisation de l'équation de conservation de la quantité de mouvement 1.6, si on introduit une concentration de référence C_{ref} , une longueur de caractéristique de diffusion L , une vitesse de référence caractéristique U , on peut alors définir un temps caractéristique de diffusion et transformer l'équation (1.14) en :

$$\frac{\partial C_k^*}{\partial t^*} + \text{Pe } \mathbf{u}^* \cdot \nabla C_k^* = \Delta C_k^* + \mathcal{R}_k^* \quad \text{dans } V_p \quad (1.15)$$

où Pe est le nombre de Péclet qui représente le rapport entre le transfert par advection et celui par diffusion.

$$\text{Pe} = \frac{UL}{D_k} \quad (1.16)$$

et $\mathcal{R}_k^* = L^2/(D_k C_{ref})\mathcal{R}_k$. Pour les écoulements de fluides qui sont le siège de transport par diffusion, on peut également définir une autre grandeur qui est le rapport entre la viscosité et le coefficient de diffusion. C'est le nombre de Schmidt Sc , qui peut donc être défini pour chaque espèce k :

$$\text{Sc}_k = \frac{\nu}{D_k} \quad (1.17)$$

Pour que l'équation du transport de masse soit complète, nous devons maintenant préciser l'expression des termes sources \mathcal{R}_k et \tilde{I}_{kj} qui apparaissent respectivement dans les équations (1.11) et (1.13). Pour cela, nous allons introduire des équations qui décrivent les interactions chimiques entre espèces dans la partie suivante.

1.3.3 Réactions chimiques

Une réaction chimique peut être définie comme le processus par lequel des espèces chimie appelées réactifs interagissent pour former de nouvelles espèces appelées produits. Elle est décrite par les coefficients stoechiométriques de chaque espèce chimie consommée ou produite par la réaction [79] :

$$\sum_{l=1}^{N_r} \chi_l \mathcal{R}_l \rightleftharpoons \sum_{k=1}^{N_p} \chi'_k \mathcal{P}_k \quad (1.18)$$

- χ_l et χ'_k sont respectivement les coefficients stoechiométriques des réactifs et des produits.
- \mathcal{R}, \mathcal{P} sont les réactifs et les produits de nombre N_r et N_p respectivement.

L'ensemble des N_R réactions et de $N = N_r + N_p$ espèces forme un système chimique que l'on peut décrire sous la forme :

$$\sum_{l=1}^{N_r} \chi_{l,n} \mathcal{R}_l \rightleftharpoons \sum_{k=1}^{N_p} \chi'_{k,n} \mathcal{P}_k \quad (n = 1, \dots, N_R) \quad (1.19)$$

1.3.3.1 Classifications des réactions

La nature des réactions chimiques affectant le transport de masse peut avoir un effet profond sur la formulation mathématique des problèmes de transport réactif. En effet, la diversité des formulations mathématiques est principalement liée aux propriétés des réactions chimiques et à leur classification. Il existe plusieurs manières pour classer les réactions chimiques.

Une première manière de classer ces réactions est de distinguer les réactions dites **homogènes** (ou monophasiques) comme étant celles qui impliquent des espèces présentes uniquement dans la même phase. À l'inverse on distingue alors les réactions dites **hétérogènes** (ou multiphasiques) si elles font intervenir des espèces présentes dans deux phases ou plus [76, 80].

À titre d'exemple, les réactions suivantes sont respectivement homogène et hétérogène.



La première implique seulement des éléments dissous tandis que la seconde implique un solide (CaCO_3), un gaz et une solution. Il est important de noter que dans le cas de réactions dites hétérogènes, il existe des interfaces entre les différentes phases.

Une autre classification consiste à diviser les réactions en **rapides** et **lentes**. Les adjectifs rapide et lent ne font pas référence à la vitesse réelle de la réaction mais à sa vitesse intrinsèque [81]. La vitesse intrinsèque d'une réaction est la vitesse que la réaction aurait loin de l'équilibre sans tenir compte du taux de formation des réactifs et d'élimination des produits par advection et diffusion. Les réactions rapides sont des réactions considérées comme instantanément à l'équilibre et dont la vitesse est en fait contrôlée par la vitesse de transport [79, 82] par advection et diffusion.

Contrairement aux réactions rapides, les réactions dites lentes sont des processus qui nécessitent une loi cinétique pour décrire la vitesse de réaction contrôlée par les réactions de surface. Les réactions homogènes qui ont lieu en phase aqueuse sont généralement considérées comme rapides tandis que les réactions hétérogènes sont considérées comme lentes [79].

1.3.3.2 Bilan de masse

Si on considère un ensemble de N_R réactions instantanées. La conservation de la masse entraîne que :

$$0 \rightleftharpoons \sum_{k=1}^N \chi_{k,j} C_k \quad (j = 1, \dots, N_R) \quad (1.22)$$

A l'équilibre thermodynamique, les espèces vérifient la loi de conservation de la masse qui pour un système dilué se traduit sous la forme d'une constante d'équilibre donnée par

$$\prod_{k=1}^{k=N} C_k^{\chi_k} = K_{eq} \quad (1.23)$$

1.3.3.3 Expression des termes sources réactives

Le taux r_j d'une réaction détermine la vitesse à laquelle les réactifs se transforment en produits. C'est la vitesse de disparition ou production de chacune des espèces de cette réaction. Si on symbolise par δ la variation liée à une réaction, on a alors :

$$r_j = \frac{1}{\chi_{k,j}} \frac{\delta C_k}{\delta t} \quad (1.24)$$

Dès lors, la variation de concentration d'une espèce k se calcule via la contribution de chaque réaction j . Le terme source intervenant dans l'équation de transport 1.11 s'écrit donc [79] :

$$\mathcal{R}_k = \sum_{j=1}^{j=N_R} \chi_{kj} r_j \quad (1.25)$$

Pour un minéral noté m , l'absence de flux implique que l'équation de transport 1.14 se résume simplement à :

$$\frac{\partial C_m}{\partial t} = \sum_{j=1}^{j=N_R} \chi_{mj} r_m = \frac{1}{V_M} \frac{\partial \epsilon_m}{\partial t} \quad (1.26)$$

où V_M est le volume molaire du solide et ϵ est la fraction de volume solide.

1.3.3.4 Taux de réactions

Considérons une réaction hétérogène entre une solution aqueuse et un minéral. La distribution spatiale de ce minéral change en fonction du temps suivant les zones de précipitation et de dissolution. La dissolution ne peut se produire qu'en certains points de l'espace si le minéral est présent, tandis que la précipitation peut avoir lieu quelque soit la zone considérée dans la solution. Ainsi, pour un minéral m avec un nombre total de N espèces, la loi cinétique d'une réaction lente est donnée par [79, 83] :

$$I_{mj} = -ks_m \left(1 - K_{eq} \prod_{k=1}^{k=N} (C_l)^{X_k} \right) \quad (1.27)$$

- I_{jm} est le flux de la réaction j pour un minérale m [mol s^{-1}].
- s_m est la surface de minéral participant à la réaction [m^2].
- k_j est la vitesse de réaction [m s^{-1}].

En particulier, dans le cas d'une seule espèce k et une seule réaction, l'équation (1.27) s'écrit [84, 85] :

$$\tilde{I}_{jm} = \frac{I_m}{s_m} = -k (C_k - C_{keq})^\beta \quad (1.28)$$

où β est l'ordre de la réaction et C_{keq} est la concentration d'équilibre qui détermine la saturation ou pas du milieu par l'espèce k .

Ainsi, pour une réaction hétérogène d'ordre 1, faisant intervenir une seule espèce k , la condition aux limites 1.13 s'écrit :

$$D_k \nabla C_k \cdot \mathbf{n} = k (C_k - C_{keq}) \quad (1.29)$$

Il est à noter qu'en utilisant l'adimensionalisation via les gradeurs caractéristiques définies dans la section 1.3.2, cette condition limite s'écrit :

$$\nabla C_k^* \cdot \mathbf{n} = \text{Da} (C_k^* - C_{keq}^*) \quad (1.30)$$

où le nombre de Damköhler Da compare le temps caractéristique de la réaction à celui de la diffusion,

$$\text{Da} = \frac{kL}{D_k} \quad (1.31)$$

1.4 Méthode de Boltzmann sur réseau pour un écoulement

La méthode de Boltzmann sur réseau est un développement des automates cellulaires décrits par [86] basée sur la théorie cinétique des gaz. Cette théorie vise à expliquer le comportement macroscopique d'une matière à partir des caractéristiques du mouvement des particules¹ qui la composent. Elle donne une description fine d'un fluide où l'on suit l'évolution de la distribution des particules constitutives dans l'espace des coordonnées et des vitesses [87]. La variable fondamentale de la théorie cinétique est la fonction de distribution des particules, aussi appelée population, notée $f(\mathbf{x}, \mathbf{c}, t)$. Elle représente la probabilité d'existence d'une particule de vitesse \mathbf{c} à la position \mathbf{x} et au temps t . Les propriétés macroscopiques (telles que pression, densité du

1. Dans ce qui suit, le terme "particule" fait référence à une collection de particules, car le comportement d'une collection de particules est considéré comme une unité.

fluide et vitesse) peuvent être obtenues à partir de ces fonctions de distribution.

Nous nous intéressons à la méthode Boltzmann sur réseau car elle présente un certain nombre de caractéristiques qui diffèrent de celles des méthodes traditionnelles de dynamique des fluides. Il s'agit d'une méthode numérique puissante en hydrodynamique et hautement parallélisable. Elle est connue par sa simplicité, son extensibilité, sa performance dans la modélisation des interactions dans le fluide lui-même et à l'interface fluide-solide au sein des structures des géométries complexes, telles que celles qui se produisent dans les milieux poreux.

Dans cette section, nous décrivons les détails de la LBM, y compris son principe, la dérivation de ces équations numériques et la mise en oeuvre des conditions aux limites.

1.4.1 Equation de transport de Boltzmann

Soumise à une force externe par unité de volume \mathbf{F} [$N m^{-3}$], la particule change de vitesse de \mathbf{c} à $\mathbf{c} + d\mathbf{c}$ et de position de \mathbf{x} à $\mathbf{x} + d\mathbf{x}$. La figure 1.3 schématise l'effet de \mathbf{F} sur la particule.

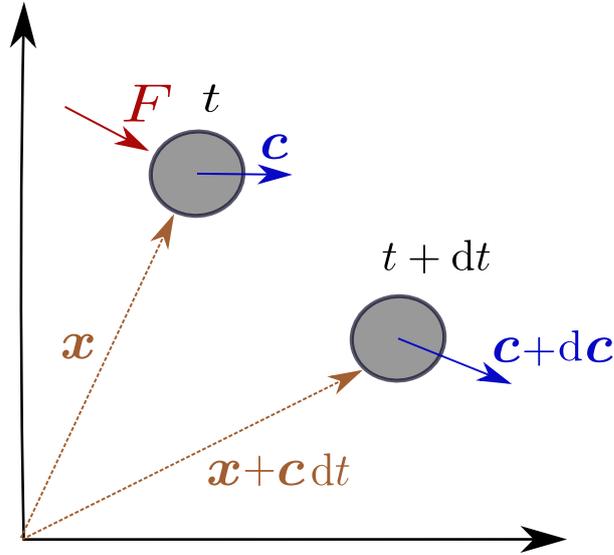


Figure 1.3 – Déplacement de la particule sous l'effet \mathbf{F}

La densité de masse de la particule $f(\mathbf{x}, \mathbf{c}, t)$ avant d'appliquer la force extérieure est égale à la densité de masse après la perturbation $f(\mathbf{x} + \mathbf{c} dt, \mathbf{c} + \mathbf{F}dt, t + dt)$, s'il n'y a pas de collision.

$$f(\mathbf{x} + \mathbf{c} dt, \mathbf{c} + \mathbf{F}dt, t + dt)d\mathbf{x}d\mathbf{c} - f(\mathbf{x}, \mathbf{c}, t)d\mathbf{x}d\mathbf{c} = 0 \quad (1.32)$$

S'il y a des collisions entre les particules, le taux de changement entre l'état final et l'état initial de la fonction de distribution est appelé l'opérateur de collision \mathcal{O} et nous avons par

conséquent [88],

$$f(\mathbf{x} + \mathbf{c} dt, \mathbf{c} + \mathbf{F} dt, t + dt) d\mathbf{x} d\mathbf{c} - f(\mathbf{x}, \mathbf{c}, t) d\mathbf{x} d\mathbf{c} = \mathcal{O}(f) d\mathbf{x} d\mathbf{c} dt \quad (1.33)$$

Pour simplifier la notation dans ce qui suit, $f(\mathbf{x}, \mathbf{c}, t)$ est remplacée par f .

La division de l'équation (1.33) par $dt d\mathbf{x} d\mathbf{c}$ implique :

$$\begin{aligned} \frac{df}{dt} = \mathcal{O}(f) & \iff \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right) \frac{dt}{dt} + \left(\frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} \right) \frac{d\mathbf{x}}{dt} + \left(\frac{\partial f}{\partial \mathbf{c}} \right) \frac{d\mathbf{c}}{dt} = \mathcal{O}(f) \\ & \iff \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} \cdot \mathbf{c} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{c}} \cdot \frac{\mathbf{F}}{\rho} = \mathcal{O}(f) \end{aligned} \quad (1.34)$$

L'équation (1.34) est l'équation de transport de Boltzmann. Elle décrit l'évolution temporelle de la fonction de distribution. En cas d'absence de force extérieure ($\mathbf{F} = \mathbf{0}$), l'équation (1.34) s'écrit :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{c} \cdot \nabla f = 0 \quad (1.35)$$

1.4.2 Equation de Boltzmann sur réseau

L'équation de Boltzmann peut être discrétisée dans l'espace et dans le temps sur des grilles régulières appelées réseaux. Dans ce paragraphe, nous présentons la dérivation de l'équation de lattice Boltzmann (LBE) en discrétisant l'équation de Boltzmann en deux étapes.

1. Discrétisation de l'espace de vitesse où la vitesse de particule \mathbf{c} se limite à un ensemble discret de vitesses \mathbf{c}_i .
2. Discrétisation spatiale et temporelle.

Discrétisation de l'espace des vitesses

Un réseau est l'ensemble des vitesses discrètes noté par DdQq où d représente la dimension de l'espace (1D, 2D ou 3D) et q représente le nombre des vitesses discrètes. Il définit les directions i dans lesquelles une particule peut se déplacer de sa position à la position voisine. La figure 1.4 illustre les réseaux D2Q5, D2Q9 et D3Q15. Chaque vitesse discrète a un poids ou un coefficient de pondération noté w_i différent d'un réseau à un autre. Le tableau 1.1 présente les w_i des réseaux illustrés.

Les ensembles de vitesse obéissent à certaines conditions générales lors de leur construction. En effet, les réseaux construits doivent vérifier les critères de conservation de la masse et de la quantité de mouvement mais aussi d'isotropie rotationnelle². Ces relations de conservation

2. L'isotropie du réseau est l'existence d'un ensemble unique de moment de vitesse. Cette unicité n'existe que jusqu'à certain ordre. L'ordre de l'isotropie est l'ordre du moment jusqu'à lequel des valeurs unique existe [5].

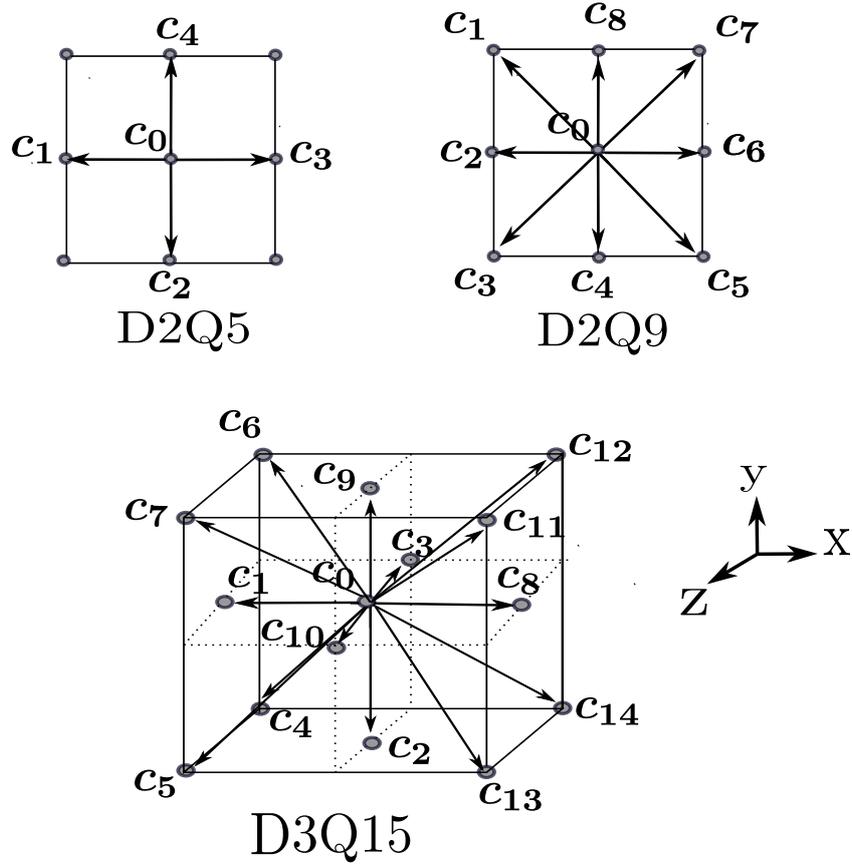


Figure 1.4 – Réseaux D2Q5 et D2Q9 et D3Q15

s'écrivent : [89–91] :

$$\begin{aligned}
 \sum_i w_i &= 1 \\
 \sum_i w_i c_{i\alpha} &= 0 \\
 \sum_i w_i c_{i\alpha} c_{i\beta} &= c_s^2 \delta_{\alpha\beta} \\
 \sum_i w_i c_{i\alpha} c_{i\beta} c_{i\gamma} &= 0 \\
 \sum_i w_i c_{i\alpha} c_{i\beta} c_{i\gamma} c_{i\mu} &= c_s^4 (\delta_{\alpha\beta} \delta_{\gamma\mu} + \delta_{\alpha\gamma} \delta_{\beta\mu} + \delta_{\alpha\mu} \delta_{\beta\gamma}) \\
 \sum_i w_i c_{i\alpha} c_{i\beta} c_{i\gamma} c_{i\mu} c_{i\nu} &= 0
 \end{aligned} \tag{1.36}$$

Dans les équation précédentes, i représente la direction du réseau tandis que $\alpha, \beta, \gamma, \mu, \nu$ désignent les directions de l'espace suivant x, y ou z et c_s désigne la vitesse du son définie par $c_s = \frac{c}{\sqrt{3}}$ pour les réseaux D2Q5, D2Q9 et D3Q15 [92] tel que $c = \frac{\Delta x}{\Delta t}$ ou Δx et Δt sont les pas de discrétisation spatial et temporel de la méthode LBM, tels que nous allons les définir dans

la suite.

La discrétisation de l'espace des vitesses nous permet de définir la fonction de distribution de vitesse discrète $f_i(\mathbf{x}, t)$ appelée souvent la population de particules qui représente la densité des particules de vitesse \mathbf{c}_i à la position \mathbf{x} et au temps t . La densité de masse et la densité de quantité de mouvement à (\mathbf{x}, t) peuvent être déterminées à travers les deux premiers moments de f_i .

$$\rho(\mathbf{x}, t) = \sum_i f_i(\mathbf{x}, t), \quad \rho \mathbf{u}(\mathbf{x}, t) = \sum_i \mathbf{c}_i f_i(\mathbf{x}, t) \quad (1.37)$$

Il est à noter que pour retrouver les équations de Navier-Stokes via l'équation de Boltzmann discrétisée, le réseau D2Q9 est le réseau le plus simple, en terme de nombre de directions, qui le permet [93].

Discrétisation spatiale et temporelle

Après avoir discrétisé l'ensemble des vitesses, nous obtenons la version discrète de l'équation de Boltzmann suivante :

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} + \mathbf{c}_i \cdot \nabla f_i = \mathcal{O}_i(\mathbf{x}, t) \quad (1.38)$$

Ensuite, en utilisant la discrétisation de l'espace de coordonnées en 2D, $\Delta \mathbf{x} = (\Delta x ; \Delta y)$ avec $\Delta x = \Delta y$, et celle du temps, Δt , nous exprimons (1.38) par le développement de Taylor :

$$\begin{aligned} & \frac{f_i(\mathbf{x}, t + \Delta t) - f_i(\mathbf{x}, t)}{\Delta t} + \mathbf{c}_i \cdot \frac{f_i(\mathbf{x} + \Delta \mathbf{x}, t + \Delta t) - f_i(\mathbf{x}, t + \Delta t)}{\Delta \mathbf{x}} = \mathcal{O}_i(\mathbf{x}, t) \\ \implies & \frac{f_i(\mathbf{x}, t + \Delta t) - f_i(\mathbf{x}, t)}{\Delta t} + \frac{f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) - f_i(\mathbf{x}, t + \Delta t)}{\Delta t} = \mathcal{O}_i(\mathbf{x}, t) \end{aligned} \quad (1.39)$$

D'où l'équation de Boltzmann sur réseau

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) - f_i(\mathbf{x}, t) = \Delta t \mathcal{O}_i(\mathbf{x}, t) \quad (1.40)$$

1.4.3 Opérateur de collision

Pour résoudre l'équation de transport de Boltzmann sur réseau, il faut déterminer l'expression de l'opérateur de collision \mathcal{O}_i . Cependant, cet opérateur prend une forme relativement complexe en s'écrivant comme une double intégrale sur l'espace des vitesses [93].

À cette fin, l'opérateur original est souvent approximé par un opérateur plus simple introduit par Bhatnagar, Gross et Krook [94, 95] et communément dénommé opérateur de collision BGK :

Réseaux	Vitesses \mathbf{c}_i	Poids w_i	
D2Q5	$\mathbf{c}_0 = (0, 0)$	2/6	
	$\mathbf{c}_1 = (-1, 0)$	1/6	
	$\mathbf{c}_2 = (0, -1)$		
	$\mathbf{c}_3 = (1, 0)$		
	$\mathbf{c}_4 = (0, 1)$		
D2Q9	$\mathbf{c}_0 = (0, 0)$	4/9	
	$\mathbf{c}_2 = (-1, 0)$	1/9	
	$\mathbf{c}_4 = (0, -1)$		
	$\mathbf{c}_6 = (1, 0)$		
	$\mathbf{c}_8 = (0, 1)$		
		$\mathbf{c}_1 = (-1, 1)$	1/36
		$\mathbf{c}_3 = (-1, -1)$	
		$\mathbf{c}_5 = (1, -1)$	
	$\mathbf{c}_7 = (1, 1)$		
D3Q15	$\mathbf{c}_0 = (0, 0, 0)$	2/9	
	$\mathbf{c}_1 = (-1, 0, 0)$	1/9	
	$\mathbf{c}_2 = (0, -1, 0)$		
	$\mathbf{c}_3 = (0, 0, -1)$		
	$\mathbf{c}_8 = (1, 0, 0)$		
	$\mathbf{c}_9 = (0, 1, 0)$		
		$\mathbf{c}_{10} = (0, 0, 1)$	1/72
		$\mathbf{c}_4 = (-1, -1, -1)$	
		$\mathbf{c}_5 = (-1, -1, 1)$	
		$\mathbf{c}_6 = (-1, 1, -1)$	
		$\mathbf{c}_7 = (-1, 1, 1)$	
		$\mathbf{c}_{11} = (1, 1, 1)$	
		$\mathbf{c}_{12} = (1, 1, -1)$	
		$\mathbf{c}_{13} = (1, -1, 1)$	
	$\mathbf{c}_{14} = (1, -1, -1)$		

Table 1.1 – Tableau des coefficients w_i des réseaux D2Q5, D2Q9 et D3Q15

$$\mathcal{O}_i(f) = -\frac{1}{\tau} (f_i - f_i^{\text{eq}}) \quad (1.41)$$

où τ est un temps de relaxation représentant le temps nécessaire à la fonction de distribution f pour atteindre une valeur d'équilibre [96] notée f^{eq} .

En remplaçant l'opérateur de collision dans l'équation (1.40) par son approximation BGK, on obtient alors l'équation de lattice Boltzman à un seul temps de relaxation (SRT : Single Relaxation Time) :

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) + \frac{\Delta t}{\tau} [f_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t) - f_i(\mathbf{x}, t)] \quad (1.42)$$

avec f_i^{eq} est la fonction d'équilibre discrétisée dont l'expression sera détaillée dans la section 1.4.4. La viscosité cinématique du fluide ν est liée au temps de relaxation τ , au pas de temps Δt et au pas d'espace Δx par la relation suivante :

$$\nu = c_s^2 \left(\tau - \frac{\Delta t}{2} \right) \quad (1.43)$$

où τ est le temps de relaxation et τ^* sa version adimensionnée par Δt . Il est alors nécessaire que le temps de relaxation $\tau^* > 0.5$ pour maintenir une viscosité positive.

En raison de sa linéarité, l'utilisation de cet opérateur est très répandue. Cependant, cette formulation présente certaines limitations comme par exemple une limitation liée à la valeur du nombre de Reynolds : elle est inappropriée pour les Re élevés [3, 97]. Elle présente aussi des limitation suivant le nombre de Prandtl, qui exprime le rapport entre les effets thermiques et visqueux. La méthode SRT impose une valeur fixe de ce nombre [96]. De plus, elle ne permet pas de caractériser précisément le comportement des fluides à forte viscosité près des parois du domaine car elle présente un saut de vitesse non physique aux limites du domaine [98]. Ces inconvénients ont donné naissance à d'autres familles de méthodes telles que : "Two Relaxation Time-TRT" [99] et "Multiple Relaxation Time-MRT" [100].

Dans la méthode TRT la fonction de distribution peut être divisée en deux parties : une partie symétrique donnée par [88] :

$$f^{\text{s}} = \frac{1}{2} (f_i + f_{-i}) \quad (1.44)$$

et une partie antisymétrique donnée par :

$$f_i^{\text{a}} = \frac{1}{2} (f_i - f_{-i}) \quad (1.45)$$

où la direction $-i$ est la direction opposée à la direction i . Ainsi f_i et f_{-i} sont les fonctions de distribution correspondant respectivement à la vitesse discrète \mathbf{c}_i et son opposée $-\mathbf{c}_i$. De cette définition nous obtenons [88] :

$$f_i = f_i^{\text{a}} + f_i^{\text{s}} \quad \text{et} \quad f_{-i} = f_i^{\text{a}} - f_i^{\text{s}} \implies f_i^{\text{a}} = -f_{-i}^{\text{a}} \quad \text{et} \quad f_i^{\text{s}} = f_{-i}^{\text{s}} \quad (1.46)$$

Le principe de la méthode de TRT est que les fonctions de distribution des particules sont relaxées séparément en utilisant deux temps de relaxation différents. L'équation de Boltzmann

à deux temps de relaxation (TRT) s'écrit :

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{\Delta t}{\tau_s} (f_i^s(\mathbf{x}, t) - f_i^{s,eq}) - \frac{\Delta t}{\tau_a} (f_i^a(\mathbf{x}, t) - f_i^{a,eq}) \quad (1.47)$$

Dans la méthode TRT, Δt est relié à la viscosité par [93]

$$\nu = c_s^2 \left(\tau_s - \frac{\Delta t}{2} \right)$$

où τ_a et τ_s sont les deux temps de relaxation. Si ces derniers sont égaux, l'équation (1.47) se réduit alors à l'équation SRT (1.42).

La méthode MRT est plus générale que les méthodes SRT et TRT. Dans MRT, l'opérateur de collision se présente sous la forme d'une matrice contenant plusieurs facteurs de relaxation. Ce qui impose un ordre de stabilité et de précision plus élevé que la SRT. Cependant, il a été démontré [98] qu'il existe une grande variété de conditions d'écoulement où la méthode SRT peut être utilisée avec succès, et que même si la MRT est très puissante, elle ne réussit pas toujours à surmonter toutes les lacunes des méthodes SRT. De plus, la MRT est plus lente que la SRT (le temps d'exécution est typiquement 10-20% plus long) [101] et nécessite l'utilisation de procédures numériques pour déterminer les facteurs de relaxation [3]. Dans ce travail, pour des raisons de simplification et pour un gain de temps de calcul, nous utilisons la méthode SRT (1.38) pour modéliser l'écoulement du fluide.

De manière générale dans la méthode LBM, un pas de temps est composé de deux étapes. Ainsi l'équation (1.38) se décompose en deux parties successives :

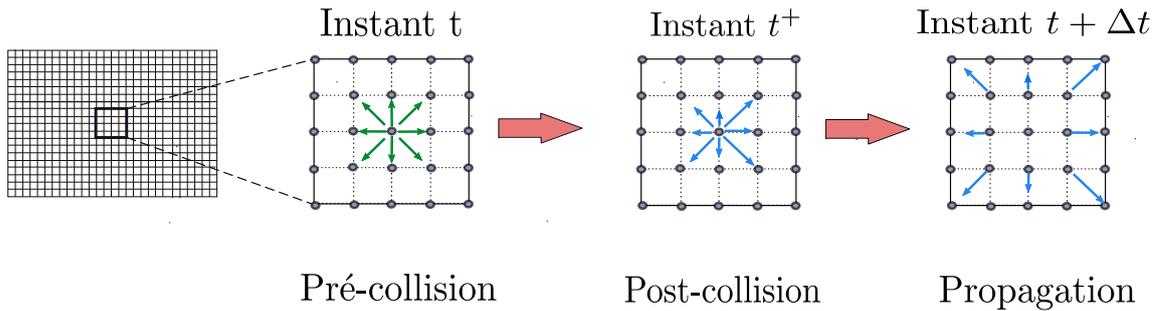


Figure 1.5 – Cycle LBM : schéma collision-propagation

1. une étape de collision

Dans cette étape, les particules entrent en collisions et tendent vers la fonction d'équilibre.

A l'issue de la collision, on se trouve au temps t^+ comme illustré sur la figure 1.5.

$$f_i(\mathbf{x}, t^+) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{\Delta t}{\tau} (f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)) \quad (1.48)$$

2. une étape de propagation : après collision, la fonction de distribution f se propage aux nœuds voisins suivant la direction de leur vitesse (voir figure 1.5). Cela s'écrit sous la forme :

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t^+) \quad (1.49)$$

Ces deux opérations forment un cycle LBM.

Un écoulement ayant une vitesse maximal U_{max} est qualifié de (quasi) incompressible ou légèrement compressible si le nombre de Mach $Ma = \frac{U_{max}}{c_s}$ qui définit le rapport entre les forces liées au mouvement et la compressibilité du fluide est suffisamment faible ($Ma < 0,1-0,3$). La pression du fluide est déterminée par l'équation d'état :

$$P = \rho c_s^2 \quad (1.50)$$

1.4.4 Fonction d'équilibre

La fonction de distribution à l'équilibre la plus couramment utilisée est la distribution de Maxwell-Boltzmann [96]. L'expression de f^{eq} dans un espace de dimension "d" est donnée par :

$$f^{eq}(|\mathbf{v}|) = \rho \left(\frac{1}{2\pi RT} \right)^{\frac{d}{2}} e^{\left(-\frac{|\mathbf{v}|^2}{2RT} \right)} \quad (1.51)$$

- R est la constante des gaz parfaits .
- T est la température.
- $\mathbf{v} = \mathbf{c} - \mathbf{u}$ est la déviation de la vitesse de la particule par rapport à la vitesse moyenne locale.

La démonstration de l'équation (1.51) est fournie en annexe A.

Connaissant l'expression de la fonction de distribution d'équilibre f^{eq} équation (1.51), la version discrète f_i^{eq} peut être exprimée.

$$\begin{aligned} f^{eq} &= \rho \left(\frac{1}{2\pi RT} \right)^{\frac{d}{2}} e^{\left(-\frac{|\mathbf{c}-\mathbf{u}|^2}{2RT} \right)} \\ &= \rho \left(\frac{1}{2\pi RT} \right)^{\frac{d}{2}} e^{\left(-\frac{\mathbf{c}^2}{2RT} \right)} e^{\left(\frac{(\mathbf{c}\cdot\mathbf{u})}{RT} - \frac{\mathbf{u}^2}{2RT} \right)} \\ &= \rho \left(\frac{1}{2\pi RT} \right)^{\frac{d}{2}} e^{\left(-\frac{\mathbf{c}^2}{2RT} \right)} \left[1 + \frac{(\mathbf{c}\cdot\mathbf{u})}{RT} + \frac{(\mathbf{c}\cdot\mathbf{u})^2}{2(RT)^2} - \frac{\mathbf{u}^2}{2T} \right] + \mathcal{O}(\mathbf{u}^3) \end{aligned}$$

(Le développement de Taylor d'ordre 2 de la série $e^{-x} = 1 - x + \frac{x^2}{2} + \mathcal{O}(x^3)$)

La fonction de distribution d'équilibre discrète est ensuite projetée sur la base des polynômes d'Hermite à l'ordre 2 pour avoir la forme générale suivante [102] :

$$f_i^{eq} = w_i \rho \left(1 + \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{c}_i}{c_s^2} + \frac{(\mathbf{u} \cdot \mathbf{c}_i)^2}{2c_s^4} + \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}}{2c_s^2} \right) \quad (1.52)$$

Les lecteurs intéressés pourront consulter la référence [93] pour plus de détails.

1.4.5 Conditions aux limites

Comme nous l'avons vu précédemment, les écoulements de fluide et le transport de masse sont régis par des équations aux dérivées partielles, décrivant la conservation de la masse, de la quantité de mouvement. Pour résoudre ces équations et déterminer les solutions de façon unique, des conditions aux limites doivent être spécifiées. En général, les conditions aux limites sur les frontières obéissent à la formulation générale :

$$b_1 \frac{\partial \mathcal{Q}(\mathbf{x}_b, t)}{\partial \mathbf{n}} + b_2 \mathcal{Q}(\mathbf{x}_b, t) = b_3 \quad (1.53)$$

- b_1, b_2 et b_3 sont des constantes.
- \mathbf{x}_b est la position de la frontière.
- \mathcal{Q} une quantité (telle qu'une concentration, une pression ou une vitesse)

En fonction des différentes valeurs de b_1, b_2 et b_3 les conditions aux limites peuvent être classées en trois catégories [25, 93] :

- Condition de Dirichlet obtenue si $\forall b_3, b_1 = 0$ et $b_2 \neq 0$. Cette condition consiste à imposer une quantité constante aux bords.
- Condition de Neumann obtenue si $\forall b_3, b_1 \neq 0$ et $b_2 = 0$. Elle permet de fixer un flux normal aux bords.
- Condition de Robin obtenue si $\forall b_3, b_1$ et $b_2 \neq 0$. Elle établit une relation entre une quantité et son flux normal aux bords.

L'importance des conditions aux limites réside dans le fait qu'elles affectent le comportement de l'ensemble du système malgré leur application à une partie particulière du domaine du fluide. Par conséquent, elles doivent être traitées avec un soin particulier.

Dans la LBM, l'étape de collision ne pose pas de problème particulier. Mais après l'étape de propagation, certaines fonctions de distribution sur les bords du maillage sont inconnues. En effet, les fonctions venant de l'extérieur du réseau ne sont pas spécifiées par l'équation de Boltzmann sur ce réseau. A titre d'exemple, dans le cadre d'un réseau D2Q9, ces fonctions

inconnues sont représentées sur la figure 1.6.

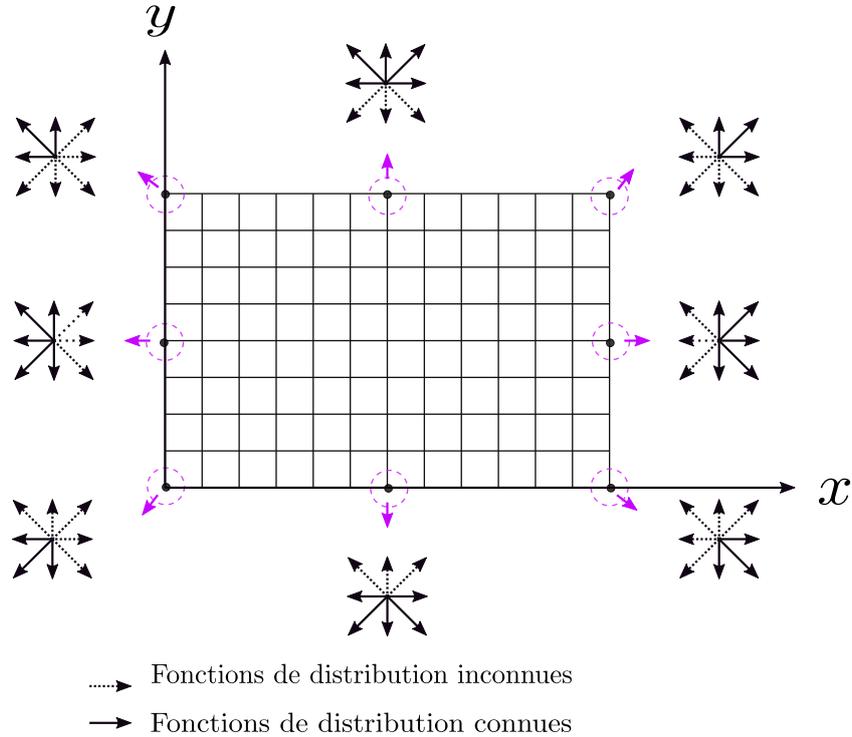


Figure 1.6 – Schéma des fonctions de distribution inconnues dans le cadre d'un réseau D2Q9

La difficulté des conditions aux limites dans la LBM est qu'elles sont imposées aux variables macroscopiques ρ , \mathbf{u} et qu'il n'est pas toujours évident de les transmettre aux variables mésoscopiques f_i [93]. Pour exprimer la même condition aux limites sur une quantité macroscopique, plusieurs conditions aux limites LB ont été développées. La diversité des schémas possibles a donné lieu à une littérature très variée sur le sujet [103–106].

Dans cette thèse, nous nous limitons au cas de frontières alignées avec les nœuds du réseau. Ainsi pour considérer des interfaces courbes, une approximation en escalier sera utilisée [93].

Sites soumis aux conditions limites

Afin de formuler les conditions aux limites, il est d'abord nécessaire d'identifier les sites sur lesquels ces conditions sont susceptibles d'être imposées.

Suite à la discrétisation du milieu continu, trois types de nœuds peuvent être distingués.

1. Les nœuds fluides où l'équation de lattice Boltzmann est résolue.
2. Les nœuds solides qui font référence à la matrice solide et n'interviennent pas dans la résolution.

3. Les noeuds frontières lient les noeuds fluides et solides.

Les conditions limites sont appliquées aux noeuds frontières (comme les interfaces solide-fluide Γ_{sf} de la figure 1) ainsi qu'aux noeuds de fluide en bordure du réseau (comme à l'entrée, à la sortie et aux bords supérieur et inférieur).

Position de la frontière

Les conditions aux limites sont forcément liées à la position de la frontière et à la discrétisation du domaine du fluide. Dans la littérature, deux méthodes sont possibles pour localiser la frontière vue par la LBM par rapport à la frontière physique réelle. Ainsi, les conditions aux limites utilisées dans la LBM peuvent être regroupées en deux familles [88] :

1. **Link wise** où les noeuds sont localisés au centre de chaque maille. La frontière LB est décalée approximativement de mi-distance ($\frac{\Delta x}{2}$) de la frontière physique.
2. **Wet node** où la frontière LB et la frontière physique sont confondues. La frontière LB est considérée comme étant infiniment proche de la frontière réelle, mais toujours dans le domaine des fluides.

Les deux représentations sont illustrées dans la figure 1.7. Il est clair que le nombre de noeuds diffère entre les deux conceptions. Sur la base de ce concept, nous présentons dans la suite deux conditions de rebonds de type " link-wise " et autres conditions de types " wet node".

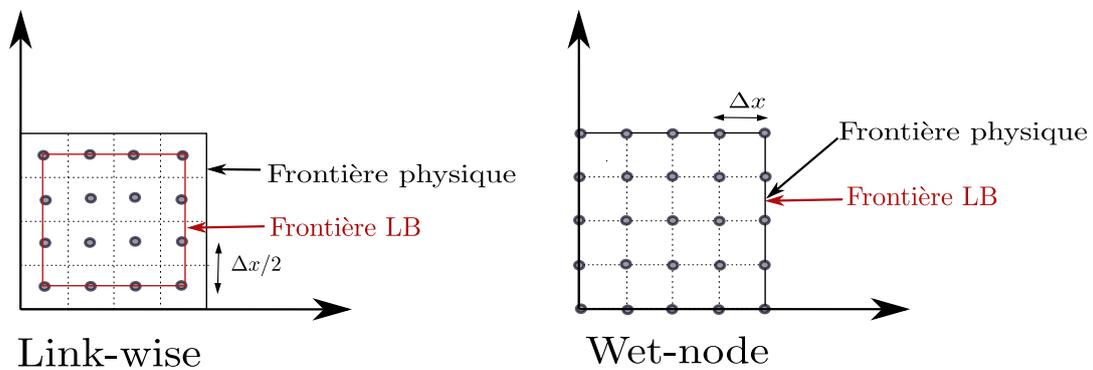


Figure 1.7 – Discretisation du domaine de simulation

1.4.5.1 Conditions aux limites de rebond ou " Bounce back "

Les conditions aux limites de rebond ont été principalement utilisées pour modéliser les parois imperméables en raison de leur simplicité de mise en œuvre. Elles consistent à considérer que, lorsqu'une fonction de distribution rencontre une paroi immobile, elle repart en suivant une direction et vitesse opposées. Physiquement, le rebond des particules signifie qu'il n'y a pas

de flux à travers la frontière et que le fluide ne glisse pas sur cette paroi.

Le schéma de rebond peut se réaliser de deux façons différentes :

— **Rebond complet ou "Full way bounce-back"**

Pendant l'intervalle Δt , les particules parcourent un trajet complet du noeud frontière au noeud solide comme illustré sur la figure 1.8. Puis, lors de l'étape de collision suivante, elles rebondissent. Ce rebond complet modifie l'étape de collision aux noeuds solides, mais laisse l'étape de streaming habituelle inchangée [87, 93]. Dans ce schéma, toutes les fonctions f_i arrivant sur le noeud frontière rebondissent, pas seulement celles dans la direction normale. Il suffit de vérifier si l'on se trouve sur un noeud solide ou non, sans savoir où se propage chaque population.

— **Rebond à mi-chemin ou "Half way bounce-back"**

Dans cette deuxième méthode, les particules ne parcourent que la moitié de la distance de liaison (c'est à dire $\frac{\Delta x}{2}$). Les particules dans les directions inconnues rebondissent pendant l'étape de propagation comme illustré sur la figure 1.8. Le rebond modifie l'étape de propagation et laisse invariable l'étape de collision. L'information ne nécessite qu'un seul pas de temps pour être saisie. Cela rend cette condition plus précise pour le cas des écoulements instationnaires [107].

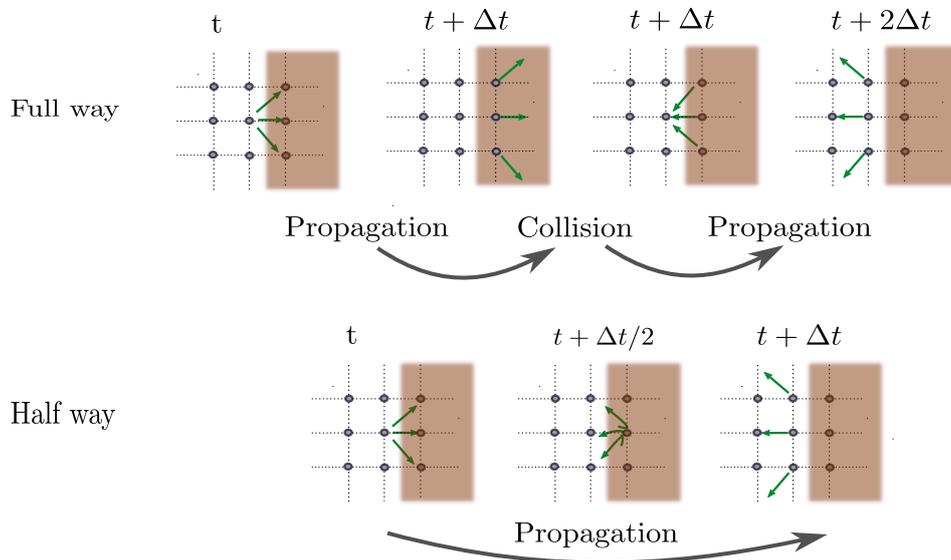


Figure 1.8 – Représentation du "Full way bounce-back" et "Half way bounce-back" en fonction du temps

Vu que dans les 2 méthodes "Half way" et "Full way" les noeuds frontières sont considérés à mi-distance de la frontière, ces méthodes sont classées dans la famille "Link wise".

D'autre part, il existe d'autres approches où la frontière LB est localisée sur la frontière réelle. Elles sont classées dans la catégorie "Wet node" car les nœuds localisés sur la frontière font partie du domaine du fluide et suivent un schéma de collision-propagation. Nous présentons ci-après les approches les plus utilisées dans la littérature.

1.4.5.2 Conditions aux limites d'Inamuro

Dans cette méthode, toutes les fonctions de distribution à la frontière sont considérées comme inconnues f_i et en équilibre thermodynamique local. Par conséquent, elles sont remplacées par la distribution d'équilibre f_i^{eq} en utilisant une densité ρ' et une vitesse $\mathbf{u}' = \mathbf{u} + \underbrace{\mathbf{s}}_{\text{slip velocity}}$ différentes de ρ et \mathbf{u} telle que [103, 106] :

$$f_i(\mathbf{x}_b, t) = f_i^{eq}(\rho', \mathbf{u}') \quad (1.54)$$

La composante normale de \mathbf{s} étant nulle, les inconnues sont la composante tangentielle de \mathbf{s} et ρ' calculée à partir de

$$\rho \mathbf{u} = \sum_i \mathbf{c}_i f_i \quad (1.55)$$

Bien que cette méthode ait été utilisée avec succès, elle présente quelques difficultés dans le traitement des coins du domaine [96]. De plus, l'extension à 3 dimensions est compliquée car le nombre d'inconnues devient plus grand et nécessitent la résolution d'une équation implicite à chaque étape d'itération de la méthode [106].

1.4.5.3 Conditions aux limites de Guo

Le schéma mentionné ci-dessus néglige la partie non-équilibrée des fonctions de distribution. Guo et al. envisagent une nouvelle méthode pour impliquer (f^{neq}) dans le calcul, connue sous le nom de schéma d'extrapolation hors équilibre. Dans ce schéma, la partie hors équilibre est extrapolée à partir de la région fluide où les f^{neq} sont connues [108].

$$f_i(\mathbf{x}_b, t) = f_i^{eq}(\rho_{\text{wall}}, \mathbf{u}_{\text{wall}}) + (f_i(\mathbf{x}_f, t) - f_i^{eq}(\rho_f, \mathbf{u}_f)) \quad (1.56)$$

La partie hors équilibre dépend du nœud fluide \mathbf{x}_f voisin de \mathbf{x}_b suivant le vecteur normal aux bords.

1.4.5.4 Conditions aux limites de Zou/He

Il s'agit d'une condition très populaire utilisée pour imposer les conditions aux limites de pression ou de vitesse (conditions de Dirichlet) [104]. Cette méthode est basée sur le principe du rebond des parties hors équilibre des fonctions de distributions inconnues.

$$f_i^{\text{neq}}(\mathbf{x}_b, t + \Delta t) = f_{-i}^{\text{neq}}(\mathbf{x}_b, t^+) \quad (1.57)$$

Contrairement aux conditions de Guo et d'Inamuro décrites précédemment, ce schéma ne calcule que les fonctions de distribution inconnues. Les autres fonctions de distribution ne sont donc pas modifiées.

A titre d'exemple, pour une pression imposée à l'entrée gauche du domaine présenté dans la figure 1.6, les principales étapes de cette condition sont :

- Identifier les populations manquantes. Pour un réseau D2Q9, les fonctions de distributions f_5 , f_6 et f_7 sont inconnues à l'entrée du domaine comme le montre la figure 1.6.
- La pression étant imposée à travers la densité, la vitesse peut donc être déterminée à partir des moments des fonctions de distribution :

$$\begin{aligned} f_5 + f_6 + f_7 &= \rho - (f_0 + f_1 + f_2 + f_3 + f_4 + f_8) \\ f_5 + f_6 + f_7 &= \rho u_x + (f_1 + f_2 + f_3) \\ f_7 - f_5 &= \rho u_y - f_1 + f_3 + f_4 - f_8 \end{aligned} \quad (1.58)$$

Ainsi

$$u_x = 1 - \frac{1}{\rho} [f_0 + f_8 + f_4 + 2(f_1 + f_2 + f_3)] \quad (1.59)$$

Une procédure similaire est suivie si la vitesse est imposée.

Le tableau 1.2 résume les différentes conditions aux limites mentionnées et présente les avantages et inconvénients que nous avons soulevés.

Classification	Conditions aux limites	Remplace tous les f_i	Ordre de précision	Avantages	Inconvénients
Link wise	Full way BB [87]	Oui	2 ^{ème}	<ul style="list-style-type: none"> - Le traitement des frontières est indépendant de la direction de f_i. - Le temps d'exécution est plus court 	<ul style="list-style-type: none"> - L'information a besoin de $2\Delta t$ pour se propager ce qui dégrade la précision temporelle de la solution dans les problèmes transitoires. - Nécessite le traitement des nœuds solides où les populations sont stockées.
	Half way BB [107]	non	2 ^{ème}	<ul style="list-style-type: none"> - Plus précis que le Full way BB pour les écoulements instationnaires 	<ul style="list-style-type: none"> - Nécessite la connaissance des directions des populations qui doit rebondir à chaque pas de temps
	Inamuro [103]	Oui	3 ^{ème}	<ul style="list-style-type: none"> - Plus précis que les schéma de rebond pour imposer la condition de non-glissement au paroi en 2D 	<ul style="list-style-type: none"> - Difficile à gérer les coins. - Complicé à l'étendre en 3D
Wet node	Guo [108]	Oui	2 ^{ème}	-	-
	Zou/He [104]	Non	3 ^{ème}	<ul style="list-style-type: none"> - Méthodes très populaires dans les modèles de transport réactif - L'ordre de précision de ce schéma ne dépend pas du temps de relaxation 	<ul style="list-style-type: none"> - Ne peut pas être appliqué au problème où Re est élevé

Table 1.2 – Comparaison des différentes approches des conditions aux limites

1.5 Méthode de Boltzmann sur réseau pour le transport réactif

Comme nous venons de le voir dans la section précédente, la méthode LBM permet de modéliser les équations de Navier-Stokes. Cette méthode permet également de simuler un problème d'advection-diffusion. En effet, les équations de Navier-Stokes et d'advection-diffusion sont très similaires puisque les deux équations sont basées sur le principe de la conservation d'une quantité : la quantité de mouvement pour l'équation de Navier-Stokes ou une concentration pour l'équation d'advection-diffusion. Dans cette section, nous présentons la méthode de Boltzmann sur réseau pour la simulation d'un problème de transport d'une et plusieurs espèces.

1.5.1 Équation de Boltzmann sur réseau pour le transport réactif d'une seule composante

Il est évident de dériver l'équation d'advection-diffusion (1.11) d'une seule espèce à partir de l'équation de Navier-Stokes avec terme source :

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho\mathbf{u})}{\partial t} + \rho\mathbf{u}(\nabla \cdot \mathbf{u}) &= -\nabla p + \mu\Delta\mathbf{u} + \mathbf{F} \\ \implies \frac{\partial(\rho\mathbf{u})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}\mathbf{u} + P\mathbf{I}) &= \mu\Delta\mathbf{u} + \mathbf{F} \end{aligned} \quad (1.60)$$

En remplaçant

$$\rho\mathbf{u} \rightarrow C_k, \quad \rho\mathbf{u}\mathbf{u} + P\mathbf{I} \rightarrow C_k\mathbf{u}, \quad \nu \rightarrow D, \quad \mathbf{F} \rightarrow \mathcal{R}_k \quad (1.61)$$

avec \mathbf{I} tenseur unité et \mathbf{F} force externe exercée sur le fluide.

En effet, l'équation de Navier-Stokes peut être interprétée comme une simple advection-diffusion de la quantité de mouvement ($\rho\mathbf{u}$). Ainsi, en raison de la similarité entre les équations, nous pouvons donc définir l'équation de Boltzmann sur réseau spécifique au transport en utilisant une autre fonction de distribution, g_i , par [109] :

$$g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i\Delta t, t + \Delta t) - g_i(\mathbf{x}, t) = \Delta t \mathcal{O}_i(\mathbf{x}, t) + \mathcal{R}_i(\mathbf{x}, t) \quad (1.62)$$

avec $\mathcal{R}_i = w_i\mathcal{R}$ le terme source chimique. Il est à noter qu'il faut définir un jeu de fonction g par espèce transportée k . Par soucis d'alléger les notations, nous n'indiquons pas l'indice k dans la notation des g_i .

De manière identique à la partie fluide, la LBM-SRT sera utilisée pour modéliser le phénomène de transport.

$$g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i\Delta t, t + \Delta t) - g_i(\mathbf{x}, t) = \Delta t \mathcal{O}_i(\mathbf{x}, t) = -\frac{\Delta t}{\tau_g} (g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)) \quad (1.63)$$

avec τ_g le temps de relaxation des fonctions g_i .

L'obtention des équations de Navier-Stokes (1.4) ou d'advection-diffusion (1.11) à partir de l'équation de Boltzmann n'est pas évidente. C'est pourquoi le lecteur intéressé pourra consulter, en annexe B, une démonstration détaillée de la manière dont la LBM-SRT permet d'obtenir l'équation de transport.

Cependant, bien que dans les équations de Navier-Stokes la densité et la quantité de mouvement soient conservées, dans l'advection-diffusion seule la concentration est conservée. Les moments d'ordre zéro et un de g_i sont donnés par :

$$\sum_i g_i = \sum_i g_i^{\text{eq}} = C_k \quad \text{et} \quad \sum_i g_i \mathbf{c}_i = \sum_i g_i^{\text{eq}} \mathbf{c}_i = C_k \mathbf{u} \quad (1.64)$$

Comme énoncé précédemment, si le milieu est supposé suffisamment dilué, la concentration C_k n'affecte pas la masse volumique ρ . Dès lors l'équation de Navier-Stokes peut être résolue indépendamment de celle du transport. Ainsi dans l'équation d'advection diffusion la vitesse \mathbf{u} n'est pas obtenue à partir de g_i , mais simplement imposée après résolution de l'équation 1.4.

De manière analogue à l'équation 1.43, le coefficient de diffusion D_k est exprimé dans le modèle BGK par :

$$D_k = c_s^2 \left(\tau_g - \frac{\Delta t}{2} \right) \quad (1.65)$$

où τ_g est le temps de relaxation des fonctions g_i .

1.5.2 Choix de la fonction de distribution d'équilibre

La fonction de distribution à l'équilibre la plus souvent utilisée pour recouvrir l'équation de transport est :

$$g_i^{\text{eq}} = w_i C_k \left(1 + \frac{\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u}}{c_s^2} \right) \quad (1.66)$$

Cette fonction est basée sur la partie linéaire de la fonction de Maxwell qui est suffisante car l'équation d'advection-diffusion est linéaire en C_k et \mathbf{u} .

1.5.3 Choix du réseau

Pour la modélisation de l'équation d'advection-diffusion, il est possible d'utiliser les réseaux précédemment présentés sur la figure 1.4. Pour l'équation d'advection-diffusion, contrairement à l'équation de Navier-Stokes, seule la conservation de la masse est nécessaire. Il suffit donc que le réseau choisi soit au moins du second ordre d'isotropie ce qui est le cas si les trois premières

équations de (1.36) sont satisfaites [5].

Les réseaux vérifiant ces contraintes et qui peuvent donc être utilisés dans un problème d'advection-diffusion en 2D sont : D2Q4 (l'équivalent de D2Q5 sans la particule centrale au repos), le D2Q5 et D2Q9. Dans leurs premiers modèles, Kang et al. [110,111] ont utilisé le réseau D2Q9 pour résoudre les équations de Navier Stokes et de transport à la fois. Plus récemment, ils ont comparé les modèles D2Q4 et D2Q9 et ont montré que D2Q4 est plus stable et nécessite moins de stockage [112]. Selon la littérature, D2Q5, est le réseau le plus utilisé dans la résolution du transport. Ce réseau sera donc celui retenu pour la partie transport des espèces réactives dans notre modèle.

1.5.4 Conditions aux limites pour le transport réactif

Dans le transport de solutés, les interfaces solide-fluide sont des frontières réactives. Ces frontières sont généralement de structure complexe. De nombreuses études traduisent les réactions hétérogènes linéaires qui ont lieu sur ces frontières par des conditions aux limites dans l'équation d'advection-diffusion décrite par la loi cinétique (1.28) d'ordre 1. Dans la LBM, le traitement de ce type de conditions est plutôt compliqué. La littérature montre qu'il n'y a pas une seule façon de le faire, et que plusieurs schémas ont été développés à cet effet. Kang et al. [110,113] ont utilisé dans leurs premiers modèles une condition aux limites similaire au "modèle LB thermique" proposé par He et al. [72]. Cette condition s'appuie sur l'idée qu'au niveau d'une paroi stationnaire, la partie hors équilibre de la fonction de distribution est proportionnelle au produit scalaire de sa vitesse microscopique et du gradient de concentration. En conséquence, la partie hors équilibre des fonctions de distributions dans des directions opposées prend des signes opposés ($g_i^{neq} = -g_{-i}^{neq}$). Dans des travaux postérieurs, ces modèles ont été généralisés pour simuler un système multi-espèces [111]. Les auteurs ont par la suite remarqué que la condition aux limites utilisée dans [110,111,113] présente néanmoins quelques problèmes. D'une part, la masse du soluté n'est pas strictement conservée par les réactions hétérogènes qui se produisent à l'interface. D'autre part, dans le cas où les taux de réaction sont lents, la condition aux limites présente des écarts par rapport aux résultats attendus. Par exemple, $k = 0$ ne correspond pas vraiment à une condition de flux nul. Des améliorations ont été apportées au modèle précédent dans [112]. L'équation (1.67) a finalement été proposée pour exprimer les fonctions de distribution en fonction de la concentration et de son gradient en plus de $g_i^{neq} = -g_{-i}^{neq}$.

$$\sum_i g_i \mathbf{c}_i = C_k \mathbf{u} - \frac{\tau_g^* (\Delta x)^2}{2(\Delta t)^2} \nabla C_k, \quad D_k = \frac{\tau_g^* (\Delta x)^2}{2(\Delta t)^2} \quad (1.67)$$

Cette condition a été fréquemment utilisée dans les études [11, 114, 115]. Tous les schémas susmentionnés seront limités aux cas frontières stationnaires. Plus tard, Zhang et al. [116] ont développé un schéma général de rebond pour résoudre la condition limite sur des frontières avec

et sans vitesse de déplacement. Leur schéma n'a qu'une précision du premier ordre puisque la dérivée normale dans ce schéma est discrétisée par un schéma à différences finies du premier ordre. De plus, le calcul est non local et nécessite des informations des nœuds voisins.

Plus récemment, Meng et al. [117] ont construit un schéma dans lequel la concentration de l'espèce k à l'interface C_b (nous omettons le symbole k pour plus de lisibilité) et son gradient sont exprimés directement en termes de fonctions de distribution en utilisant le développement de Chapman Enskog comme suit :

$$C_b = \sum_i g_i(\mathbf{x}_b, t); \quad \nabla C_b \approx \gamma \left[\sum_i \mathbf{c}_i g_i(\mathbf{x}_b, t) - \mathbf{u}_b \sum_i g_i(\mathbf{x}_b, t) \right] \quad (1.68)$$

avec

$$\gamma = -\frac{1}{c_s^2 \tau_g^* \Delta t}$$

\mathbf{x}_b est la position de la frontière et $\mathbf{u}_b = (u_b, v_b)$ est la vitesse de la frontière.

La distinction entre les cas des frontières planes et des frontières courbes est nécessaire. Ce schéma est purement local pour les frontières planes. Cependant, il devient non-local pour les frontières courbes illustrées dans la figure 1.9 puisqu'une extrapolation linéaire, équation (1.69), est employée pour déterminer la position exacte de la frontière.

$$C_b = (1 + q)C_f - qC_{ff} \quad (1.69)$$

avec C_b, C_f et C_{ff} sont les concentrations sur le nœud frontière \mathbf{x}_b , le nœud fluide \mathbf{x}_f et son voisin \mathbf{x}_{ff} respectivement.

En résumé, les conditions aux limites peuvent être classées en deux catégories.

- La première catégorie ressemble aux schémas de frontière basés sur la règle de rebond (bounce-back). La condition aux limites se réduit alors à une conditions de Dirichlet en utilisant la différence finie dans l'approximation de la dérivée normale. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle est non-locale et que son ordre de précision dépend de la précision de la différence finie employée.
- La seconde catégorie comprend les schémas construits à l'aide de l'analyse d'expansion de Chapman-Enskog. L'inconvénient de ces schémas de frontières réactives est qu'ils sont généralement construits séparément pour les frontières planes et courbes [118].

Il existe différents schémas pour décrire les réactions chimiques, chacun ayant ses avantages et ses inconvénients. Nous avons choisi de mettre en œuvre un schéma de chaque catégorie comme le schéma de Kang et al. [112], de Meng [117] et le schéma aux différences finies afin de comparer la précision de ces méthodes et choisir le plus adéquat dans notre étude. Le schéma aux différences finies consiste à transformer la condition de Neumann en un Dirichlet puis à utiliser la condition de Zou et He [104]. Ces schémas seront utilisés dans les résultats du chapitre suivant.

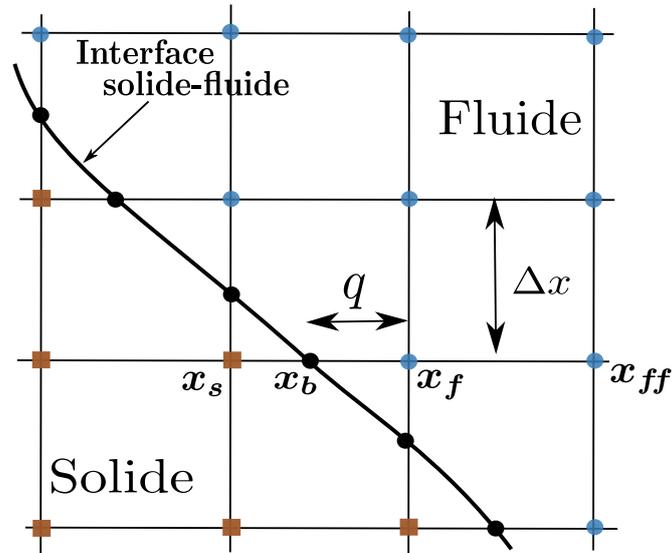


Figure 1.9 – Schématisation d’une frontière courbe et des nœuds du réseau. Les nœuds de fluide sont illustrés par des cercles bleu, les nœuds de frontière par des cercles noirs et les nœuds solides par des carrés marron

Bien qu’il existe une littérature abondante sur le traitement des réactions chimiques comme conditions aux limites, et que diverses études se soient axées sur la formulation du schéma et l’amélioration des conditions aux limites, il existe également très peu de travaux traitant les réactions chimiques comme terme source dans l’équation d’advection-diffusion pour la diffusion advection [5, 119–121]. Même si dans ce schéma les différents traitements sont indépendants des formes et orientations arbitraires des interfaces, la précision du schéma n’est pas discutée et l’interprétation physique claire qui le sous-tend n’est pas reflétée.

Compte tenu de l’importance de ce sujet de la modélisation des conditions limites dans l’équation d’advection diffusion, des recherches récentes ont été publiées. Parmi les dernières avancées scientifiques, nous citons, la condition aux limites pour une réaction hétérogène linéaire présentée par Ju et al. [118]. Leur schéma est basé sur l’idée d’un rebond de portion, c’est-à-dire que si une réaction se produit à la frontière, une portion des particules fluides sera consommée, et seulement une portion des particules rebondira. Ce schéma est unifié quelle que soit la forme de la géométrie irrégulière (coins, frontières planes). Plus généralement, étant donné que toutes les études précédentes se sont concentrées sur la cinétique linéaire, Kashani et al. [85] ont mis en œuvre, cette dernière année, les conditions aux limites non linéaires de Robin dans le cadre de la LBM, comme les réactions de surface de nième degré.

1.6 Evolution de la microstructure

En raison des réactions hétérogènes telles que la précipitation et la dissolution, le fluide dans les pores peuvent échanger de la matière avec les parois solides qui les entourent. Les interactions solide-fluide induisent une évolution de la microstructure. Pour prendre en compte ce phénomène, plusieurs modèles de suivi d'interface ont été développés dans la littérature. Les méthodes de suivi d'interface ne pas uniquement présentes dans les études liées aux problèmes de dissolution/précipitation. On trouve par exemple ces méthodes lors de travaux en lien avec les interactions entre deux fluides non-miscibles [20, 71] et la fusion-solidification [122–125]. De manière globale, ces méthodes ont recours à un champ scalaire comme indicateur de phase et peuvent être classées en deux familles : les modèles d'interface diffuse pour les méthodes où ce champ scalaire varie lentement à travers l'interface solide-fluide et les modèles d'interface marquée ("sharp interface") où ce dernier varie de manière rapide, comme l'illustre la figure 1.10.

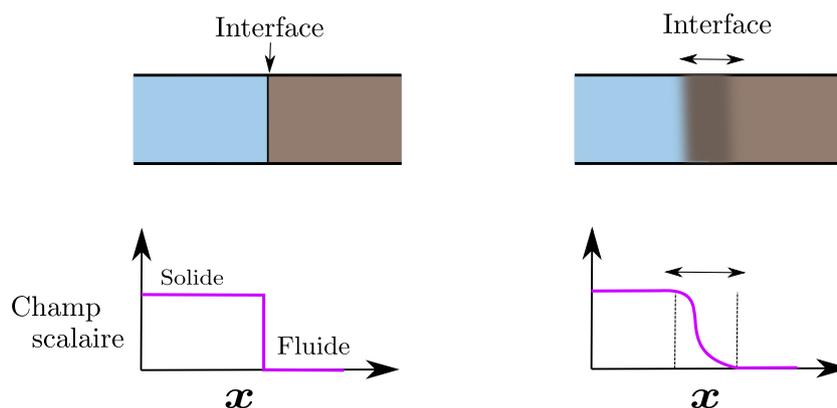


Figure 1.10 – A gauche une interface marquée et à droite une interface diffuse. Le champ scalaire désigne l'indicateur qui représente l'épaisseur de l'interface

Parmi les modèles d'interface diffuse, on peut notamment citer la méthode "Phase Fields"(PF) [50, 126, 127]. Pour les modèles d'interface marquée, on peut les présenter sous deux groupes distincts [26, 128, 129].

- Un premier groupe comprend les méthodes eulériennes ("front-capturing method") telle que les méthodes "Volume Of Fluid"(VOF) [130–133] et "Level Set" (LS) [39, 134–137].
- Un second groupe comprend les méthodes lagrangiennes ("front-tracking method") telles que la méthode "Volume Of Pixel" (VOP) [4, 26, 37, 111].

Contrairement aux méthodes marquées et comme énoncé précédemment, les méthodes d'interfaces diffuses présente l'avantage d'offrir une variation douce du champ scalaire. Néanmoins

malgré la réputation de ces méthodes dans les simulations de réactions hétérogènes où le suivi des interfaces et les calculs de surface spécifique des interfaces sont bien souvent difficiles, elles souffrent de limitations [138]. Par exemple, leur utilisation pour des géométries complexes telles que celles couramment rencontrées dans les milieux poreux complique leur couplage aux algorithmes et peut augmenter significativement les coûts de calcul. Dans la méthode de Boltzmann sur réseau, l'emploi de telles techniques de suivi de surface n'a pas été très répandu jusqu'à présent [139].

Le méthode de VOP sont particulièrement souhaitables dans les études où le transport de masse dans la phase solide n'est pas considéré et où l'écoulement aux interfaces solide-fluide est soumis à une condition d'adhérence [26]. Comme c'est le cas dans notre étude, nous utiliserons la méthode VOP pour suivre l'évolution de la microstructure en raison de ses différents avantages. Elle présente un concept physique clair, une bonne conservation du volume total, une capture explicite des interfaces et une flexibilité pour le couplage avec l'écoulement même avec d'autres mécanismes tels que les mécanismes de nucléation ou de croissance cristalline [26, 140].

La méthode VOP développée par Kang et al [111] consiste d'abord à discrétiser l'ensemble du domaine de calcul entier en "pixels" (nœuds de calcul). Pour chaque pixel, un volume de contrôle, de taille 1×1 unité du réseau est défini de sorte que le nœud soit centré dans ce volume comme le montre la figure 1.11.

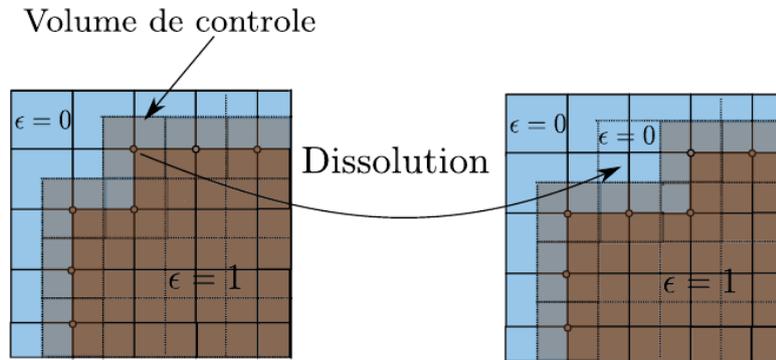


Figure 1.11 – Schéma des volumes de contrôle dans un domaine. La fraction volumique du solide $\epsilon = 0$ pour le fluide, $\epsilon = 1$ pour le solide et varie sur les nœuds d'interface solide-liquide

Ce volume de contrôle est attribué à un volume de solide. A chaque pas de temps, seul le volume de contrôle des nœuds d'interface change car les réactions chimiques qui modifient la microstructure sont uniquement celles qui ont lieu aux interfaces solide-fluide. La variation du volume du solide sur ces sites réactifs peut être liée au flux de réaction [26, 111, 114] par l'équation de bilan de masse :

$$\frac{\partial \epsilon}{\partial t} = \mathcal{S} V_M \underbrace{I_m(\mathbf{x}, t)}_{\text{flux de réaction}} \quad (1.70)$$

avec ϵ est la fraction du volume solide, \mathcal{S} est la surface spécifique [m^{-1}] et V_M est le volume molaire [$\text{m}^3 \text{mol}^{-1}$].

Pour le cas d'une seule espèce chimique,

$$\frac{\partial \epsilon}{\partial t} = \mathcal{S} V_M k (C_k - C_{keq}) \quad (1.71)$$

La fraction de volume solide est initialisée par une valeur initiale ϵ_0 à l'interface. Si la fraction volumique solide sur le nœud d'interface diminue jusqu'à zéro, ce nœud est alors considéré comme dissous. Il devient alors un nœud fluide. Si ϵ augmente et atteint une valeur seuil, ce nœud est alors considéré comme précipité. Dans ce cas, l'un des nœuds fluides les plus proches du nœud interface précipite et devient un nœud solide. Comme il peut y avoir plusieurs nœuds fluides, diverses règles ont été proposées par Kang [111]. D'autres chercheurs choisissent arbitrairement l'un des nœuds fluides voisins pour changer de phase et devenir un nœud solide [26]. La méthode VOP décrite ci-dessus est la version la plus simple de VOP, notamment lorsqu'elle appliquée à des interface solide-fluide approximées par des interfaces en escalier [111]. Dans ce travail de thèse, c'est cette dernière qui a été mise en place. Cependant, il est également possible d'ajouter quelques algorithmes géométriques supplémentaires pour ajuster les interfaces courbes [26, 141].

1.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons reformuler mathématiquement le problème de transport réactif à l'échelle de pore. Nous avons ensuite présenté les bases de la méthode LBM utilisée pour modéliser le problème de transport réactif. Nous avons résumé les différents modèles numériques appliquant cette méthode pour résoudre le transport réactif en milieu poreux. En ce qui concerne la résolution de l'écoulement du fluide, comme il a été présenté qu'il existe une grande variété de conditions d'écoulement où la méthode SRT peut être utilisée avec succès, et que même si la MRT est très puissante, elle ne permet pas de surmonter tous les défauts des méthodes SRT, la méthode LBM-SRT a été choisie, avec un réseau de type D2Q9 qui est le réseau minimal en termes de vitesses discrètes pour reproduire le comportement du fluide à l'échelle macroscopique. Pour résoudre l'advection-diffusion, la méthode LBM-SRT avec un réseau de type D2Q5 est choisie, car D2Q5 est suffisant pour reproduire le comportement d'une ou plusieurs équations d'advection-diffusion. L'échange de matière causé par des réactions chimiques hétérogènes à travers l'interface solide-fluide entraîne des flux réactifs traités par des conditions aux limites explicites dans les équations d'advection-diffusion. Les frontières

réactives évoluent dynamiquement et modifient la morphologie du milieu. L'évolution de la microstructure est suivie explicitement par la méthode hybride Euler-Lagrange "Volume Of Pixel (VOP)" .

Sur la base de l'état de l'art sur les modèles de transport réactif qui a été présenté dans le chapitre 1 nous avons pu construire un modèle de transport réactif. L'implémentation de ce modèle dans le logiciel Palabos, sa validité de simuler des cas théorique et de référence est discuter dans le prochain chapitre.

Chapitre 2

Développement d'un modèle de transport réactif avec la méthode Lattice Boltzmann

Sommaire

2.1	Introduction	44
2.2	Implémentation du modèle dans Palabos	44
2.2.1	Choix des paramètres et des unités de simulation	45
2.2.2	Description de l'algorithme	46
2.3	Validations du modèle de transport réactif	49
2.3.1	Écoulement de Poiseuille	49
2.3.2	Diffusion en régime transitoire	54
2.3.3	Diffusion et réaction chimique	55
2.3.4	Evolution de la microstructure	62
2.4	Conclusion	81

2.1 Introduction

Comme mentionné dans le chapitre précédent, la modélisation du transport réactif à l'échelle du pore implique un grand nombre de processus couplés. D'une part, elle fait intervenir différents phénomènes physiques tels que l'écoulement, l'advection, la diffusion et la réaction qui permettent la propagation de l'espèce dans le milieu et modifient sa concentration par consommation ou production. D'autre part, elle met en œuvre la variation de la morphologie par intégration des phases dissoutes ou précipitées dans le volume poreux. La mise à jour de la morphologie modifie la base de la résolution de l'écoulement et de l'advection-diffusion et influence les propriétés du milieu.

Dans ce deuxième chapitre, nous développons un modèle de transport réactif dans le logiciel libre Palabos. Dans la première partie, Palabos est d'abord brièvement présenté. Les contraintes sur le choix des paramètres et la conversion des unités des quantités simulées sont exposées. Nous proposons ensuite l'algorithme du modèle qui inclut tous les phénomènes impliqués dans notre étude.

Une deuxième partie est consacrée à la validation des résultats de la LBM. Les validations sont organisées en quatre parties qui abordent respectivement les aspects : écoulement, transport, réaction et évolution de la géométrie par dissolution en 1D et 2D. Pour ce faire, des solutions analytiques stationnaires et instationnaires et des solutions numériques correspondant à des cas de référence sont exploitées.

Nous validons le modèle mis en place pour des cas simples où des solutions théoriques et numériques existent afin de bien confirmer la pertinence de notre code dans les simulations de cas plus complexes comme la dissolution des milieux poreux qui fera l'objet du dernier chapitre.

2.2 Implémentation du modèle dans Palabos

Palabos signifie "Parallel Lattice Boltzmann Solver". Il s'agit d'un outil avancé utilisé à la fois dans la recherche scientifique et l'ingénierie. Il est caractérisé par une librairie étendue basée sur la méthode LBM écrite principalement en C++ et d'autres langages de programmation supplémentaires : Java et Python [142]. Les opérateurs de collisions, les modèles de conditions aux limites, et d'autres fonctions rattachées au fonctionnement de l'algorithme LBM sont déjà implémentés dans cette librairie [106, 143]. De nombreuses applications ont également été développées dans Palabos et peuvent être modifiées, couplées et étendues pour obtenir des nouveaux modèles spécifiques selon les besoins de l'étude. L'utilisation de cet outil nous permet

de bénéficier de sa structure de programmation bien développée, optimisée et parallélisée pour le calcul sur plusieurs processeurs [144].

2.2.1 Choix des paramètres et des unités de simulation

Les simulations mettant en oeuvre la méthode LB sont souvent effectuées dans le système d'unité "lattice units (lb)" où tous les paramètres physiques sont adimensionnés en unités du réseau. Pour un problème donné, il est donc nécessaire de convertir toute quantité dimensionnelle (en unités physiques, SI), en une quantité sans dimension (en unités de réseau, lb) et vice versa pour interpréter les résultats [145]. Cette conversion s'effectue en divisant une grandeur physique Q par une quantité de référence choisie (appelée facteur de conversion d'unité CU) de même dimension [146].

$$Q^* = \frac{Q}{CU} \quad (2.1)$$

Toute grandeur physique dimensionnelle Q peut être exprimée en système SI par une masse (M), une longueur (L) ou un temps (T). Cela permet de déterminer le facteur de conversion CU basé sur les grandeurs en unité lb.

Assez naturellement, pour mettre une quantité à l'échelle dimensionnelle, la densité de référence ρ_{ref} et les pas de discrétisation spatiale Δx et temporelle Δt , sont utilisés comme grandeurs de référence pour la masse volumique, la longueur et le temps respectivement.

Le pas de discrétisation spatiale Δx [m] est défini comme le rapport de la longueur de référence L_{ref} [m] à la résolution N , qui présente les intervalles utilisées pour discrétiser cette longueur.

$$\Delta x = \frac{L_{ref}}{N} \quad (2.2)$$

Le pas de temps Δt [s] est donné par :

$$\Delta t = \frac{\Delta x^2}{3\nu} \left(\tau^* - \frac{1}{2} \right) \quad (2.3)$$

où ν est la viscosité cinématique et τ^* le temps de relaxation sans dimension. Le choix de ces paramètres n'est pas arbitraire et doit respecter certains critères notamment sur le temps de relaxation et le nombre de Mach par exemple. Le tableau 2.1 présente les symboles, les unités et la conversion d'unité utilisés dans le cadre de notre étude.

En unité lb, Δx et Δt sont mis à l'échelle de sorte que ρ^* , Δx^* et Δt^* soient égaux à 1 lb.

Description des grandeurs	Symboles physiques	Unités SI	Symboles en lb	Facteur de conversion d'unité CU
Densité du fluide	ρ	kg m ⁻³	ρ^*	ρ_{ref}
Viscosité cinématique	ν	m ² s ⁻¹	ν^*	$\nu \frac{\Delta t}{\Delta x^2}$
Vitesse	\mathbf{u}	m s ⁻¹	\mathbf{u}^*	$\mathbf{u} \frac{\Delta t}{\Delta x}$
Pression	P	Pa	P^*	$\frac{1}{\rho_{ref}} \frac{\Delta x^2}{\Delta t^2}$
Concentration	C	mol m ⁻³	C^*	C_{ref}
Coefficient de diffusion	D	m ² s ⁻¹	D^*	$D \frac{\Delta t}{\Delta x^2}$
Taux de réaction	k	m s ⁻¹	k^*	$k \frac{\Delta t}{\Delta x}$
Surface spécifique	S	m ⁻¹	S^*	$S \Delta x$

Table 2.1 – Les paramètres utilisés dans l'étude numérique

2.2.2 Description de l'algorithme

Dans cette section nous présentons l'algorithme que nous avons implémenté dans le code Palabos pour la résolution instationnaire du transport réactif avec prise en compte du changement de géométrie. Comme dans chaque algorithme une partie préparatoire avant la boucle de temps consiste à définir tous les paramètres géométriques, physiques et numériques nécessaires pour la résolution du problème. Ensuite commence le processus itératif en temps qui est composé de trois parties successives et distinctes : l'écoulement, le transport réactif et enfin le changement de géométrie.

- La première est le solveur LBM pour résoudre les équations incompressibles de Navier-Stokes (bloc vert de la figure 2.1). L'écoulement est résolu en utilisant le schéma BGK avec un réseau D2Q9 et une fonction d'équilibre tronquée d'ordre 2. Les quantités macroscopiques sont d'abord calculées, puis la fonction de distribution à l'équilibre est déterminée. Dans l'étape de collision, le terme de collision est évalué comme indiqué dans l'équation (1.48) et les fonctions de distribution sont modifiées. La condition de non-glissement sur les interfaces solide-fluide est exprimée par le rebond. Enfin, une étape non-locale de propagation transmet les fonctions de distribution aux nœuds voisins selon la structure du réseau D2Q9. Ce solveur peut être facilement adapté à différents réseaux et est facilement transposable à d'autres modèles LBM en modifiant l'opérateur de collision et la fonction d'équilibre. Initialement, le fluide s'écoule dans le milieu jusqu'à ce que la vitesse converge. Ceci conduit à considérer que l'injection de l'espèce dans le milieu se fait une fois que l'état stationnaire de l'écoulement est requis. L'hypothèse de convergence de la vitesse est faite une seule fois au début du code. Ceci est suffisant en raison de la longueur du milieu relativement petite à l'échelle du pore. A la sortie du solveur LBM de Navier-Stokes, un champ de vitesse \mathbf{u} est ainsi déterminé.

La deuxième partie est le solveur LBM d'advection-diffusion-réaction (bloc rose de la figure 2.1) qui reçoit le champ de vitesse par un couplage faible¹ et l'utilise pour calculer la concentration de l'espèce dans le fluide. L'équation d'advection-diffusion est résolue à l'aide du schéma BGK avec un réseau D2Q5 et une fonction de distributions d'équilibre linéaire (1.66). A l'interface solide-fluide où la dissolution et/ou précipitation ont lieu, la concentration est calculée en utilisant les conditions aux limites réactives. Ce traitement nécessite un calcul des vecteurs normaux sur les frontières. Le calcul des vecteurs normaux est non local et nécessite des informations des nœuds voisinages. Pour le faire, un schéma central isotrope du second ordre a été utilisé [147]

$$\mathbf{n} = \frac{\nabla\Psi}{|\nabla\Psi|} \quad \text{avec} \quad \nabla\Psi(\mathbf{x}) = \sum_{i \neq 0}^q \frac{w_i \mathbf{c}_i \Psi(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t)}{c_s^2 \Delta t} \quad (2.4)$$

avec q est le nombre des directions du réseau et Ψ est un indicateur qui définit la nature des nœuds voisins ($\mathbf{x} + \mathbf{c}_k \Delta t$) du nœud \mathbf{x} . Il vaut 1 pour fluide et 0 pour solide.

- La dernière partie est le changement de géométrie dû aux réactions chimiques de dissolution et/ou de précipitation (bloc violet de la figure 2.1). L'évolution de la microstructure est prise en compte en implémentant une équation de bilan de masse à l'interface réactive. Le changement de géométrie est pris en compte par la méthode du seuil de Volume Of Pixel (VOP). Si la fraction volumique ϵ atteint zéro sur un nœud interface en raison de la dissolution, l'indicateur du nœud est modifié. Il est donc converti de nœud solide en nœud fluide. La densité, la concentration et la vitesse à ce nœud doivent être réinitialisées. Plusieurs techniques existent dans la littérature . Certaines initialisent simplement le nœud par la densité du fluide comme c'est le cas ici. Récemment, les auteurs [26, 27, 37] initialisent les nœuds par la densité moyenne des nœuds fluides voisins les plus proches. La vitesse à ce nœud est nulle puisque le solide dissous était statique. Cependant, si ϵ atteint une valeur seuil proche de 1 une précipitation est mise en jeu. Pour la précipitation, la valeur seuil et le nœud qui change de phase ne sont pas uniques [26, 111]. L'évolution de la microstructure est ensuite mise à jour pour la nouvelle itération de la résolution de l'écoulement et de l'ADE.

Dans les deux solveurs LBM, un algorithme de permutation ou "Swap algorithme" est utilisé [148]. Il peut être considéré comme une version sophistiquée ou une amélioration de l'algorithme standard de la LBM. Il se base sur l'idée de fusionner les deux étapes collision-propagation. L'avantage est que la mémoire sera traversée une seule fois pour les deux étapes. Aussi il permet de minimiser le nombre de variables temporelles à stocker en exploitant seulement un petit nombre d'éléments. Les données ne sont jamais copiées dans un nouveau stockage

1. Le couplage entre l'écoulement et le transport se fait dans une seule direction, les concentrations n'affectent pas la vitesse du fluide.

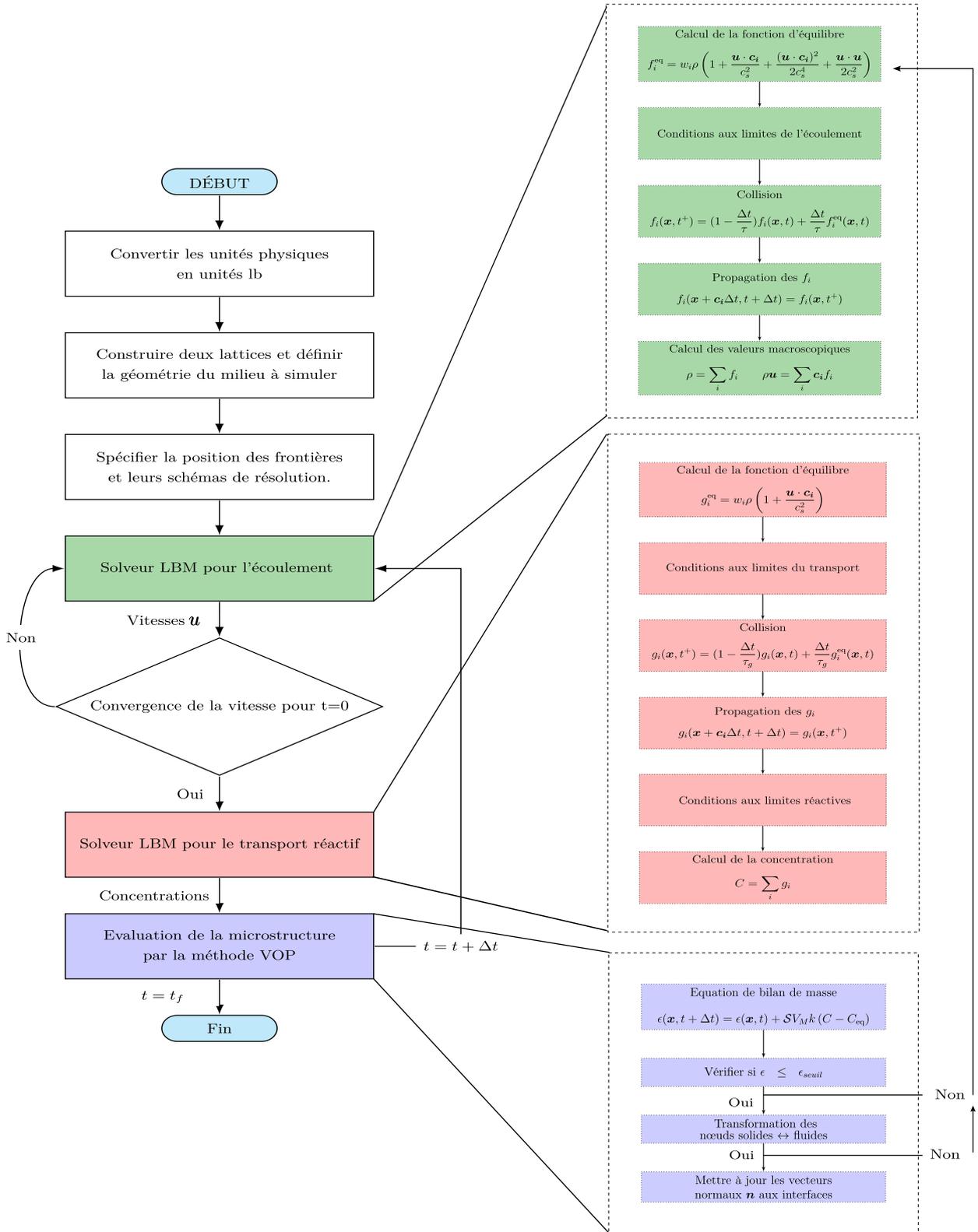


Figure 2.1 – Algorithme complet pour résoudre le problème de transport réactif

temporaire, mais toujours échangées avec une autre variable. Par conséquent, aucun espace de stockage temporaire n'est nécessaire sans que certaines données encore utiles pour la résolution ne soient écrasées.

2.3 Validations du modèle de transport réactif

Dans la précédente section nous avons présenté l'algorithme du transport réactif constitué de trois processus couplés qui sont l'écoulement, l'advection-diffusion-réaction et le changement de géométrie. Il est évident que l'implémentation de cet algorithme dans le code Palabos a été réalisée en plusieurs étapes. Nous avons d'abord utilisé un exemple de base dans Palabos pour construire le solveur d'écoulement et de transport et les coupler. Ensuite, la partie chimie et l'évolution de la microstructure ont été implémentées. Cependant, il est nécessaire de valider les résultats numériques de chaque étape de l'algorithme sur des cas simples dont les solutions analytiques ou numériques sont connues. Donc l'objet de cette section est de présenter les principales validations du modèle numérique implémenté dans Palabos selon l'algorithme de la figure 2.1.

2.3.1 Écoulement de Poiseuille

La simulation d'un écoulement de Poiseuille est le problème de référence le plus utilisé dans la validation de la résolution des équations de Navier-Stokes. Dans ce cas la solution analytique des équations est connue en stationnaire et en instationnaire. L'écoulement de Poiseuille est un écoulement laminaire incompressible entre deux parois parallèles de grandes dimensions L_x espacées de L_y comme le montre la figure 2.2. Les parois parallèles supérieure et inférieure sont fixes. La condition aux limites imposée sur ces parois est celle de non-glissement qui exige que la vitesse des particules de fluide en contact avec une paroi solide soit la même que celle de la paroi ($\mathbf{u} = \mathbf{0}$).

L'écoulement du fluide est entraîné par une différence de pression $\Delta P = P_{in} - P_{out}$ constante entre l'entrée et la sortie du domaine étudié.

La vitesse de l'écoulement de Poiseuille atteint son maximum U_{max} au milieu du canal, puis diminue à mesure que l'on se rapproche des parois jusqu'à s'annuler.

La relation entre la vitesse maximale et la différence de pression est donnée par :

$$U_{max} = \frac{\Delta p L_y^2}{8 \nu \rho L_x} \quad (2.5)$$

La solution numérique calculée par la LBM est comparée à la solution théorique de l'écoulement

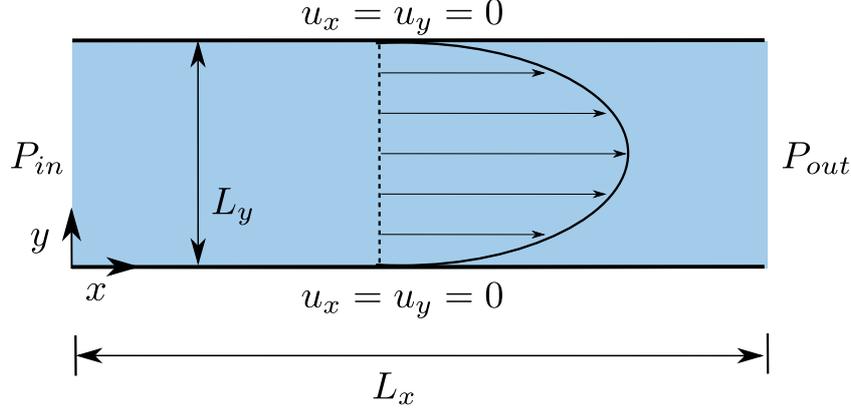


Figure 2.2 – Schématisation d'un écoulement de Poiseuille et des conditions aux limites associées

de Poiseuille en instationnaire donnée dans [149] par :

$$u_x(y, t) = \underbrace{U_{\max} \left(\frac{4y}{L_y} - \frac{4y^2}{L_y^2} \right)}_{\text{Solution stationnaire}} + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{4\Delta p L_y^2}{L_x \nu \rho \pi^3 (2n+1)^3} \sin \left(\frac{\pi y (2n+1)}{L_y} \right) \exp \left(-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 \nu t}{L_y^2} \right) \quad (2.6)$$

Les paramètres utilisés dans les simulations sont résumés dans le tableau 2.2.

Paramètres	Unité physique	Unité lb
Domaine ($L_x \times L_y$)	$2.7 \times 10^{-03} \times 9 \times 10^{-04}$	270×90
Longueur caractéristique (L_{ref})	9×10^{-04}	90
Discretisation en espace (Δx)	10^{-05}	1
Viscosité cinématique (ν)	10^{-06}	1/6
Densité du fluide (ρ)	1000	1
Discretisation en temps (Δt)	1.6667×10^{-05}	1
Différence de pression (ΔP)	1.6×10^{-02}	4.4444×10^{-05}
Nombre de Reynolds Re	$Re = \frac{U_{\max} L_y}{\nu} = 0.54$	

Table 2.2 – Paramètres de simulation correspondant à l'écoulement de Poiseuille avec un temps de relaxation $\tau^* = 1$.

La figure 2.3 compare les profils de vitesse numérique et analytique en $x = \frac{L_x}{2}$ et à différents temps t . La solution numérique obtenue par LBM est en accord avec celle obtenue analytiquement.

La différence entre les vitesses maximales obtenues analytiquement et numériquement à l'état stationnaire peut être calculée :

$$Er|_{y=\frac{L_y}{2}} = \left| \frac{U_{max}^{analy} - U_{max}^{LBM}}{U_{max}^{analy}} \right| \times 100\% = 0.0088\% \quad (2.7)$$

Afin de tester la précision de la méthode, l'influence de l'espacement de réseau Δx et du temps

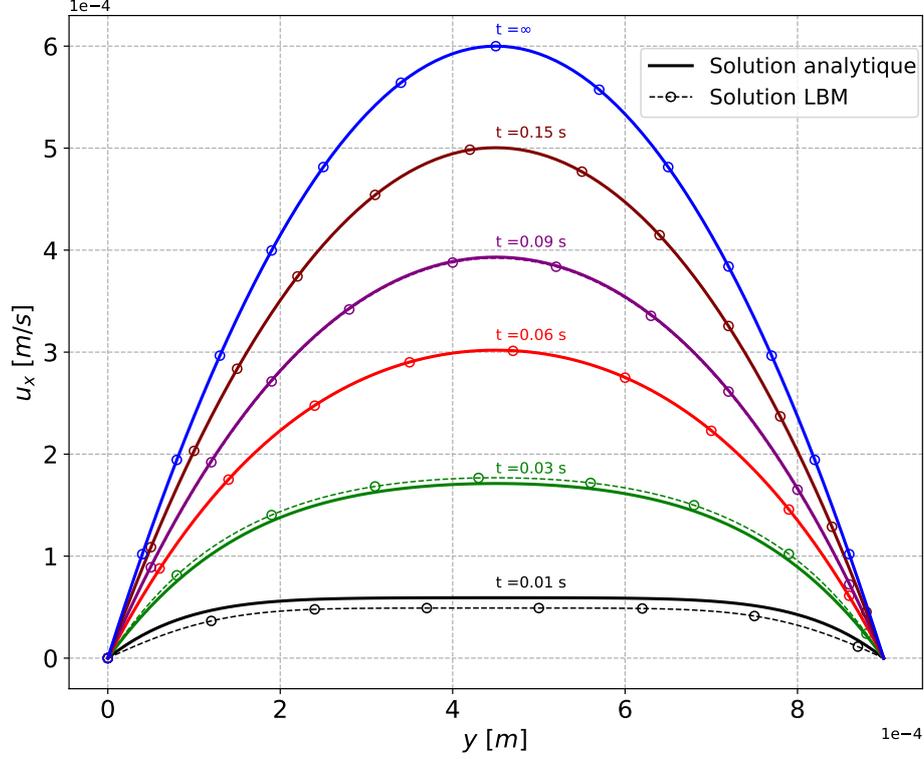


Figure 2.3 – Comparaison des profils de vitesses numériques de la LBM et la solution analytique pour un écoulement de Poiseuille à différents instants

de relaxation τ^* sur la solution numérique est étudiée. L'erreur relative entre la solution LBM et la solution analytique est calculée :

$$Er = \frac{\sum_{i,j} |u^{analy}(x_i, y_j) - u^{LBM}(x_i, y_j)|}{\sum_{i,j} |u^{analy}(x_i, y_j)|} \times 100\% \quad (2.8)$$

avec u^{LBM} et u^{analy} sont les vitesses dans la direction x obtenues par la LBM et par la solution analytique, respectivement. Les indices i et j sont les numéros des noeuds de la grille dans les directions x et y respectivement. Dans ce cas $i = 135$ ce qui correspond à $x = L_x/2$.

Le tableau 2.3 montre que la résolution de la grille dans la LBM a un impact direct sur l'écart entre les deux solutions. Une résolution plus élevée signifie une discrétisation spatiale plus fine. Plus Δx est petit, plus les erreurs sont faibles et plus les résultats sont précis. Cependant, le nombre de noeuds et le temps de calcul augmentent.

La définition de la viscosité dans la LBM 1.43 établit une dépendance entre les trois paramètres : Δx , Δt et τ^* . Ainsi, ces paramètres doivent être choisis de sorte que la condition de faibles valeurs de la compressibilité soit toujours satisfaite 1.4.3. Le temps de propagation de l'information entre deux nœuds consécutifs, Δt , a une influence sur la solution numérique. Pour une discrétisation spatiale fixe et une viscosité du fluide donnée, le temps de relaxation τ^* est proportionnel au pas de temps Δt . Par conséquent, en diminuant Δt , l'écart entre la solution LBM et la solution analytique diminue comme le montre le tableau 2.3.

Résolution N	60	90	120	160	180	
Erreur Er%	0.0078	0.0070	0.0047	0.0031	0.0027	
Temps de relaxation τ^*	0.6	0.8	1	1.5	2	5
Erreur Er%	0.0004	0.0025	0.0070	0.0271	0.0617	0.5882

Table 2.3 – Erreur relative sur la solution de Poiseuille numérique en fonction de N et du temps de relaxation τ^*

Dans les études réalisées selon les discrétisations spatiales et temporelles mentionnées ci-dessus, la condition de compressibilité est vérifiée. Par ailleurs, nous avons étudié l'effet de U_{max} sur la solution numérique afin d'estimer pour une géométrie donnée le nombre de Reynolds seuil. Sur les figures 2.4a et 2.4b on peut voir que lorsque Re augmente le nombre de Mach augmente. Lorsque la condition de faible compressibilité n'est pas respectée, c'est-à-dire $Ma > 0.1 - 0.3$, la vitesse n'atteint pas la vitesse maximale calculée théoriquement. Par conséquent, la solution obtenue devient fautive.

Il est important de noter que le LBM peut être utilisé pour des valeurs Re élevées en effectuant les ajustements appropriés pour garantir des résultats corrects et précis. Ainsi, d'autres paramètres, tels que Ma , doivent être ajustés pour augmenter la vitesse dans des conditions de Re élevé. La figure 2.4b illustre cette relation entre la vitesse et la valeur de Ma .

Grâce à l'étude réalisée, nous avons validé la possibilité d'appliquer des conditions limites de pression à l'entrée et à la sortie. Cependant, l'écoulement de Poiseuille peut être entraîné par d'autres conditions aux limites. Il est soit déterminé par les conditions aux limites de vitesse d'entrée et de sortie, soit par une pression d'entrée et une vitesse de sortie ou vice versa. Nous utilisons dans ce qui suit la notation BC_1 pour la condition P_{in} et P_{out} , BC_2 pour P_{in} et U_{out} et BC_3 pour U_{in} et U_{out} . Les figures 2.5a et 2.5b comparent les profils de vitesse et de pression pour le même ensemble de paramètres du tableau 2.2 avec les trois types de conditions d'entrée et de sortie à la solution analytique.

Les résultats montrent que les profils de vitesse **normalisés** sont relativement proches à ceux

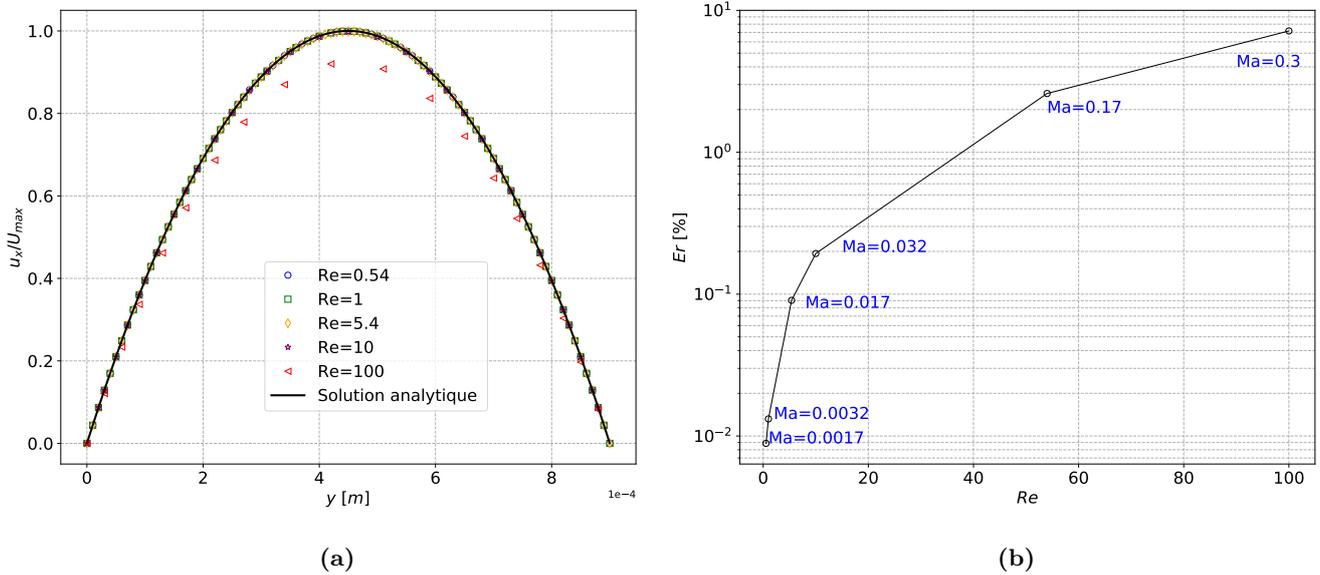


Figure 2.4 – (a) profils de vitesse normalisés par la vitesse maximale pour différents nombres de Re . (b) Erreur relative en fonction du nombre de Reynolds

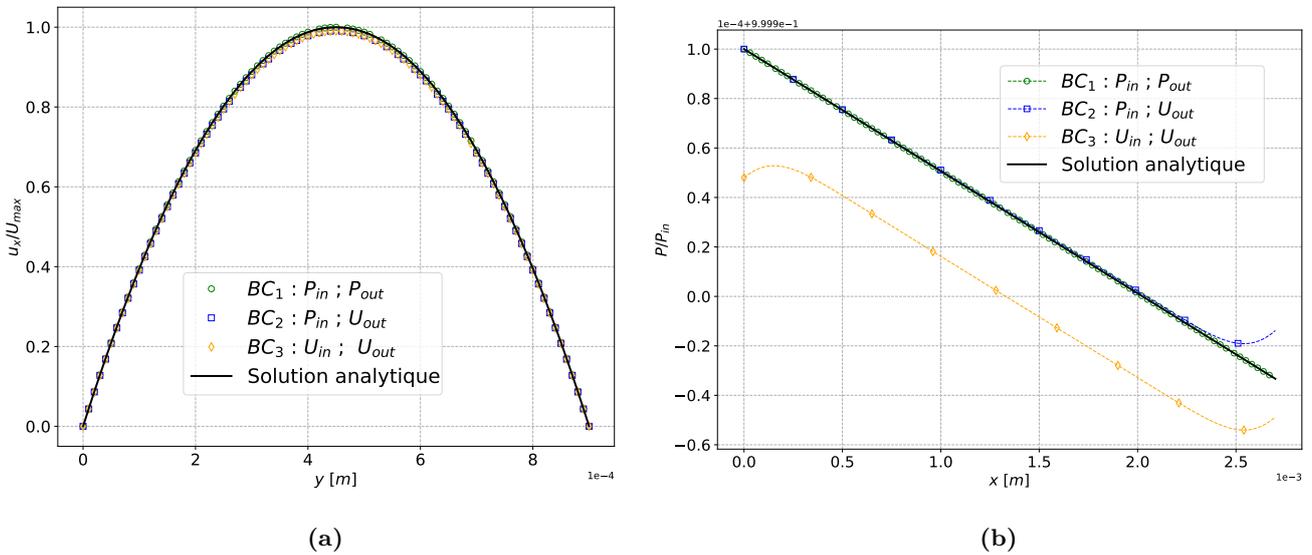


Figure 2.5 – Profils de vitesse (a) et de pression (b) pour différents types de conditions aux limites à l'entrée et à la sortie du canal

obtenus avec la solution analytique dans tous les cas. Cependant, la vitesse pour BC_1 qui coïncide parfaitement avec la solution analytique est plus précise que les autres qui présentent des erreurs de 0.93% pour BC_2 et 0.92% pour BC_3 .

Les profils de pression sont linéaires avec une pente $\frac{P_{in}-P_{out}}{L_x} = -5.92$ quelque soit le type de conditions imposées sauf près des bords soumis à des conditions aux limites de vitesse. Nous remarquons des effets de bord en entrée et en sortie dans le cas des conditions aux limites de vitesse. Cela est causé par le fait d'imposer une valeur constante de la vitesse.

Ajoutons que pour BC_3 , les conditions étant des vitesses, nous n'avons aucune information sur une pression de référence. Le choix de cette valeur est arbitraire, d'où la translation de la courbe jaune dans la figure 2.5b.

Après ces comparaisons nous considérons pour la suite que la partie de écoulement de l'algorithme de la figure 2.1 est validée.

2.3.2 Diffusion en régime transitoire

Dans la même démarche de validation des processus de l'algorithme implémenté dans le code Palabos, nous nous intéressons dans cette partie à la validation du processus de diffusion unidimensionnelle en régime transitoire. Pour se faire, considérons un milieu unidirectionnel délimité par $x = 0$ et $x = L_x$. A ces extrémités, des conditions aux limites de concentrations constantes $C(x = 0, t) = C_{in}$ et $C(x = L_x, t) = C_{out}$ sont imposées. La concentration initiale du domaine est donnée par $C(x, t = 0) = f(x), 0 < x < L_x$. La solution analytique de ce problème de diffusion est donnée par [150] :

$$C(x, t) = C_{in} + (C_{out} - C_{in}) \frac{x}{L_x} + \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_{out} \cos(n\pi) - C_{in}}{n} \sin\left(\frac{n\pi x}{L_x}\right) \exp\left(\frac{-Dn^2\pi^2 t}{L_x^2}\right) + \frac{2}{L_x} \sum_{n=1}^{\infty} \sin\left(\frac{n\pi x}{L_x}\right) \exp\left(\frac{-D\pi^2 n^2 t}{L_x^2}\right) \int_0^{L_x} f(x) \sin\left(\frac{n\pi x}{L_x}\right) dx. \quad (2.9)$$

Pour simplifier la solution, nous considérons que la concentration initiale est nulle $C(x, t = 0) = 0$, ce qui annule le terme intégrale dans la solution (2.9). Les paramètres utilisés dans les simulations sont résumés dans le tableau 2.4. Pour des raisons pratiques, le modèle numérique est 2D avec des conditions de flux nul à $y = 0$ et $y = L_y$. Dans ce cas la solution de l'équation de diffusion est unidirectionnelle selon x .

La figure 2.6 montre la comparaison du profil de concentration de la LBM avec celui de la solution analytique donnée par l'équation (2.9). La différence entre la solution LBM et la

Paramètres	Unité SI	Unité lb
Domaine ($L_x \times L_y$)	$1.8 \times 10^{-04} \times 9 \times 10^{-04}$	180×90
Longueur caractéristique (L_{ref})	9×10^{-04}	90
Discrétisation en espace (Δx)	10^{-05}	1
Discrétisation en temps (Δt)	2.0833×10^{-05}	1
Coefficient de diffusion (D)	8×10^{-07}	1/6

Table 2.4 – Paramètres de simulation utilisés pour la validation du problème de diffusion unidirectionnelle transitoire avec $\tau_g^* = 1$

solution analytique à l'état stationnaire est calculée par :

$$Er(x, t) = \frac{\sum_x |C^{analy}(x, t) - C^{LBM}(x, t)|}{\sum_x |C^{analy}(x, t)|} \times 100\% \quad (2.10)$$

Une étude de sensibilité est réalisée afin de mettre en évidence l'influence des paramètres numériques tels que N et τ_g^* sur la solution du problème de diffusion. Un calcul d'erreur selon (2.10) dont les résultats sont présentés dans le tableau 2.5. D'après ces résultats, nous constatons que la meilleure solution avec la plus petite erreur par rapport à la solution analytique est celle qui correspond à $\tau_g^* = 1$ [151]. Il est à noter que l'influence du temps de relaxation τ_g^* sur la résolution numérique du phénomène de diffusion n'est pas similaire à celui de l'écoulement. L'erreur augmente lorsqu'on s'éloigne de $\tau_g^* = 1$, même si la discrétisation spatiale est plus fine.

N	20	60	90	120	160	180
Er(%)	4.46×10^{-05}	7.92×10^{-06}	1.37×10^{-06}	6.46×10^{-06}	5.92×10^{-06}	9.42×10^{-07}
τ_g^*	0.6	0.8	1	1.5	2	5
Er(%)	2.48×10^{-06}	1.37×10^{-06}	1.59×10^{-07}	1.11×10^{-05}	2.66×10^{-04}	3.13×10^{-04}

Table 2.5 – Erreur relative entre la solution LBM et solution analytique de la diffusion pure pour différent résolutions et temps de relaxation τ_g^*

Notons qu'une faible résolution est suffisante pour obtenir la solution analytique.

Après cette comparaison nous considérons que la solution d'un problème de diffusion est reproduite correctement et les erreurs numériques induites sont largement acceptables.

2.3.3 Diffusion et réaction chimique

Après la validation du problème de diffusion dans la section précédente, intéressons nous dans cette partie au couplage diffusion-réaction chimique. Il est important de mettre en avant l'influence des conditions aux limites de réaction sur la solution numérique d'un problème de diffusion. La réaction est implémentée dans le code selon plusieurs schémas : Meng et al. [117],

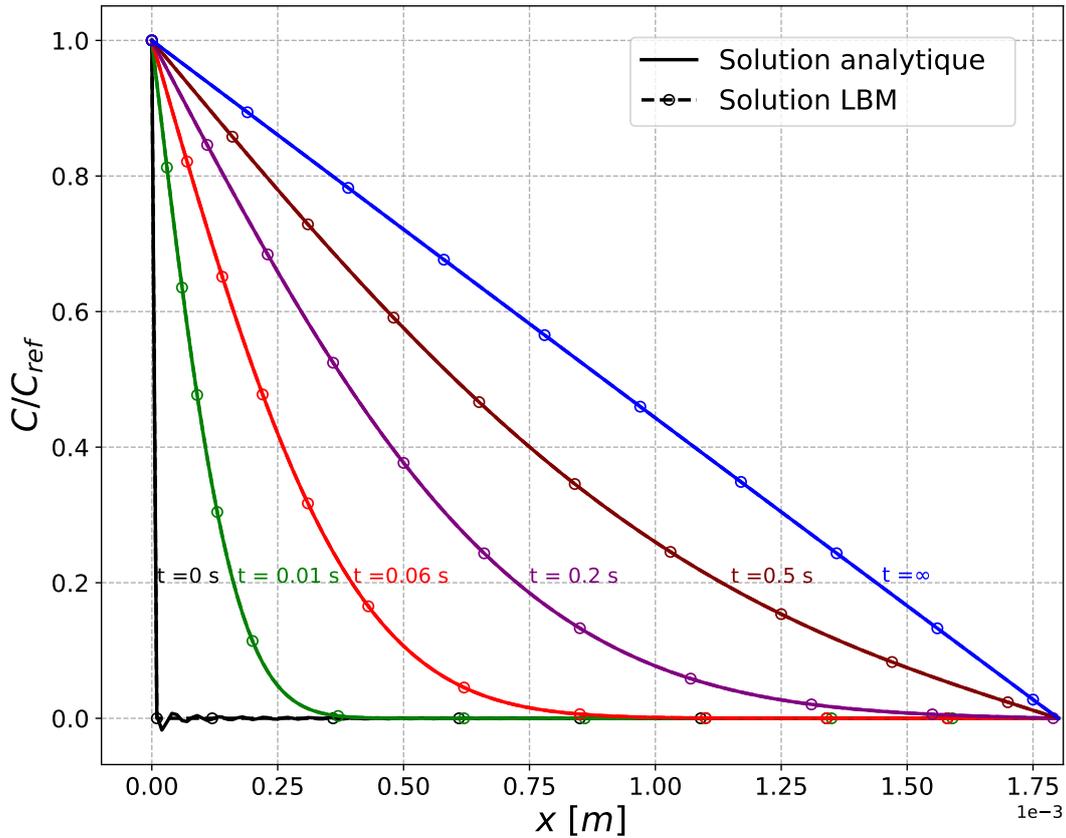


Figure 2.6 – Comparaison des profils de concentration numériques et analytiques à différents instants

Kang et al. [112] et transformation de la condition de Neumann ou différences finies [93] décrits dans la section 1.5.4. Plusieurs test sont présentés ci-dessous pour valider l'implémentation des conditions aux limites de réaction chimique. Cette dernière dépend de l'interface solide-fluide, de ce fait, plusieurs validations seront effectuées par comparaison à des solutions analytiques.

2.3.3.1 Interface fixe plane réactive

Cas unidirectionnel transitoire

Le premier test concerne le cas d'un problème diffusion unidimensionnelle en milieu semi-infini avec une réaction chimique linéaire du premier ordre à l'entrée (voir équation (1.27) avec $\beta = 1$ et $C_{eq} = 1$). Initialement, une concentration constante, $C(x, t = 0) = C_0 = 0$ est imposée dans tout le domaine. Les simulations sont effectuées avec les paramètres du tableau 2.4 et avec différentes valeurs du taux de réaction k correspondants à aux valeurs suivantes du nombre de Damköhler $Da = 0.05, 0.5, 5, 50$. La solution analytique de Crank [150] utilisée

dans [20, 152, 153] est donnée par :

$$C(x, t) = C_0 + (C_{eq} - C_0) \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) - \exp(hx + h^2 Dt) \operatorname{erfc} \left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}} + h\sqrt{Dt} \right) \right] \quad (2.11)$$

La figure 2.7 compare les résultats numériques obtenus par la méthode LBM avec la condition aux limites de Meng et la solution analytique pour différentes valeurs de Da . Nous remarquons que la concentration augmente en fonction du temps à $x = 0$, où la réaction a lieu. La limite est la concentration d'équilibre C_{eq} qui annule le second membre de la condition aux limites réactive (1.27). Cette augmentation de la concentration à $x = 0$ se propage ensuite dans le domaine par diffusion. Nous remarquons également que lorsque le nombre de Damköhler Da est important (figure 2.7a), l'équilibre chimique est atteint rapidement ($C(x = 0, t) = C_{eq}$) par comparaison au cas de faible Da de la figure 2.7d. Il est à souligner que les résultats numériques obtenus par LBM sont en bon accord avec la solution analytique quelque soit la valeur de t et Da .

Nous proposons de comparer les différents schémas (Meng et al. [117], Kang et al. [112] et la méthode des différences finies [93]) de la prise en compte de la condition aux limites de réaction dans la méthode LBM. Les mêmes études paramétriques pour les conditions aux limites de Kang et de différences finies ont également été effectuées. Une erreur relative sur la concentration est calculée par rapport à la solution analytique pour chaque schéma de condition aux limites. Cette erreur est calculée pour chaque instant t et à $x = 0$ où la condition aux limites est imposée. La figure 2.8 compare l'erreur relative en fonction du temps. Nous constatons que l'erreur relative de la condition aux limites de Meng est la plus faible quelque soit la valeur de t . Elle sera retenue dans la suite de ce travail.

Cas 2D stationnaire

Dans le second test, nous nous intéressons à l'extension de la validation en 2D. Nous nous intéressons à un problème stationnaire de diffusion d'une seule espèce couplée à une réaction chimique dans un domaine rectangulaire ouvert. Dans le domaine $L_x \times L_y$, la condition aux limites de réaction (1.27) est imposée sur la frontière supérieure ($y = L_y$) avec $\beta = 1$ et $C_{eq} = 1$. Une condition de flux nul est appliquée sur les frontières ($y = 0$) et ($x = L_x$). La frontière ($x = 0$) est soumise à une condition de concentration constante ($C(0, y) = C_{in}$). Le problème est décrit dans la figure 2.9 et les paramètres sont choisis selon l'étude réalisée dans [154].

La solution analytique stationnaire à ce problème est détaillée dans [155] et est donnée par l'équation 2.12.

$$C(x, y) = (C_0 - C_{eq}) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(\beta_n b)}{N_n^2 \beta_n} \frac{\cosh(\beta_n(x - L_x))}{\cosh(\beta_n L_x)} \cdot \cos(\beta_n y) + C_{eq} \quad (2.12)$$

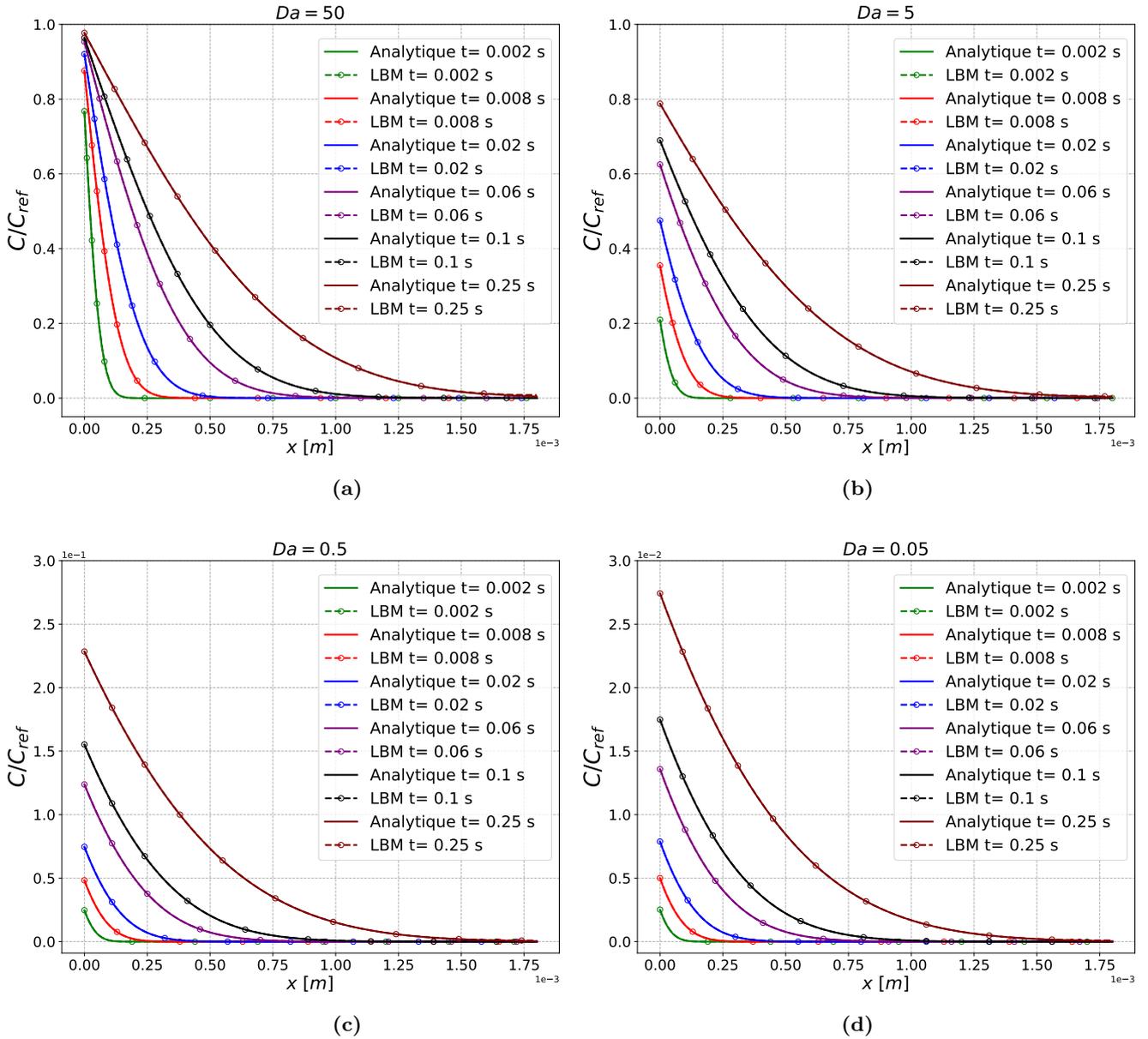


Figure 2.7 – Solution analytique (lignes solides) et solution LBM (lignes pointillées avec marqueurs circulaires) pour une réaction d'entrée traitée par la condition de Meng pour différentes valeurs de Da et t . Dans tous les cas, $\frac{C_{eq}}{C_{ref}} = 1$, $C_0 = 0$ et $\tau_g^* = 1$

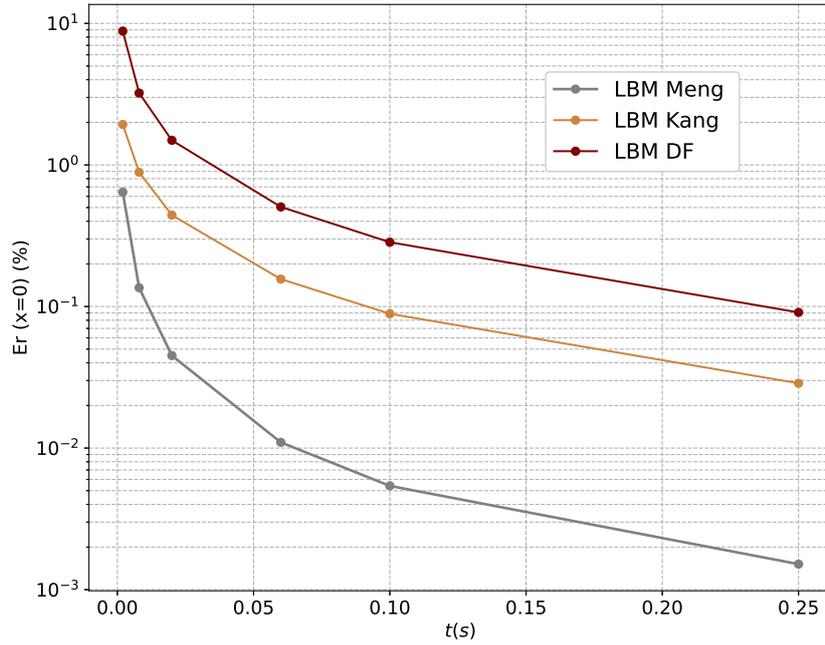


Figure 2.8 – Comparaison de l’erreur relative (à $x = 0$) sur l’échelle logarithmique pour différents schémas de conditions aux limites avec $Da = 5$ et $\tau_g^* = 1$

avec

$$(\beta_n L_y) \tan(\beta_n b) = \frac{k L_y}{D} \quad \text{et} \quad N_n^2 = \frac{L_y}{2} \left(1 + \frac{\sin(2\beta_n L_y)}{2\beta_n L_y} \right) \quad (2.13)$$

La figure 2.10 montre les contours de la concentration analytique et numérique stationnaire. Nous remarquons que les contours des concentrations obtenues par les trois schémas reproduisent d’une manière assez satisfaisante la solution analytique. Une légère différence est observée lorsqu’on s’approche des parois inférieure et de droite.

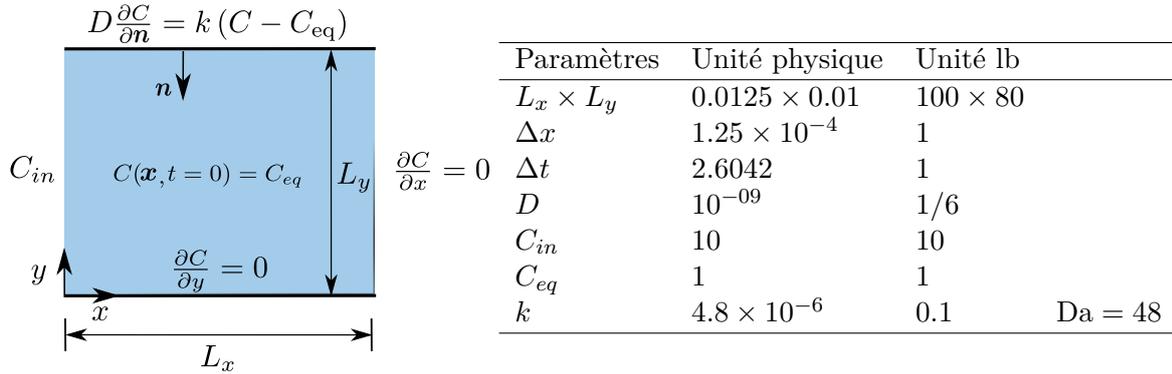


Figure 2.9 – Présentation du schéma du milieu simulé, des conditions aux limites et des paramètres utilisés dans la diffusion-réaction

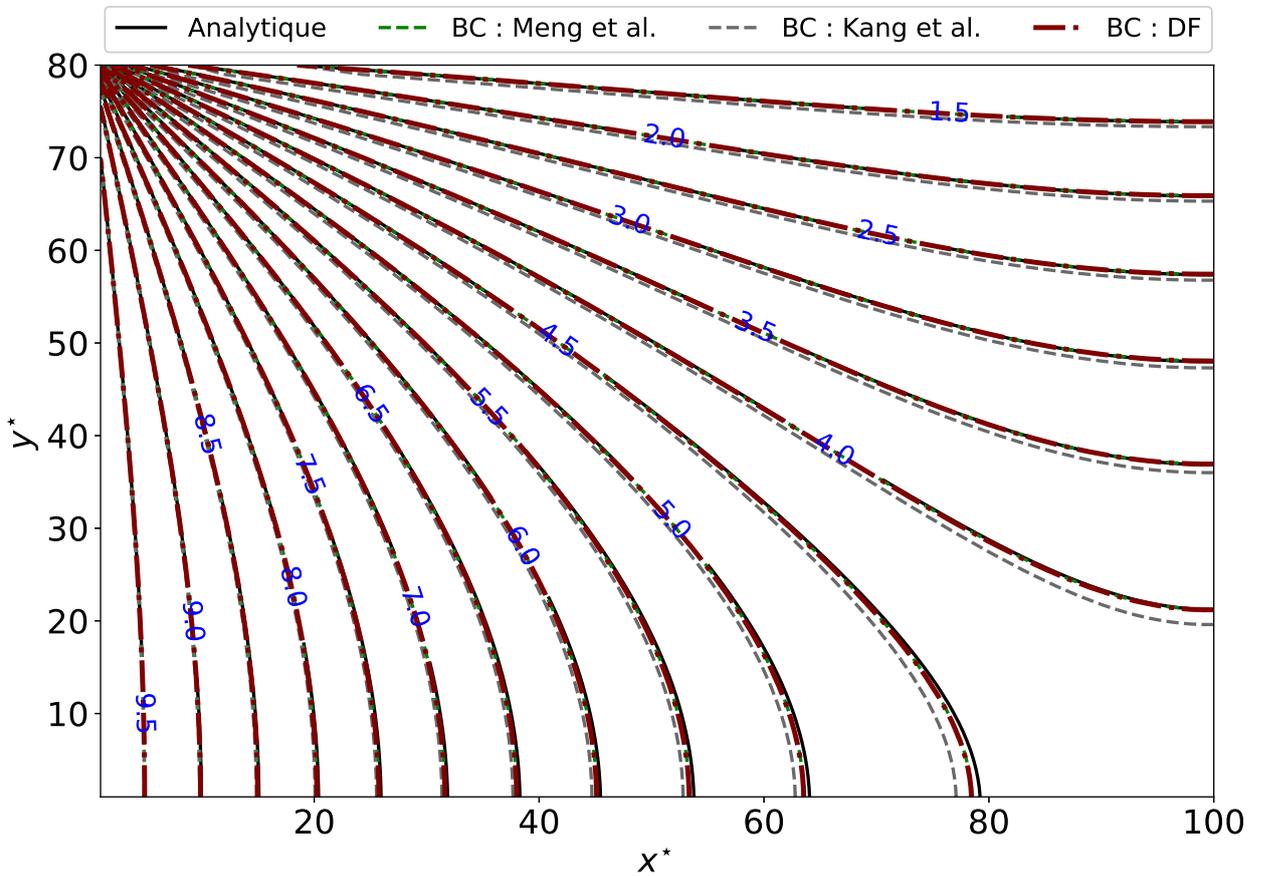


Figure 2.10 – Comparaison des contours de concentration numérique des trois traitements de la réaction en LBM par rapport au contour analytique pour le cas diffusion-réaction

Pour étudier la précision des schémas de conditions aux limites réactives et l'écart entre les résultats numériques et théoriques, un calcul d'erreur a été effectué en utilisant l'équation

suivante :

$$Er = \frac{1}{N_{tot}} \frac{\sum_{i,j} |C^{analy}(x_i, y_j) - C^{LBM}(x_i, y_j)|}{\sum_{i,j} |C^{analy}(x_i, y_j)|} \times 100\% \quad (2.14)$$

Les erreurs sont de 0, 10%, 0, 15% et 1, 22% correspondant aux conditions de Meng, de différences finies et de Kang, respectivement. Encore une fois l'erreur la plus faible correspond à la condition aux limites de Meng. Nous avons pu voir dans cette partie différents modèles de diffusion pure ou couplés à la réaction chimique pour une seule espèce. Tous ces modèles ont été comparés à des solutions analytiques dans le but de valider la partie "Solveur LBM pour le transport réactif" de l'algorithme la figure 2.1. Il est possible maintenant de considérer la partie diffusion-réaction est validée en régime stationnaire et transitoire.

2.3.4 Evolution de la microstructure

Nous nous intéressons dans cette partie à l'évolution de la géométrie du milieu par réaction de dissolution et/ou précipitation. Nous proposons deux cas simples afin de valider l'évolution de la microstructure avec modèles numériques de la littérature ou issus de code commerciaux.

2.3.4.1 Interface mobile due à la dissolution ou à la précipitation

Afin de valider la mise en œuvre de l'évolution de la microstructure due aux réactions hétérogènes, un modèle de dissolution unidirectionnelle d'une barre de sel est simulé. Il s'agit d'un canal de longueur $L_x = 0.002$ m et de largeur $L_y = 0.0005$ m recouvert sur sa moitié droite par une couche de minéral. L'autre moitié est occupée par un fluide immobile dans lequel une espèce chimique est transportée par diffusion de l'entrée vers le minéral (voir figure 2.11). Un problème de diffusion unidirectionnel est résolu avec une réaction de dissolution à l'interface solide-fluide. La concentration $C(x = 0, t) = C_{in}$ est imposée à l'entrée du domaine ($x = 0$). Comme dans les cas précédents, la réaction chimique est imposée à l'interface solide-fluide par la condition aux limites (1.27). Une condition de flux nul est appliquée sur les parois inférieure et supérieure, ce qui rend le problème unidirectionnel. A instant initial, la concentration dans le domaine est égale à celle de l'équilibre chimique $C(x, t = 0) = C_{eq}$. Les paramètres utilisés dans cette étude sont listés dans le tableau 2.6.

La dissolution se produit principalement à l'interface solide-fluide. La quantité de matière consommée au niveau du site réactif transforme le solide (minéral) en fluide et modifie la morphologie du milieu.

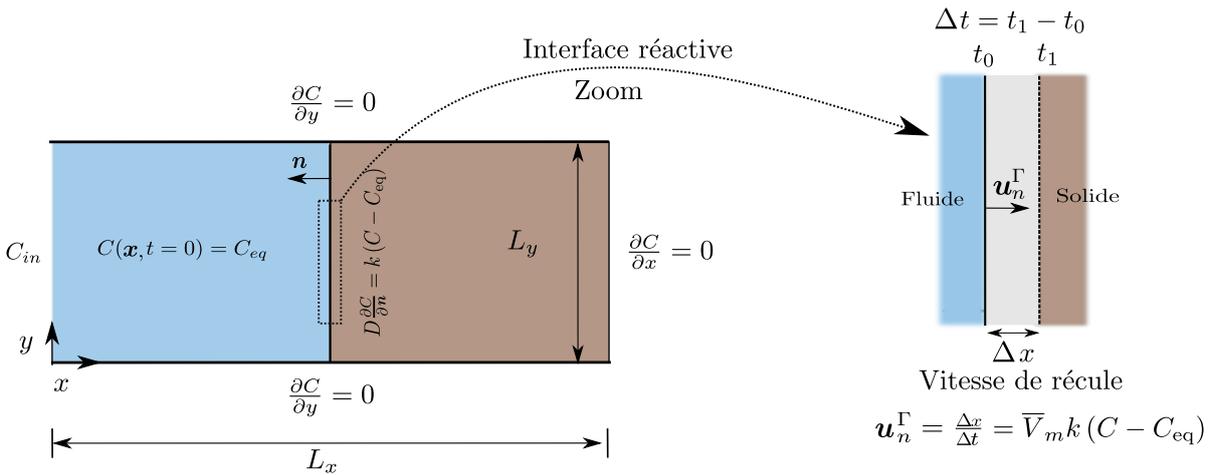


Figure 2.11 – Schématisation de la dissolution d'une couche de calcite

Paramètres	Unité physique	Unité lb	
$L_x \times L_y$	0.002×0.0005	400×100	
L_{ref}	L_y	100	
D	10^{-7}	1/6	
Δx	5×10^{-6}	1	
Δt	4.1667×10^{-5}	1	
C_{ref}	10^4	1	
C_{in}	10^4	1	
k	$10^{-2.05}$	7.42×10^{-2}	Da = 44.5
	2×10^{-3}	1/60	Da = 10
	2×10^{-4}	1/600	Da = 1
	2×10^{-5}	1/6000	Da = 0.1
\mathcal{S}	2×10^5	1	
V_M	3.69×10^{-5}	0.369	

Table 2.6 – Paramètres de la simulation de la dissolution unidirectionnelle

Le mouvement de l'interface solide-fluide est contrôlé par le taux de dissolution et évolue dans la direction normale avec une vitesse $u_n^\Gamma = V_M k (C - C_{eq})$. Cette dernière est liée au flux de diffusion normal à la même interface. Nous rappelons que V_M représente le volume molaire. L'évolution de la fraction volumique solide ϵ_s , rapportée au volume d'une cellule de la grille est donnée par :

$$\frac{\partial \epsilon}{\partial t} = -\mathcal{S} u_n^\Gamma \quad (2.15)$$

où $\mathcal{S} = \frac{1}{\Delta x}$ est la surface spécifique d'une cellule de la grille. Nous examinons le modèle de Boltzmann sur réseau en suivant la position de l'interface dans le temps et la variation de la concentration sur celle-ci. Les résultats LBM sont comparés aux résultats obtenus avec le code commercial Comsol Multiphysics basé sur la méthode des éléments finis. Dans ce cas l'évolution de l'interface est assurée par la méthode de maillage mobile ALE [48, 49].

Nous proposons pour commencer une étude paramétrique par rapport à la concentration d'équilibre chimique C_{eq} et pour un taux de réaction $k = 10^{-2.05}$ [m/s] correspondant à un nombre de Damköhler $Da = 44.5$ choisi dans la littérature [30]. La figure 2.12 de gauche montre la progression de la position de l'interface en fonction du temps. D'abord nous remarquons que la position augmente par rapport au temps t jusqu'à atteindre L_x . Nous constatons aussi, que le temps de dissolution augmente avec la diminution de C_{eq} . Ceci est dû au fait que le flux de diffusion à l'interface est proportionnel à $(C - C_{eq})$. Il est donc d'autant plus important que C_{eq} est faible. Par conséquent, la dissolution devient plus rapide.

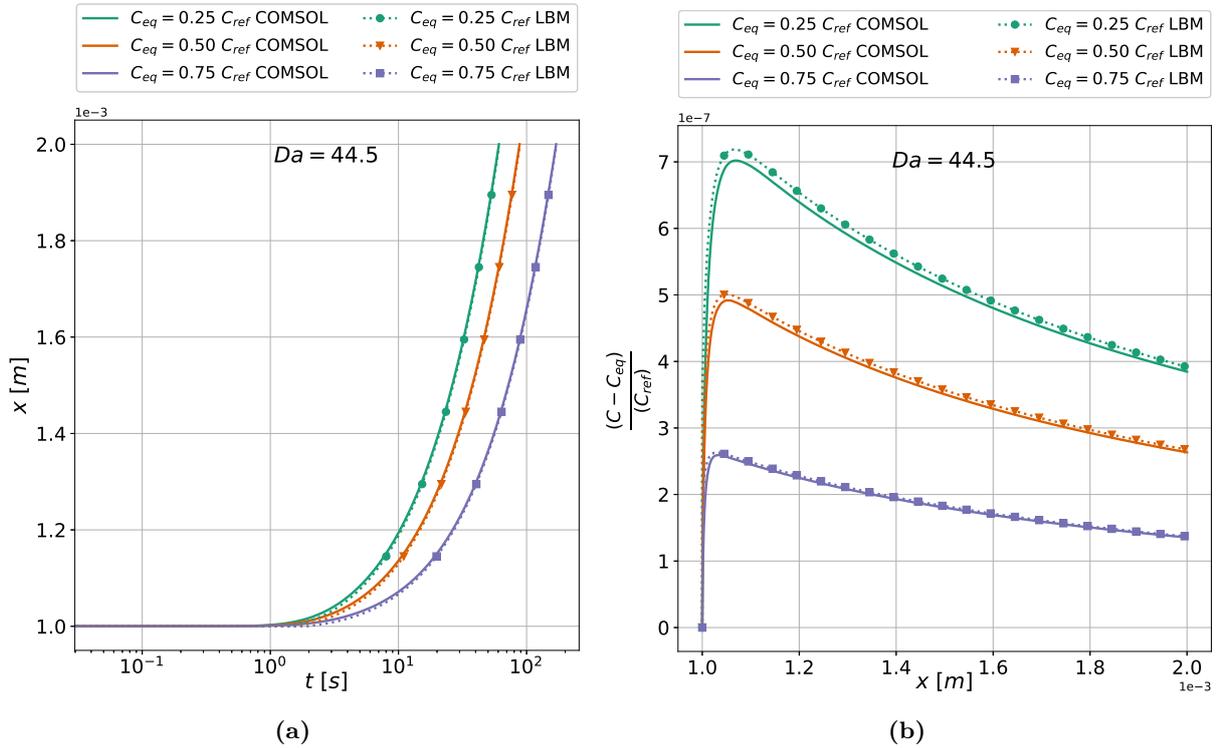


Figure 2.12 – Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps pour différents C_{eq} avec $k = 10^{-2.05}[\text{m s}^{-1}]$. A gauche la variation de la position de l'interface en fonction de temps et à droite celle de concentration en fonction de la variations de la position

La figure 2.12 de droite présente l'évolution de la concentration en fonction de la position de l'interface. Dans un premier temps, la concentration augmente par le flux de diffusion induit par la différence de concentration $(C_{in} - C_{eq})$ jusqu'à atteindre un maximum. L'effet de la diffusion est important par rapport à la réaction et changement de géométrie qui est assez faible au début. Dans un second temps, la concentration diminue progressivement avec l'augmentation de la position de l'interface. La concentration diminue à l'interface par réaction ce qui cause une modification de la position de celle-ci. En suite la valeur de la concentration au voisinage de l'interface est modifiée par diffusion sur un domaine de longueur différente. Sur la nouvelle interface la valeur de la concentration est calculée afin de respecter la condition aux limites réactive et ainsi de suite. Dans cette partie la variation de la concentration dans le domaine est principalement liée à réaction et la modification de la géométrie.

Le tableau 2.7 compare les temps finaux de dissolution du domaine solide obtenus par LBM et par Comsol. On entend par temps final de dissolution t_f , le temps nécessaire pour que la position de l'interface atteigne L_x . Nous remarquons que les valeurs de t_f obtenus par Palabos et par Comsol sont assez proches. Il est important de souligner que le traitement des interfaces dans les deux codes est différent. Dans le code Comsol la position de l'interface est mise à jour à chaque

$C_{eq} [mol\ m^{-3}]$		$0.25\ C_{ref}$	$0.50\ C_{ref}$	$0.75\ C_{ref}$
	COMSOL	60.90	88.30	170.20
$t_f [s]$	LBM	60.96	88.29	170.14

Table 2.7 – Temps de la dissolution complète t_f du domaine solide obtenus par COMSOL et par LBM pour différentes valeurs de C_{eq}

pas de temps. Cependant, dans Palabos le changement de géométrie est effectué par pas de dx lorsque la condition de dissolution sur la fraction volumique solide est vérifiée (voir figure 2.1).

Intéressons nous maintenant à l'influence de la vitesse de réaction sur le changement de géométrie. Dans cette partie la concentration de l'équilibre est fixée à $C_{eq} = 0.75\ C_{ref}$ et la vitesse de réaction k est considérée comme le paramètre variable. Les valeurs de k avec celle du nombre de Damköhler Da sont données dans le tableau 2.6.

La figure 2.13 représente la variation de position de l'interface en fonction du temps et la variation de sa concentration en fonction de la position de l'interface, pour plusieurs valeurs de Da . Nous remarquons la position de l'interface augmente avec Da , cela est dû à l'augmentation du taux de réaction k qui intervient dans la condition aux limite et la vitesse de dissolution u_n^{Γ} . Nous constatons aussi que la concentration est d'autant plus faible que Da est important. Cela est dû à l'augmentation du flux de diffusion sortant à l'interface. Un bon accord peut être observé entre la solution de COMSOL et notre modèle dans tous les cas 2.13 du point de vue de l'évolution de la position et de la concentration de l'interface ainsi que du temps de dissolution final comme montre le tableau 2.8.

Da		Da = 0.1	Da = 1	Da = 10
$t_f [s]$	COMSOL	710.3	221.8	173.9
	LBM	710.9	222.6	173.3

Table 2.8 – Temps de la dissolution complète t_f du domaine solide obtenus par COMSOL et par LBM pour différentes valeurs de Da

Comme pour le processus de dissolution décrit ci-dessus, la modélisation de la précipitation suit une méthodologie similaire. Nous considérons la précipitation du canal de longueur $L_x = 0.002 [m]$ jusqu'à la moitié. En supposant que dans les deux cas, la réaction se produit pour une concentration $C > C_{eq}$, la différence réside dans les signes des équations de bilan massique 2.15.

Comme pour le cas de la dissolution, les résultats numériques obtenus par Palabos sont comparés à ceux de Comsol. La figure 2.14 montre la variation de la position de l'interface

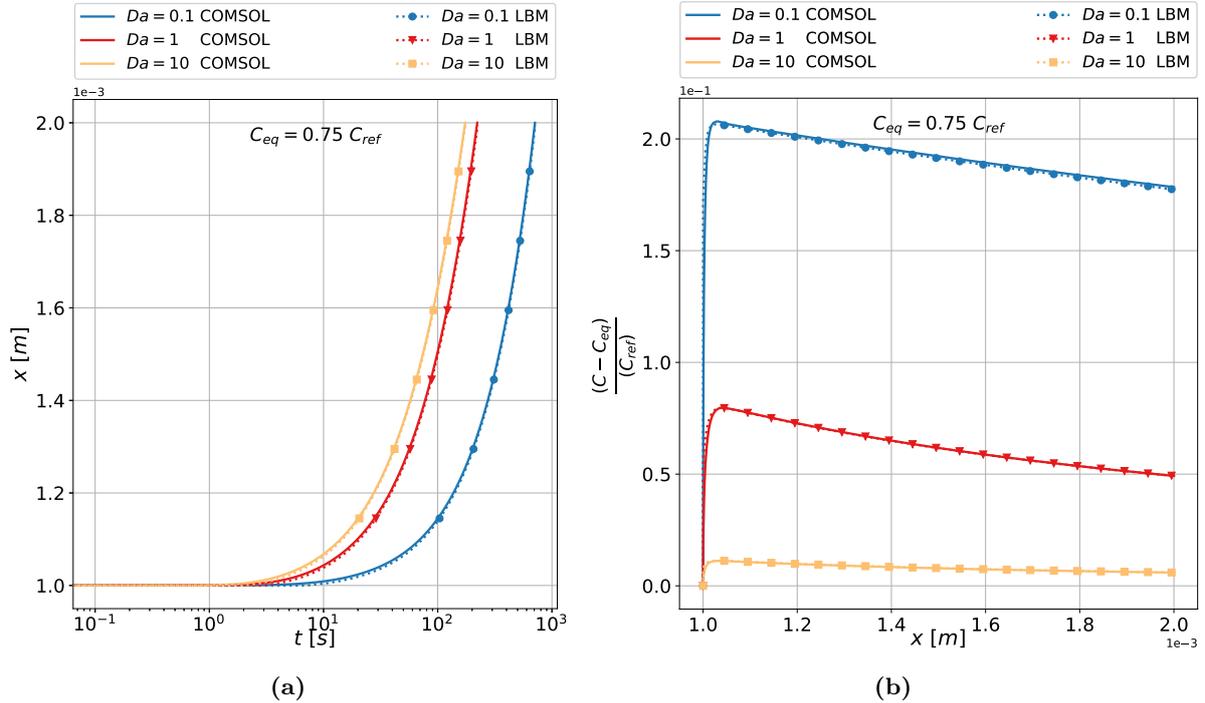


Figure 2.13 – Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps due à la dissolution pour différentes valeurs du nombre de Damköhler Da avec $C_{eq} = 0.75 C_{ref}$

réactive en fonction du temps. La figure 2.13b représente la variation de $(C - C_{eq})$ par rapport à la position de l'interface. Comme attendu, la vitesse de précipitation est d'autant plus importante que C_{eq} est faible car dans ce cas la différence de concentration $(C - C_{eq})$ est plus importante. Nous remarquons aussi pour un C_{eq} fixe, que la concentration augmente fortement au début (au voisinage de $2L_x$) par diffusion essentiellement. Dans un second temps lorsque le changement de géométrie est amorcé, l'augmentation de la concentration est progressive jusqu'à ce que la position de l'interface est égale à L_x .

C_{eq} [mol m ⁻³]		0.25 C_{ref}	0.50 C_{ref}	0.75 C_{ref}
	COMSOL	56.35	83.65	165.15
t_f [s]	LBM	56.79	84.20	165.94

Table 2.9 – Temps requis pour la précipitation dans le canal afin de le réduire à sa moitié pour différents C_{eq}

Comme dans l'étude de dissolution, nous étudions également la précipitation pour différentes valeurs de Damköhler : $Da = 0.1$, $Da = 1$ et $Da = 10$. Un bon accord peut être observé entre la solution de COMSOL et notre modèle dans tous les cas 2.15 du point de vue de l'évolution de la position et de la concentration de l'interface. La cohérence entre les résultats est prouvé

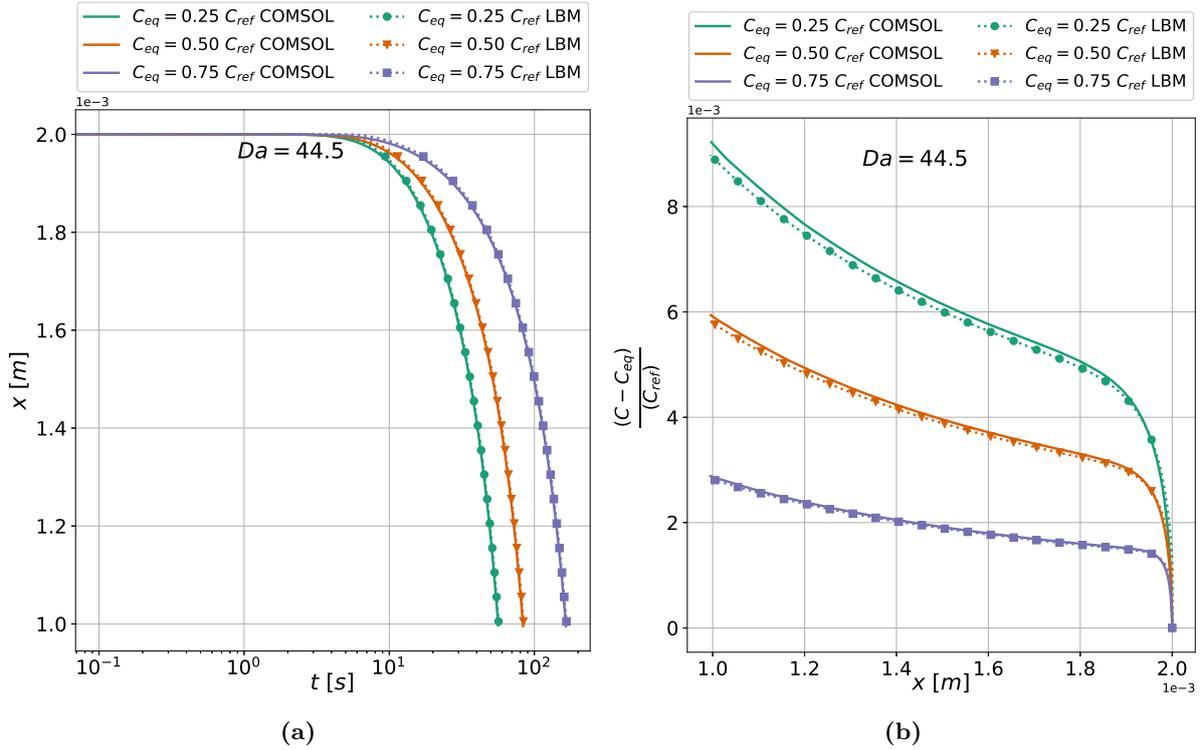


Figure 2.14 – Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps due à la précipitation pour différents valeur de C_{eq} avec $k = 10^{-2.05} [\text{m s}^{-1}]$.

Da		Da = 0.1	Da = 1	Da = 10
t_f [s]	COMSOL	718.65	217.5	196.4
	LBM	722.85	224	171

Table 2.10 – Temps requis pour la précipitation dans canal afin de le réduire à sa moitié pour différents Da

aussi par la comparaison du temps de précipitation d'une distance donnée comme le montre le tableau 2.9.

Nous nous sommes intéressés dans cette partie à l'évolution de la géométrie dans le cas d'un problème de diffusion-réaction unidirectionnel. Les résultats numériques de Palabos concordent bien à ceux obtenus par le logiciel Comsol. Cependant, la frontière réactive dans ce cas est plane et ne permet pas de voir l'influence des sites privilégiés de dissolution comme dans le cas d'une frontière quelconque. De plus, l'effet de la vitesse du fluide n'est pas pris en compte. Pour ces raisons nous nous intéressons dans la partie suivante à la dissolution dans le cas d'un milieu fracturé.

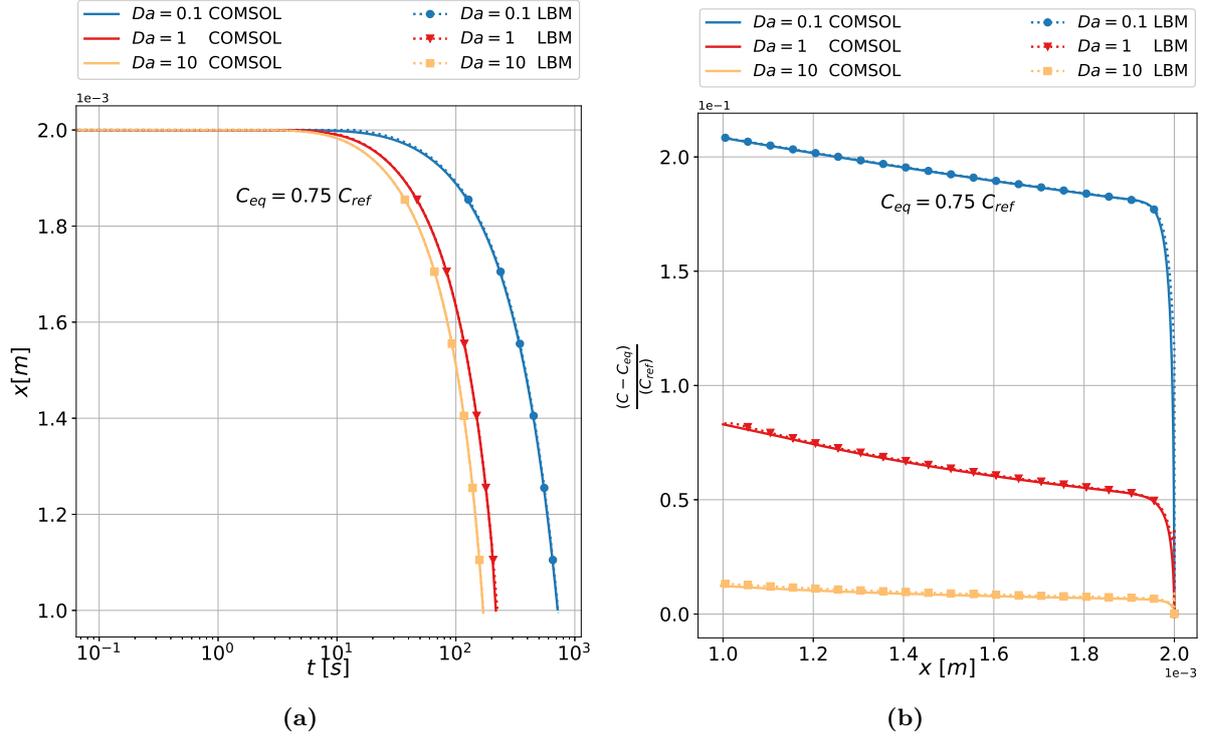


Figure 2.15 – Solution de COMSOL (lignes pleines) et solution LBM (marqueurs) pour une interface en mouvement au cours du temps due à la précipitation pour différentes valeurs de Damköhler avec $C_{eq} = 0.75 C_{ref}$

2.3.4.2 Dissolution dans un milieu à fracture simple

Dans ce cas, nous validons l'algorithme développé pour un cas plus général. Nous considérons donc le modèle de transport réactif en 2D comprenant le processus couplé d'écoulement, de transport et de dissolution dans un milieu à fracture simple représenté sur la figure 2.16. Ce dernier est constitué de deux blocs solides rectangulaires identiques avec une ouverture $h = \frac{L_y}{3}$ et une largeur totale de L_y . L'entrée et la sortie du domaine sont éloignées de la fracture pour éviter les effets de bord [115].

Comme illustré sur la figure 2.16, des conditions de pression sont imposées en entrée $P(x = 0, y, t) = P_{in}$ et en sortie $P(x = L_x, y, t) = P_{out}$ avec $P_{in} > P_{out}$. Sur les frontières solide-fluide une condition de non-glissement est appliquée c'est-à-dire $u = v = 0$, cette dernière est assurée par la condition de rebond dans la méthode LBM [156, 157]. Il est évident qu'avant tout changement de géométrie et lorsque l'écoulement du fluide atteint son stationnaire, le profil de vitesse au sein de la fracture est similaire à celui d'un écoulement de Poiseuille déjà présenté

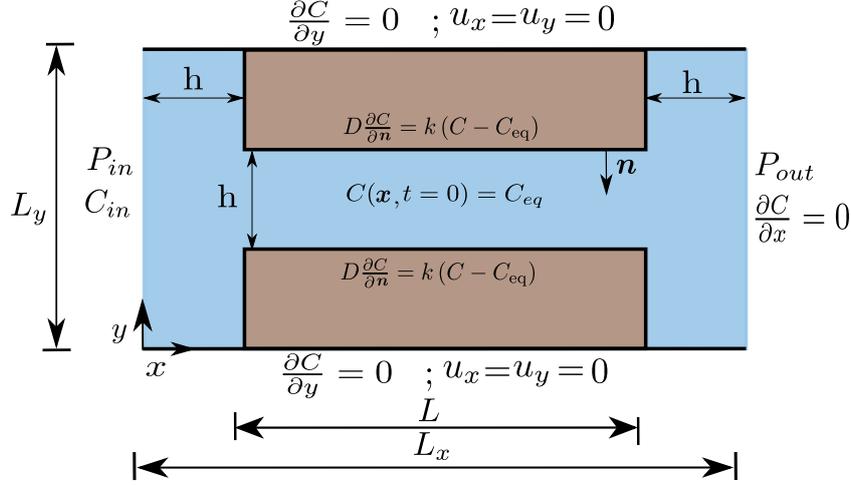


Figure 2.16 – Schématisation du milieu à fracture simple et des conditions aux limites

dans la section 2.3.1. Il en découle une perméabilité de la fracture égale à :

$$K_h = \left(\frac{h^2}{12} \right)$$

Cependant, la perméabilité en prenant en compte la partie solide est donnée par [158] :

$$K = \left(\frac{h^2}{12} \right) \left(\frac{h}{L_y} \right)$$

Initialement, la concentration de la solution est en équilibre chimique $C(x, y, t = 0) = C_{eq}$. Lorsque l'écoulement atteint l'état stationnaire, la concentration de soluté à l'entrée est fixée à $C(x = 0, y, t) = C_{in} = 0$ inférieure à la concentration d'équilibre C_{eq} , ce qui entraîne la dissolution du solide. C_{eq} est considérée constante pendant la simulation.

Nous considérons que la dissolution aura lieu uniquement sur les bords horizontaux de la fracture avec les quatre coins aux interfaces entre l'entrée/la sortie et les parois de la fracture. Le nombre de Damköhler Da est supposé très faible pour assurer une dissolution uniforme des parois de la fracture. La perméabilité normalisée par sa valeur initiale vérifie [114] :

$$\frac{K}{K_0} = \left(\frac{h}{h_0} \right)^3 = \left(\frac{h/L_y}{h_0/L_y} \right)^3 = \left(\frac{\phi}{\phi_0} \right)^3 \quad (2.16)$$

avec $K = K(t > 0)$, $K_0 = K(t = 0)$, $h_0 = h(t = 0)$, $h = h(t > 0)$, $\phi_0 = \phi(t = 0)$ et $\phi = \phi(t > 0)$ sont les composantes perméabilités dans la direction de l'écoulement, les hauteurs et les porosités de la fracture à $t = 0$ et à $t > 0$ respectivement.

La relation entre la perméabilité et la porosité normalisées est cubique. Elle est obtenue dans le cas d'une dissolution uniforme le long de l'interface solide-fluide de la fracture. Une relation identique est utilisée dans diverses études récentes [27, 54, 156, 159, 160] comme un cas de référence pour tester la précision du LBM dans les simulations du transport réactif.

Les paramètres utilisés dans les simulations sont résumés dans le tableau 2.11.

Paramètres	Unité physique	Unité lb	
$L_x \times L_y$	0.0018×0.0009	180×90	
L	0.0012	120	
ρ	1000	1	
ν	10^{-6}	1/6	
D	10^{-7}	1/60	
Δx	10^{-5}	1	
Δt	1.6667×10^{-5}	1	
V_M	3.69×10^{-5}	0.369	
\mathcal{S}	10^5	1	
C_{ref}	10^4	1	
C_{eq}	10^4	1	
k	5.5556×10^{-2}	9.25×10^{-2}	Da = 500
	5.5556×10^{-4}	9.25×10^{-4}	Da = 5
	5.5556×10^{-7}	9.25×10^{-7}	Da = 0.005
$\Delta P = P_{in} - P_{out}$	2×10^{-2}	5.5556×10^{-3}	Pe = 50
	2×10^{-3}	5.5556×10^{-4}	Pe = 5
	2×10^{-4}	5.5556×10^{-5}	Pe = 0.5
	2×10^{-5}	5.5556×10^{-6}	Pe = 0.05

Table 2.11 – Paramètres de la simulation de dissolution dans le milieu fracturé de la figure 2.16

La longueur caractéristique de l'écoulement et de la réaction de dissolution est L_y . La différence de pression $\Delta P = (P_{in} - P_{out})$ est calculée selon le développement détaillé dans l'article de Taahodi et al. [115] :

$$\Delta P = \frac{\mu \bar{U} L_y}{K} = \frac{\nu \rho \bar{U} L_y}{K} = \frac{Sc Pe \rho D^2}{\mathfrak{Da} L_y^2} \quad (2.17)$$

où Sc et Pe sont les nombres de Schmidt et de Péclet donnés dans les équations 1.16 et 1.17 et \mathfrak{Da} est le nombre de Darcy donné par :

$$\mathfrak{Da} = \frac{K}{L_y^2} \quad (2.18)$$

où \bar{U} est la moyenne de la vitesse sur l'ensemble du domaine.

La porosité de la fracture est calculée en divisant le nombre de nœuds fluides de la fracture N_f par le nombre de nœuds total N_{frac} sachant que les nœuds interfaces N_I sont considérés à moitié fluide et solide.

$$\phi = \frac{N_f + \frac{1}{2}N_I}{N_{frac}} \quad (2.19)$$

La perméabilité du milieu est calculée selon l'expression (2.20) utilisée par Taahodi et al. [115] :

$$K = \frac{\bar{U}_x \rho \nu L}{P_{in} - P_{out}} \quad (2.20)$$

Cette expression utilise les valeurs de la pression P_{in} et P_{out} imposées au milieu sur une longueur de la fracture L . La perméabilité de la fracture est calculée soit : en utilisant les valeurs de la pression à l'entrée $P(h, Ly/2)$ et à la sortie $P(L_x - h, Ly/2)$ de celle-ci :

$$K_{frac,1} = \frac{\bar{U}_{x,frac} \rho \nu L}{[P_{in,frac} - P_{out,frac}]_{y=Ly/2}} \quad (2.21)$$

soit en moyennant la pression uniquement sur les nœuds fluides à $(x = h)$ et à $(x = L_x - h)$:

$$K_{frac,2} = \frac{\bar{U}_{x,frac} \rho \nu L}{\bar{P}_{in,frac} - \bar{P}_{out,frac}} \quad (2.22)$$

La figure 2.17 montre la variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée obtenue pour un nombre de Péclet $Pe = 5$ et un nombre de Damköhler $Da = 0.001$. Sur cette figure nous comparons les perméabilités calculées par les expressions (2.20), (2.21) et (2.22) à l'expression théorique donnée par (2.16). Nous remarquons que la courbe théorique représentée en noir et la perméabilité $K_{frac,1}$ de la LBM sont parfaitement superposées. Nous remarquons également que la perméabilité $K_{frac,2}$ de la LBM est en accord avec la solution analytique ce qui signifie que la perturbation de pression au coin de la fracture est négligeable et n'affecte pas les résultats. Intéressons nous maintenant à la variation de la perméabilité normalisée K en fonction de la porosité normalisée. Cette variation est proche à la courbe théorique pour de faibles valeurs de la porosité normalisée $\frac{\phi}{\phi_0} < 1.5$, et elle l'en s'éloigne pour une porosité normalisée $\frac{\phi}{\phi_0} > 1.5$. Cet écart explique que l'espacement imposé à l'entrée et à la sortie du milieu dans [115] a une influence sur la relation étudiée et que son influence apparaît de manière significative lorsque l'épaisseur de la couche solide devient faible comme dans la figure 2.18c.

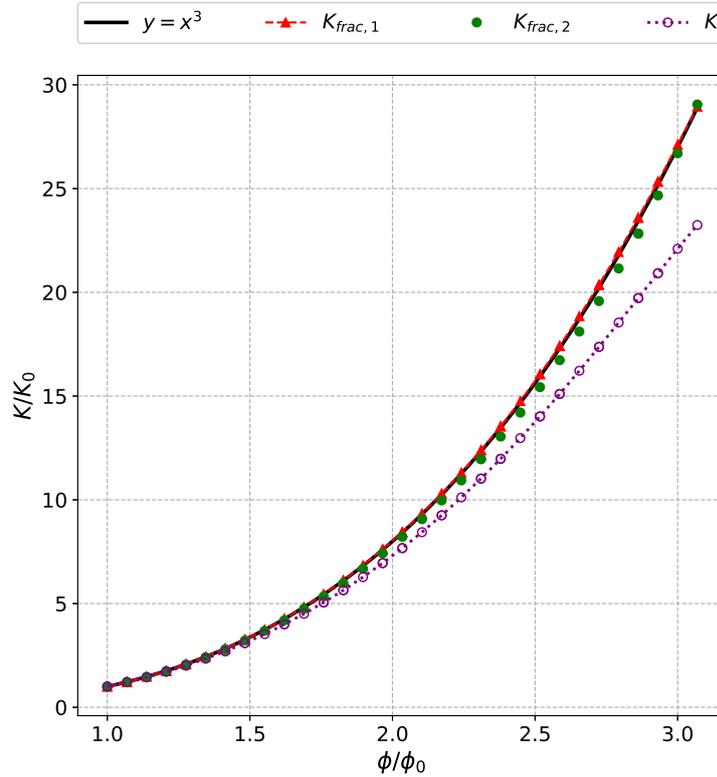


Figure 2.17 – Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour $Pe = 5$ et $Da = 0.001$.

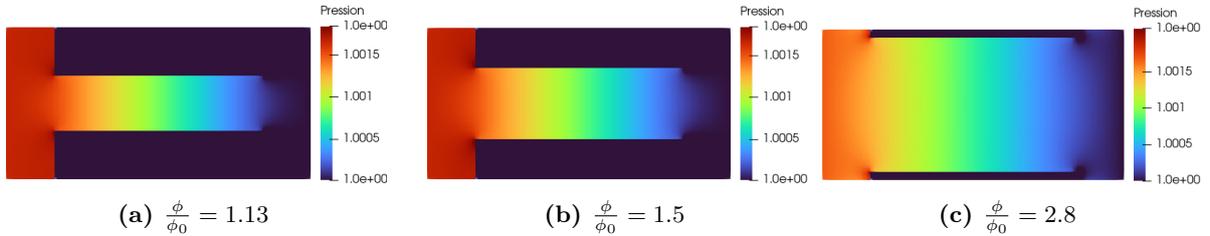


Figure 2.18 – Aperçu de l'évolution de la pression et de la morphologie en fonction de l'avancement de la dissolution du milieu

Cas d'une fracture avec des parois verticales solubles

Dans le premier cas, la dissolution est perpendiculaire à l'écoulement. L'effet de la vitesse au voisinage des parois verticales n'est pas pris en compte car elles sont considérées non réactives. Dans ce cas, les parois verticales de l'entrée et de la sortie de la fracture sont considérées solubles. La condition aux limites réactive est appliquée sur toute l'interface solide-fluide. Les conditions aux limites fluides restent inchangées. Nous nous intéressons ici à l'influence des différents régimes de transport et de réaction caractérisés par les nombres adimensionnels de

Péclet Pe et de Damköhler Da , sur la dissolution de la phase solide. Cela est mis en évidence par la variation de la perméabilité en fonction de la porosité normalisées sur la figure 2.19. Il en résulte que la relation perméabilité-porosité dépend fortement de Pe et Da . Pour un Pe faible et lorsque Da est petit (courbe en triangle vert), la courbe de perméabilité en fonction de la porosité normalisées, représente la limite supérieure légèrement en dessous à la courbe théorique $y = x^3$. La limite inférieure correspond à un Da important (courbe en rond vert). Pour un Pe important (courbe en bleu) la variation de la perméabilité en fonction de la porosité n'est sensible à la variation de Da . Cependant, la variation de la porosité et celle de la perméabilité en fonction du temps est dépendante de la valeur de Da . Pour un nombre de Damköhler Da donné (courbes représentées par des symboles de la même forme), la pente de la courbe perméabilité-porosité devient plus importante avec l'augmentation du nombre de Péclet. Nous constatons que la variation de la perméabilité l'emporte sur la variation de la porosité. En revanche, nous voyons l'inverse pour les faibles Péclet (représenté par des symboles de même couleur), puisque avec l'augmentation du nombre de Damköhler, un certain volume de solide est dissous sans pour autant changer la résistivité du milieu.

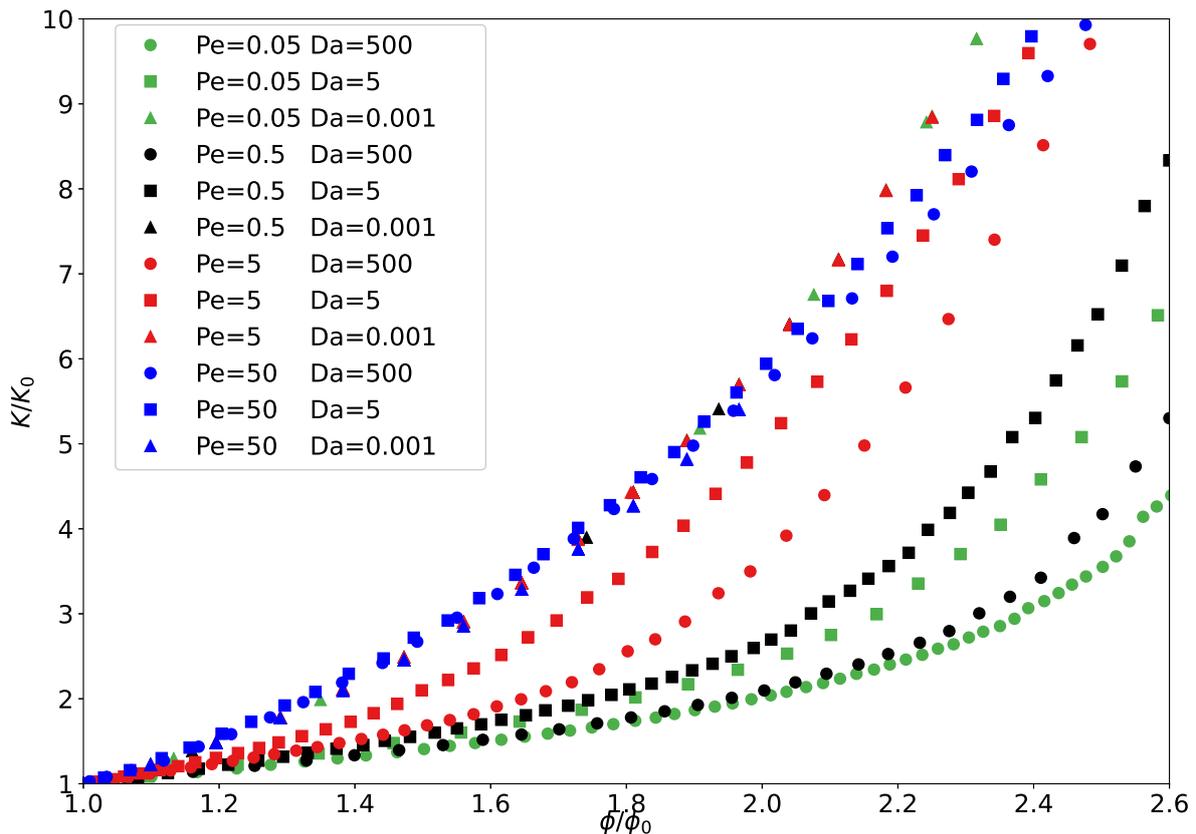


Figure 2.19 – Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée à différentes valeurs de Pe et Da correspondant à la dissolution du milieu fracturé de la figure 2.16

Nous comparons dans ce qui suit les différentes tendances observées dans la relation perméabilité-porosité normalisées aux résultats trouvés dans la littérature [114, 115, 161].

Pour un nombre de Damköhler faible $Da = 0.001$, présentés dans la figure 2.20, en raison du faible taux de réaction de dissolution, la perméabilité évolue en fonction de la porosité de manière similaire pour toutes les valeurs de nombre de Péclet Pe correspondants à différents régimes de transport. Ces courbes ne coïncident plus avec la solution analytique donnée par l'équation (2.16). En effet, pour une même valeur de perméabilité, la porosité donnée par les simulations est plus grande que celle donnée analytiquement. Une partie de l'augmentation de la porosité devrait être due à la dissolution des parois verticales qui ne contribue pas significativement à la perméabilité du milieu. Nos résultats (en pointillés) sont en bon accord avec ceux de Taahodi et al. [115] (en cercles). Les modestes divergences avec les deux autres études (Kang et al. [114], en cercles pleins et Min et al. [161] en hexagones) semblent être liées au choix de paramètres qui ne sont pas explicitement mentionnés dans leur travail, puisqu'ils n'ont rapporté que les valeurs de Pe et Da .

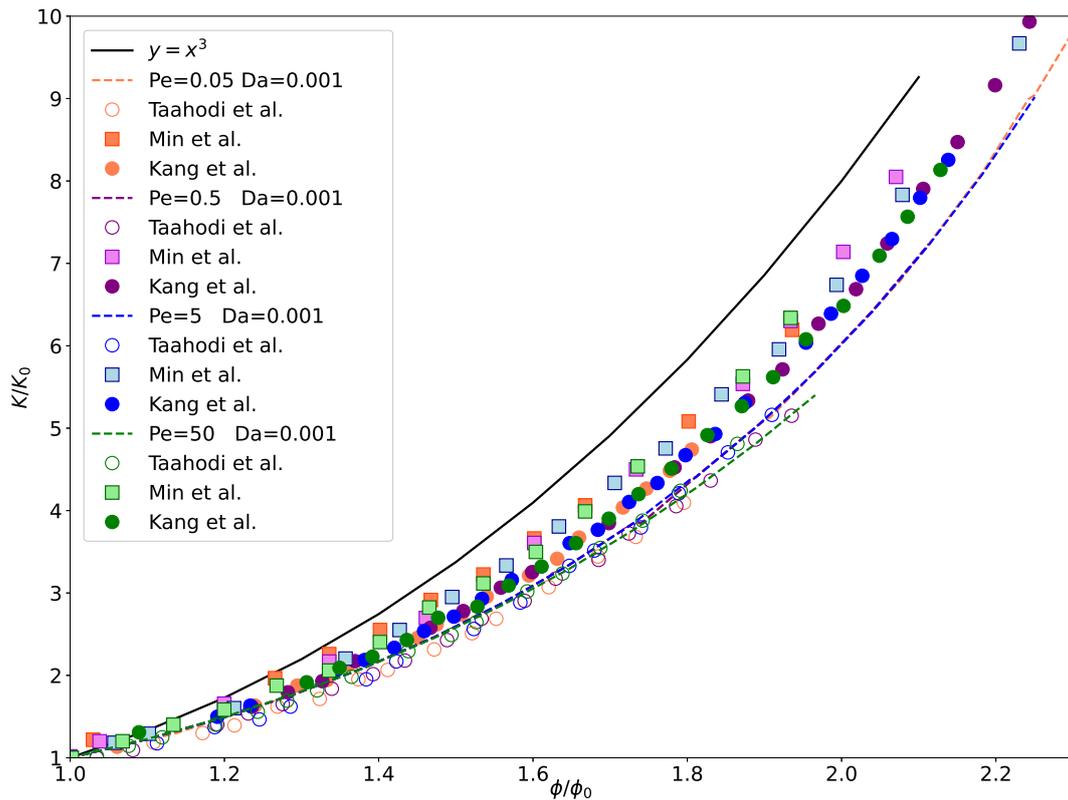


Figure 2.20 – Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour $Da = 0.001$. La ligne continue correspond à la relation analytique (2.16) entre la perméabilité et la porosité

De même, pour des Damköhler plus importants, la comparaison de nos résultats avec la littérature, figure 2.21, confirme la validité des courbes pour les différents régimes de transport.

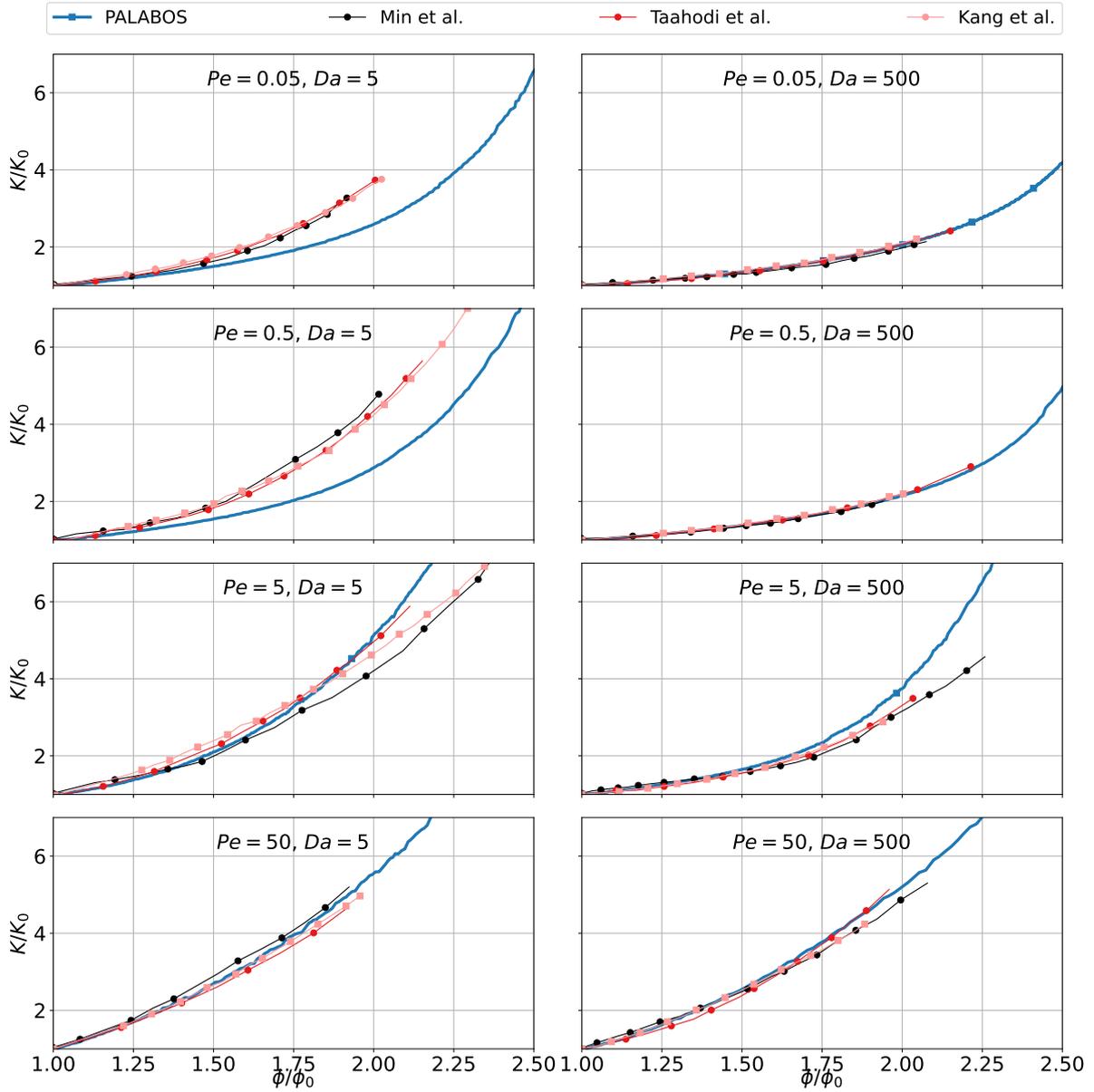


Figure 2.21 – Comparaison des relations perméabilité-porosité normalisées à l'ensemble des résultats de la littérature [114, 115, 161]

Revenons maintenant à la relation perméabilité-porosité représentée sur la figure 2.19. Nous remarquons qu'elles suivent des lois exponentielles doubles, qui sont des associations de deux lois exponentielles reliées via un point de basculement. Plus concrètement, les courbes de la figure 2.19 à faible Pe et forte Da montrent une lente augmentation de la perméabilité en fonction de la porosité jusqu'à un seuil au-delà duquel le système change d'état et l'effet de la perméabilité domine la variation de la porosité. Le comportement de la perméabilité en fonction de la porosité est probablement une conséquence de la variation de la morphologie au cours du temps. Nous mettons ensuite en relation ces tendances graphiques avec les formes dissoutes dans les différents régimes de transport.

La figure 2.22 montre la forme de l'interface solide-fluide pour différentes valeurs de la porosité normalisée et des nombres de Da et Pe . Nous remarquons sur la figure 2.22(a) pour $Pe = 0.05$ et $Da = 500$ l'existence d'un front de dissolution. Dans ce cas, les effets de réaction sont importants par rapport aux effets de diffusion et d'advection. L'avancement de ce front de dissolution dépend essentiellement du transport par diffusion. Ceci est illustré par les iso-lignes de concentration présentées dans la figure 2.23. Cet effet peut également être observé dans la courbe de perméabilité en fonction de la porosité, car la section longitudinale du canal ne varie pas grossièrement pour révéler un effet sur la perméabilité, c'est plutôt le phénomène de dégradation progressive qui domine.

Les figures 2.22(b,c,d) montrent que la réaction de dissolution se produit sur l'ensemble de l'interface solide-fluide avec plus d'effet à l'entrée de la fracture. Dans ces cas, l'effet du transport se manifeste par des interfaces courbées dans le sens de l'écoulement. Cependant, la combinaison de Pe et Da influence l'évolution de la morphologie de telle sorte que pour $Da = 500$, plus Pe est élevé, plus l'advection est forte, la concentration se propage rapidement dans la fracture (voir figure 2.23) et dissout les surfaces latérales dans la figure 2.22(b). Alors que pour des Pe plus faibles, la figure 2.22(d) montre que la dissolution prend le profil parabolique fait par le fluide. Dans la même logique, pour $Pe = 5$, l'évolution de l'interface par dissolution est au début frontale du fait d'un taux de réaction élevé. Ensuite une forme courbée apparaît lié à l'écoulement 2.22(c). Ceci est tout à fait remarquable sur le graphique de la perméabilité en fonction de la porosité (les marqueurs rouges carrés et ronds) où pour une même porosité le milieu est plus perméable pour $Pe = 5$ $Da = 5$ que pour $Pe = 5$ $Da = 500$.

Finalement dans le cas d'un nombre de Péclet important et d'un Damköhler faible, représenté sur la figure 2.22(e), l'évolution de l'interface solide-fluide est uniforme.

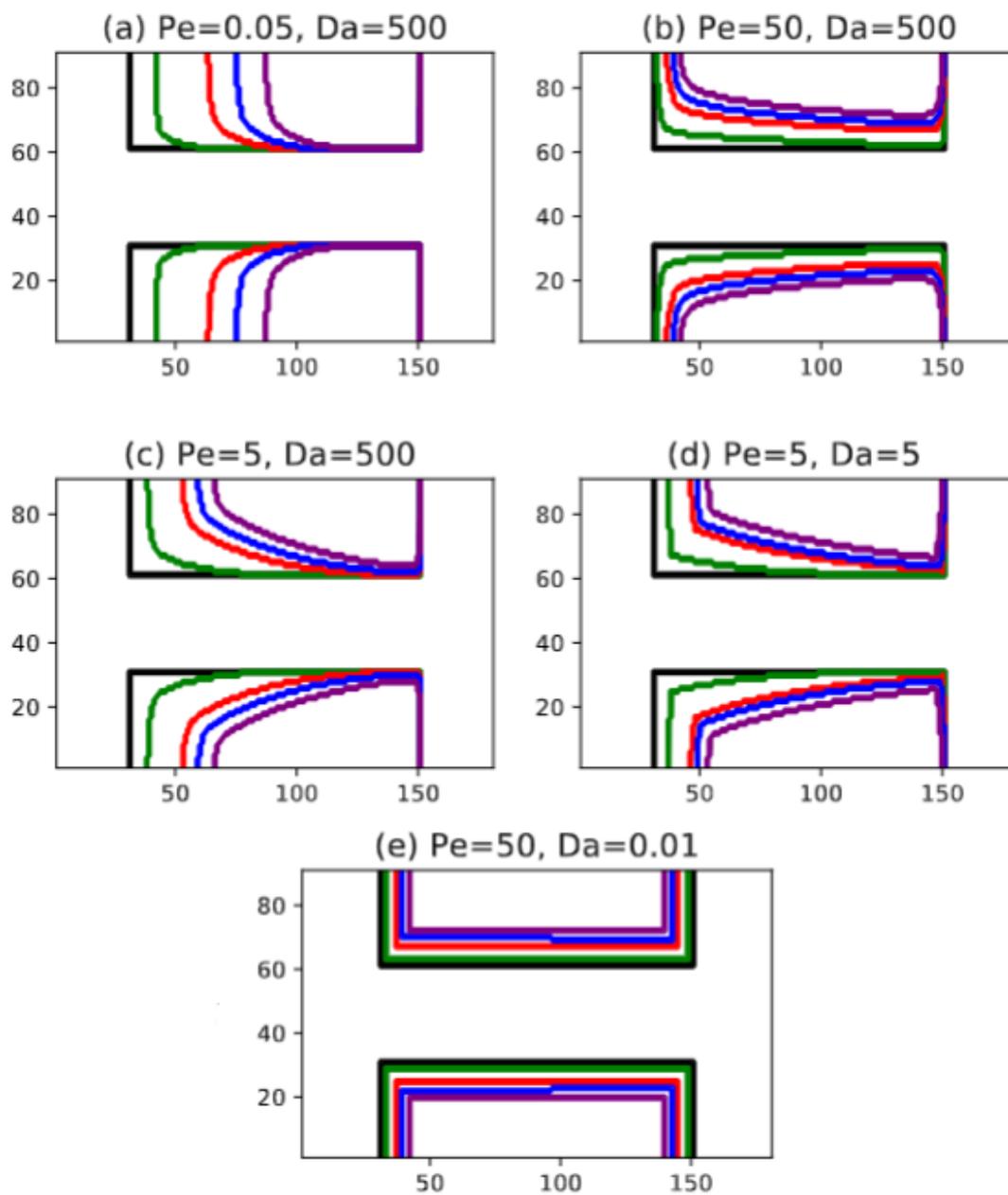


Figure 2.22 – Aperçu de l'évolution de la morphologie en fonction de la progression de la dissolution du milieu pour différents Péclet et Damköhler avec une porosité normalisée $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.2$, $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.6$, $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.8$ et $\frac{\phi}{\phi_0} = 2$

Nous en déduisons que l'évolution de la géométrie est principalement contrôlée par les nombres Pe et Da . Nous avons constaté différentes morphologies liées à la dissolution uniforme ou non uniforme. Pour la relation perméabilité-porosité normalisée, l'effet de la porosité domine lorsque la dissolution se présente sous la forme d'une érosion. Tandis que, la perméabilité l'emporte sur la porosité lorsque la dissolution est distribuée sur l'ensemble de la fracture. En effet, lorsque la dissolution s'étend sur toute la hauteur du canal, elle l'élargit ce qui permet au fluide de s'écouler plus facilement rendant le milieu plus perméable.

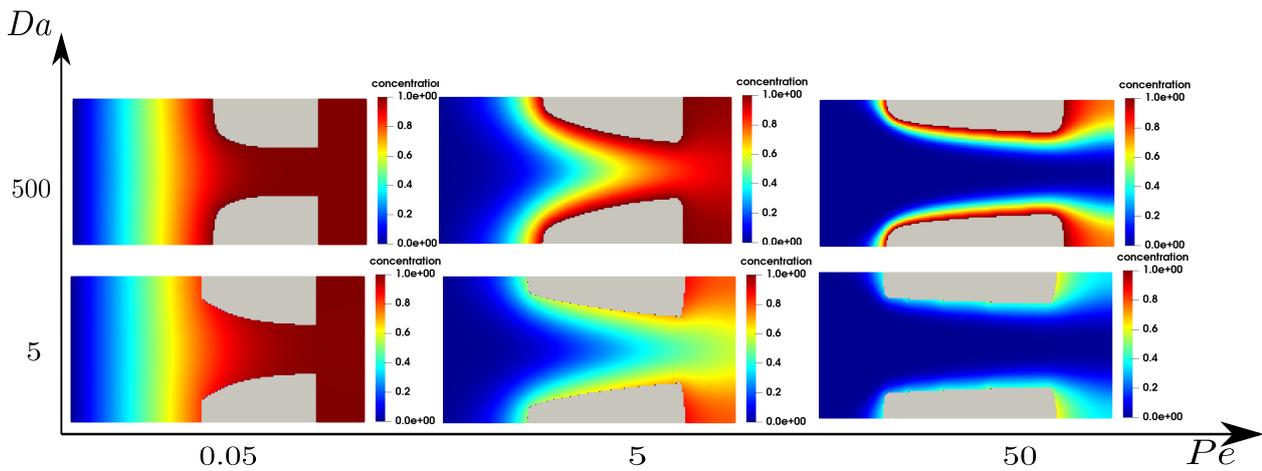


Figure 2.23 – Evolutions de la concentration normalisée et de la morphologie du milieu en fonction du nombre de Péclet et de Damköhler pour une porosité normalisée $\frac{\phi}{\phi_0} = 2$

Tous les articles qui ont réalisé cette étude se limitent à présenter la relation entre la perméabilité normalisée et la porosité sans fournir d'informations sur l'évolution de chacune d'elles dans le temps. La variation de la porosité et de la perméabilité normalisées en fonction du temps est représentée sur la figure 2.24. Les figures 2.25a et 2.25b montrent que la vitesse de dissolution n'est pas seulement liée à la vitesse de réaction mais aussi à la vitesse du fluide.

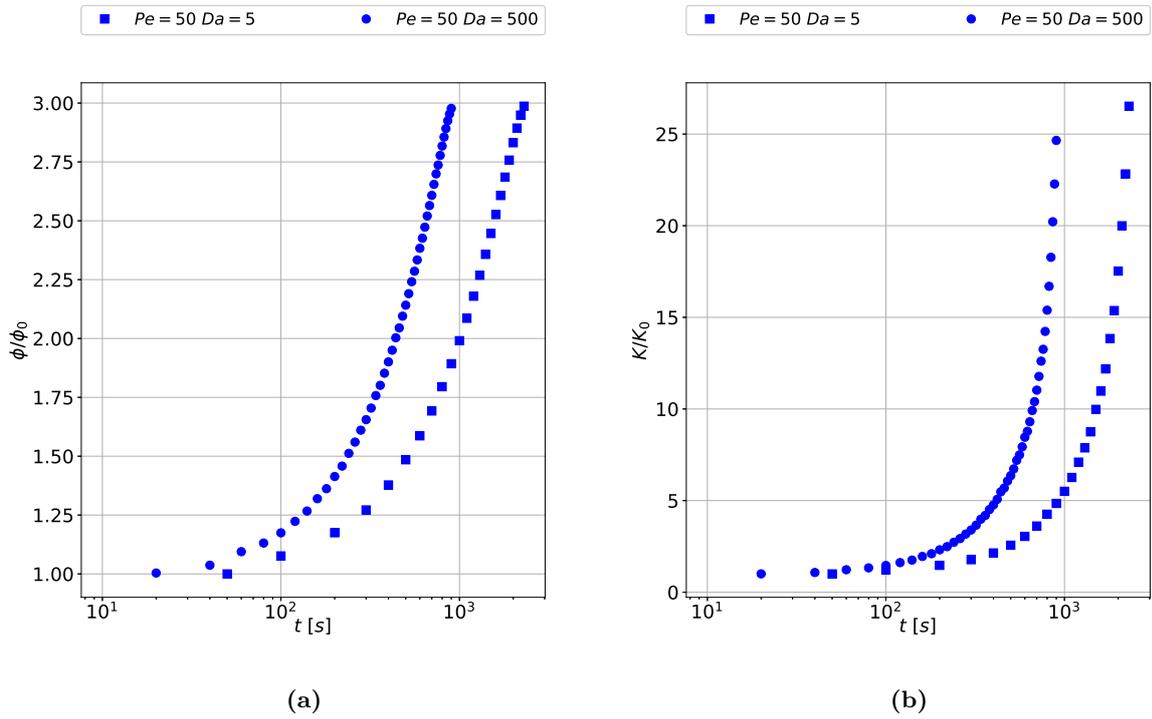


Figure 2.24 – La porosité normalisée et la perméabilité normalisée en fonction du temps pour un $Pe=50$ avec différents Da

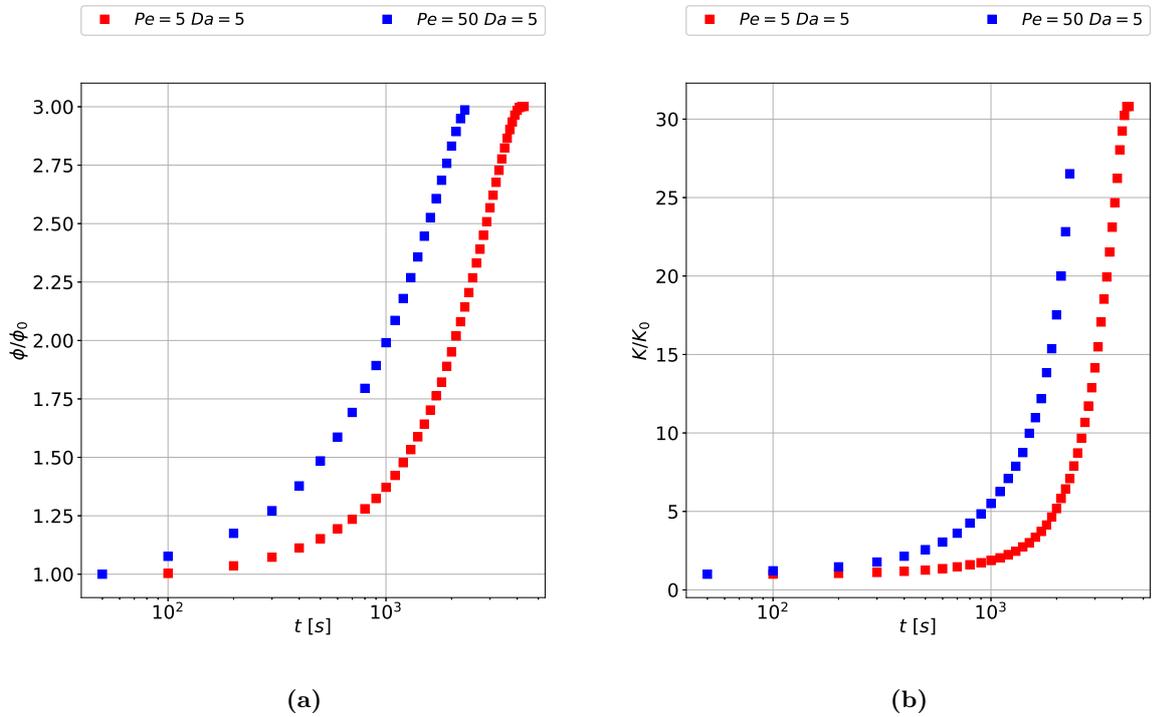


Figure 2.25 – La porosité normalisée et la perméabilité normalisée en fonction du temps pour un $Da=5$ avec différents Pe

Il est bien de noter que l'analyse temporelle et non temporelle sont différentes. Bien évidemment, pour un Pe donné, le Da le plus bas ($Da = 5$) représente la réaction la plus lente ainsi les courbes de porosité et de perméabilité ont besoin de plus de temps pour augmenter (figures 2.24b et 2.24a), donc $Da = 5$ est moins perméable pour un temps donné que $Da = 500$. Mais on remarque sur la relation perméabilité-porosité que la courbe $Da = 5$ est au-dessus de la courbe $Da = 500$. Cela signifie que le milieu est plus perméable pour $Da = 5$ que $Da = 500$ pour une porosité donnée.

Nous étudions également l'effet de la valeur de $C^* = \frac{C_{eq}}{C_{ref}}$ sur la dissolution pour tous les Pe et Da pour un rang de concentration compris entre 1 et 10^{-4} . Nous constatons que la perméabilité en fonction de la porosité est identique quelque soit la valeur de C^* sur la figure 2.27. Cependant, les variations de la porosité et de la perméabilité en fonction du temps sont différentes sur la figure 2.26. La vitesse de dissolution diminue avec la diminution de la concentration d'équilibre chimique C_{eq} . En effet, il faut plus de temps pour la dissolution complète du solide ce qui se traduit par le maximum de la porosité comme le montre la figure 2.26 à gauche. Le même effet est observé sur la courbe de perméabilité dans la figure 2.26 à droite.

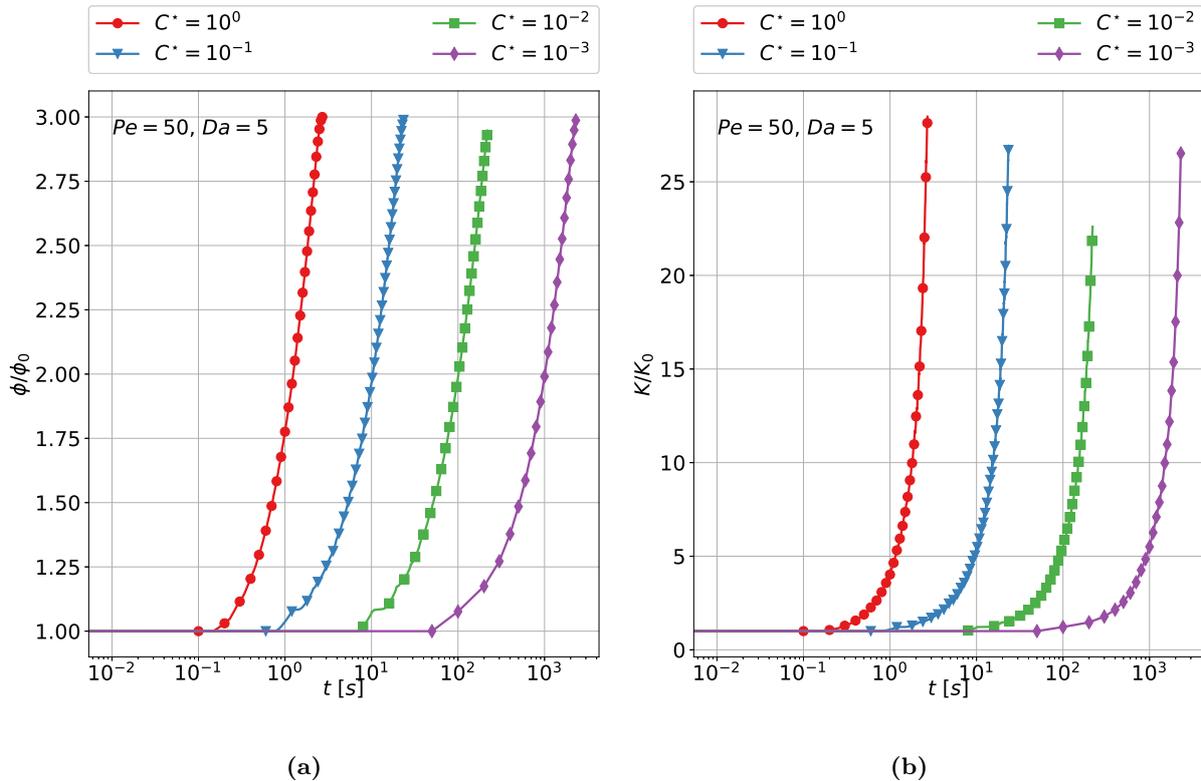


Figure 2.26 – La porosité normalisée et la perméabilité normalisée en fonction du temps pour différentes valeurs de C^*

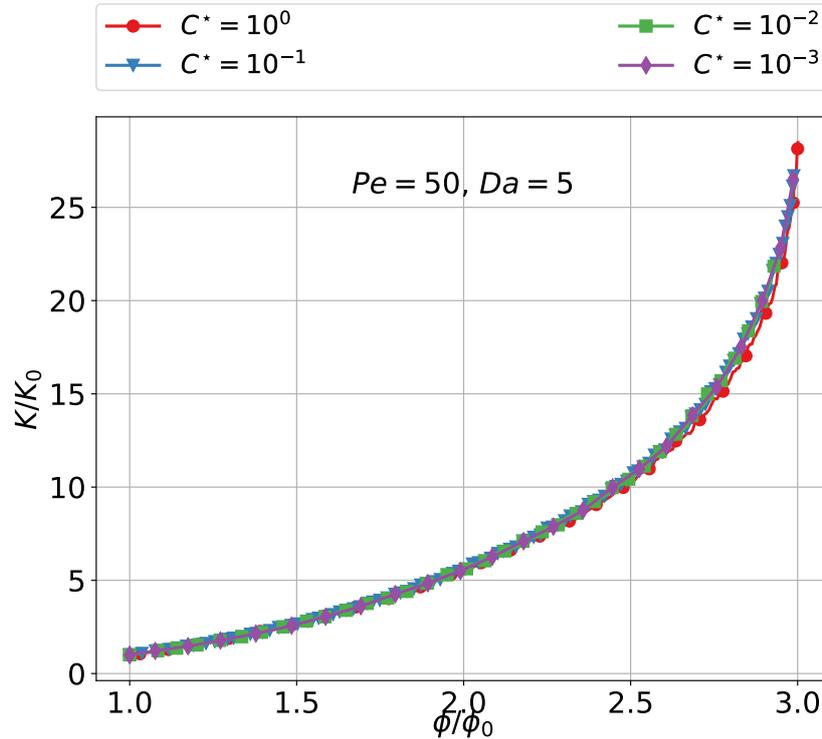


Figure 2.27 – La perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour différentes valeurs de C^*

2.4 Conclusion

Un cadre numérique a été développé dans le logiciel Palabos pour simuler la dissolution des minéraux dans un milieu donné. Une première partie a été consacrée à la validation du modèle implémenté. Ainsi, tous les phénomènes multiphysiques impliqués dans notre étude ont été successivement validés ainsi que leur couplage. Les résultats numériques prédits pour l'écoulement, le transport et la réaction étaient en accord avec les résultats analytiques. La réaction dans un milieu à fracture simple, a été simulée. Nos résultats numériques ont été comparés à ceux publiés.

L'évolution de la structure a été considérée pour prouver l'importance des nombres de Damköhler et de Péclet dans le transport réactif. Une corrélation de type loi puissante a été ajustée entre la perméabilité et la porosité. Pour expliquer la variabilité des lois de perméabilité et de porosité obtenues en raison de la réaction, la morphologie de la fracture dans une large gamme de régimes de transport et de réaction a été suivie et analysée. Nous en avons déduit que pour une représentation simple du pore, la réaction influence plus la perméabilité que la porosité du pore pour un Pe fort, que pour un Pe faible.

Malgré le fait que le milieu simulé soit la représentation la plus simple d'une ouverture

de pore, un effet significatif des régimes de transport sur la dissolution du milieu a été démontré à la fois qualitativement et quantitativement. La question est alors de savoir comment cette influence se manifeste avec des structures plus complexes et ce que l'on peut en déduire de manière générale, ce qui fera l'objet du prochain chapitre.

Chapitre 3

Modélisation des changements de microstructures dans des milieux poreux

Sommaire

3.1	Introduction	84
3.2	Différents types de tortuosité	85
3.3	Dissolution d'une inclusion circulaire	87
3.3.1	Etude de l'influence de la résolution spatiale et des conditions aux limites sur les résultats de la dissolution	88
3.3.2	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation perméabilité – porosité.	92
3.3.3	Evolution de la morphologie au cours de la dissolution	94
3.3.4	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation tortuosité – porosité.	97
3.4	Dissolution d'un milieu poreux périodique	101
3.4.1	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation perméabilité – porosité	103
3.4.2	Evolution de la morphologie au cours de la dissolution	104
3.4.3	Etude de l'influence du régime du transport sur la relation surface spécifique – porosité	106
3.4.4	Suivi temporel de l'évolution des inclusions circulaires cellule par cellule	109
3.5	Dissolution des milieux poreux aléatoires	111
3.5.1	Génération des milieux poreux	111
3.5.2	Effet du caractère aléatoire de la structure poreuse sur les propriétés du milieu poreux	112
3.6	Transport réactif dans les milieux complexes	115
3.7	Conclusion	119

3.1 Introduction

La prédiction de la durabilité des matériaux poreux, est principalement liée à la diffusion d'ions agressifs, d'humidité, de gaz et d'autres agents agressifs dans ces matériaux. Par exemple, dans le cas des milieux marins, la pénétration des chlorures induit la dégradation du béton armé et affecte la durabilité des matériaux, réduisant ainsi la durée de vie de ces structures [162, 163]. Il est donc essentiel de caractériser le milieu poreux pour connaître sa résistance lorsqu'il est traversé par des flux provoquant des dégradations chimiques. Cette caractérisation se traduit par la connaissance des propriétés macroscopiques qui sont directement liées à leur microstructure et plus précisément à la morphologie de leurs pores. Différents paramètres sont utilisés pour décrire la microstructure des matériaux poreux. Bien que la porosité soit l'un des paramètres les plus utilisés, ils ne sont pas suffisants pour caractériser les matériaux poreux en raison de leur complexité [164]. Par conséquent, d'autres paramètres tels que la perméabilité et la tortuosité sont impliqués [165]. Plus le milieu est perméable, plus il est facile pour les agents agressifs de pénétrer dans le réseau poreux du matériau et de le dissoudre. L'évolution temporelle locale des matériaux (obstruction ou élargissement des pores) induisent une orientation de l'écoulement et du transport qui évoluent également avec le temps.

Ce chapitre est consacré à l'étude des grandeurs telles que la porosité, la perméabilité, la tortuosité, qui influencent l'écoulement des fluides et le transport réactif. Le modèle à l'échelle du pore est utilisé pour nous aider à saisir l'évolution géométrique due à la dégradation du milieu. Le chapitre est organisé comme un ensemble d'études divisées en trois parties.

Dans une première partie, nous nous concentrons sur la résolution des champs d'écoulement et de concentration autour d'un grain minéral en dissolution. La forme de ce grain dans une section droite est initialement circulaire. Nous quantifions l'influence de la dissolution au cours du temps en étudiant l'évolution de la surface spécifique et du volume du grain (surface du grain en 2D). La déformation du grain est suivie dans le temps et une comparaison des formes dissoutes obtenues sur la base de différents régimes de transport est établie. Cette étude est complétée par une tentative d'établissement de relations entre les propriétés macroscopiques.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous étendons notre étude à la simulation du milieu poreux constituée d'une répétition périodique d'une cellule élémentaire à inclusion circulaire de rayon donné. Une étude quantitative et qualitative est également introduite.

Enfin, dans la dernière partie nous étudions la sensibilité de la dissolution aux changements de l'hétérogénéité décrite numériquement par la position aléatoires des grains en combinaison avec le nombre de Péclet et de Damköhler. Avant de présenter les applications et de discuter les résultats, nous introduisons la définition de la tortuosité. C'est une des propriétés d'un milieu

que nous allons étudier dans ce chapitre en plus de la perméabilité et de la porosité déjà définies dans la section 1.2.2 du chapitre 1.

3.2 Différents types de tortuosité

La notion de la tortuosité est utilisée pour décrire l'interconnexion des pores et son impact sur les processus de transport dans les milieux poreux. Elle quantifie l'accroissement du trajet parcouru par le fluide [166]. La tortuosité n'a pas de définition unique et simple. Les valeurs de la tortuosité géométrique (T_g), hydraulique (T_h), et diffusionnelle (T_d), sont en général différentes les unes des autres [167]. La tortuosité géométrique est définie comme le rapport moyen entre la longueur des pores et la longueur de la projection des pores dans la direction de l'écoulement [168, 169] :

$$T_g = \frac{L_{\min}}{L_0} \quad (3.1)$$

Le concept de tortuosité purement géométrique n'a pas été largement reconnu dans l'étude de la perméabilité, de la conductivité ou de la diffusivité. Par conséquent, d'autres définitions de la tortuosité sont entrées en jeu [167, 170]. La tortuosité hydraulique est définie comme le rapport entre la longueur moyenne effective du trajet du fluide à travers un milieu poreux et la longueur du trajet direct idéal (L_0) [164, 171] :

$$T_h = \frac{L_{\text{eff}}}{L_0} \quad (3.2)$$

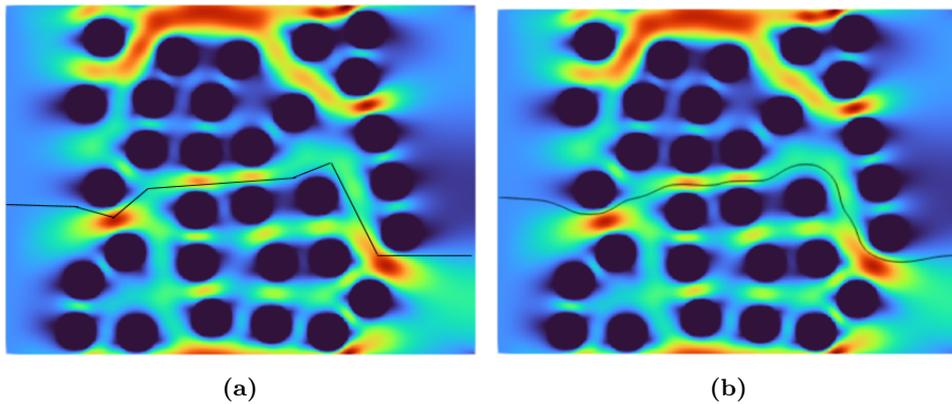


Figure 3.1 – Milieu poreux sélectionné dans lequel la tortuosité hydraulique et géométrique ont été comparées en suivant le chemin géométrique dans la figure 3.1a et hydraulique dans la figure 3.1b. La couleur correspond au champ de vitesse dans le domaine. Les régions en rouge représentent les zones les plus perméables du milieu

D'autres chercheurs ont mis en œuvre des simulations numériques pour calculer la tortuosité hydraulique en simulant les lignes de courant [172] ou en utilisant directement le champ de vitesse [173]. Dans la méthode des lignes de courant, nous devrions avoir besoin du nombre nécessaire de lignes de courant. Par conséquent, la deuxième méthode est souhaitable car cette méthode s'est avérée particulièrement utile du fait que les informations sur le champ de vitesse sont disponibles après avoir résolu l'écoulement du fluide à travers la LBM [174].

Ainsi, la définition de [175–178] exprime la tortuosité hydraulique comme le rapport entre le module du vecteur vitesse du fluide et la vitesse du fluide dans la direction macroscopique de l'écoulement

$$T_h = \frac{\sum_{i,j} \|\mathbf{u}(x_i, y_j)\|}{\sum_{i,j} |u_x(x_i, y_j)|} \quad \text{avec} \quad \|\mathbf{u}(x_i, y_j)\| = \sqrt{u_x^2(x_i, y_j) + u_y^2(x_i, y_j)} \quad (3.3)$$

Sachant que les deux tortuosités représentées dans les figures 3.1a et 3.1b sont basées sur un calcul de longueurs, la tortuosité de diffusion moléculaire ou tortuosité diffusionnelle est calculée à partir des changements temporels de la concentration. La définition répandue dans la littérature [164, 167] est

$$T_d = \frac{D}{D^{\text{eff}}} \quad (3.4)$$

Une autre approche courante a consisté à définir la tortuosité de diffusion en prenant en compte la porosité [1, 163, 179],

$$T_d = \frac{\phi D}{D^{\text{eff}}} \quad (3.5)$$

où D^{eff} est la diffusivité effective est souvent représentée comme une moyenne du coefficient de diffusion dans le fluide inclus les effet des parois des grains. En effet, dans un milieu poreux la diffusion moléculaire est freinée par la présence de parois limites internes [180]. Pour déterminer le coefficient de diffusion effective D^{eff} , il suffit de résoudre une équation de diffusion jusqu'à l'état stationnaire. Une fois le flux constant est trouvé, D^{eff} est donné par :

$$D^{\text{eff}} = -J \frac{L_0}{\Delta C} \quad \text{tel que} \quad \Delta C = C_{in} - C_{out} \quad (3.6)$$

Après avoir défini toutes les propriétés utiles incluses dans notre étude (i.e. perméabilité, porosité, tortuosité, etc.), nous consacrons les sections suivantes aux résultats de la modélisation du transport réactif. Les résultats sont traduits en termes de corrélations trouvées entre ces propriétés lorsque le milieu est soumis à une réaction de dissolution. Les milieux numériques traités sont l'inclusion circulaire, la répétition séquentielle de plusieurs cellules élémentaires à inclusions circulaires, un réseau de grains distribués aléatoirement, et un milieu poreux à structure complexe.

3.3 Dissolution d'une inclusion circulaire

Cette partie concerne la simulation de l'écoulement et du transport dans un domaine rectangulaire bidimensionnel, autour d'une inclusion circulaire de calcite placée au centre du domaine comme le montre la figure 3.2.

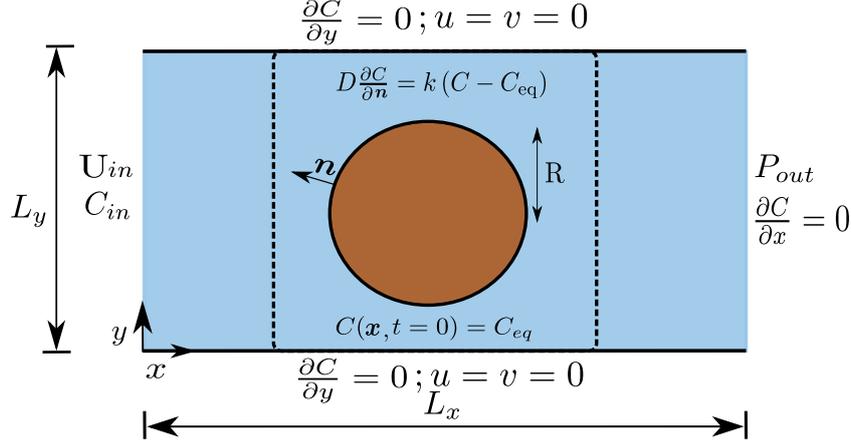


Figure 3.2 – Schématisation du milieu à inclusion circulaire avec les conditions aux limites associées

Une vitesse moyenne U_{in} est imposée à l'entrée du milieu et provoque l'écoulement du fluide de gauche à droite. La surface du grain circulaire, est le siège d'une réaction hétérogène de dissolution exprimée par l'équation chimique suivante :



Dans ce problème de référence, seul le transport de H^+ est considéré car la vitesse de dissolution dépend uniquement de la concentration $[H^+]$ [9, 181]. Les réactions homogènes dans la phase aqueuse ne sont pas considérées. Les conditions aux limites sont indiquées sur la figure 3.2 et les paramètres des simulations sont donnés dans le tableau 3.1. La taille du cercle est choisie deux fois plus grande que celle choisie par Molins et al. dans [181], de façon à ce que l'évolution du grain soit suffisamment claire, et puisse être saisie et des conclusions tirées. La porosité initiale du milieu est $\phi_{geom} = 0.748$ sur l'ensemble du domaine ce qui correspond à $\phi_{geom} = 0.497$ sur la cellule carrée.

Dans cette section, les résultats obtenus sont présentés comme suit :

1. La sensibilité des résultats à la résolution de la discrétisation spatiale et aux conditions aux limites est discutée.
2. La perméabilité et la porosité sont calculées, et une corrélation de type loi de puissance est établie.

3. Une attention particulière a été accordée à la surface spécifique.
4. Une qualification de l'évolution de la forme au cours de la dissolution est suivie.
5. La comparaison de la tortuosité en fonction de la porosité pour tous les régimes de transport est mise en avant.

Paramètres	Unité physique	Unité lb	
$L_x \times L_y$	0.001×0.0005	256×128	
R	0.0002	51.2	
ρ	1000	1	
ν	10^{-6}	1/6	
D	10^{-8}	1/600	
Δx	3.906×10^{-6}	1	
Δt	2.543×10^{-6}	1	
V_M	3.69×10^{-5}	0.369	
$C_{in} = C_{ref}$	10^4	1	
$C_{eq} = C_0$	0	0	
k	2.5×10^{-2}	1.627×10^{-2}	$Da = \frac{2R}{D} k = 1000$
	2.5×10^{-4}	1.627×10^{-4}	$Da = 10$
	2.5×10^{-5}	1.627×10^{-5}	$Da = 1$
	2.5×10^{-6}	1.627×10^{-6}	$Da = 0.1$
U_{in}	1.2×10^{-2}	7.812×10^{-3}	$Pe = \frac{U_{in} L_y}{D} = 600$
	1.2×10^{-4}	7.812×10^{-5}	$Pe = 6$
	1.2×10^{-5}	7.812×10^{-6}	$Pe = 0.6$

Table 3.1 – Paramètres utilisés dans les simulations de la dissolution d'une inclusion circulaire de porosité $\phi_{geom} = 0.497$

3.3.1 Etude de l'influence de la résolution spatiale et des conditions aux limites sur les résultats de la dissolution

Dans cette section, nous étudions d'abord l'influence de la résolution de la discrétisation spatiale sur les résultats numériques. Les résultats dépendent indubitablement de la résolution du maillage. L'utilisation d'un grand nombre de nœuds (raffinement du maillage) permet une représentation plus lisse et plus précise des processus qui se produisent près de la surface. En outre, le raffinement du maillage rapproche la valeur de la porosité numérique à celle de la porosité réelle $\phi_{geom} = 0,497$ comme le montre le tableau 3.2.

N	64	96	128	192	224
ϕ_0	0.514	0.508	0.505	0.503	0.502
$E(\%) = 100 \times \frac{(\phi_0 - \phi_{geom})}{\phi_{geom}}$	3.4	2.2	1.6	1.2	1

Table 3.2 – La différence entre la porosité réelle et la porosité calculée numériquement à l'état initial en fonction de la résolution N (nombre de segment Δx dans la direction y)

Pour explorer la sensibilité des résultats à la discrétisation spatiale N suivant y , nous suivons la variation de la porosité en fonction du temps dans la figure 3.8. En effet, le contour circulaire est construit par un contour formé de segments en forme de marche d'escalier, par conséquent la surface du cercle (donc la porosité) change selon le maillage. Nous observons que la dissolution est plus rapide lorsque la discrétisation spatiale est fine. Ceci est dû au fait que le raffinement du maillage augmente la surface réactive et accélère la dissolution.

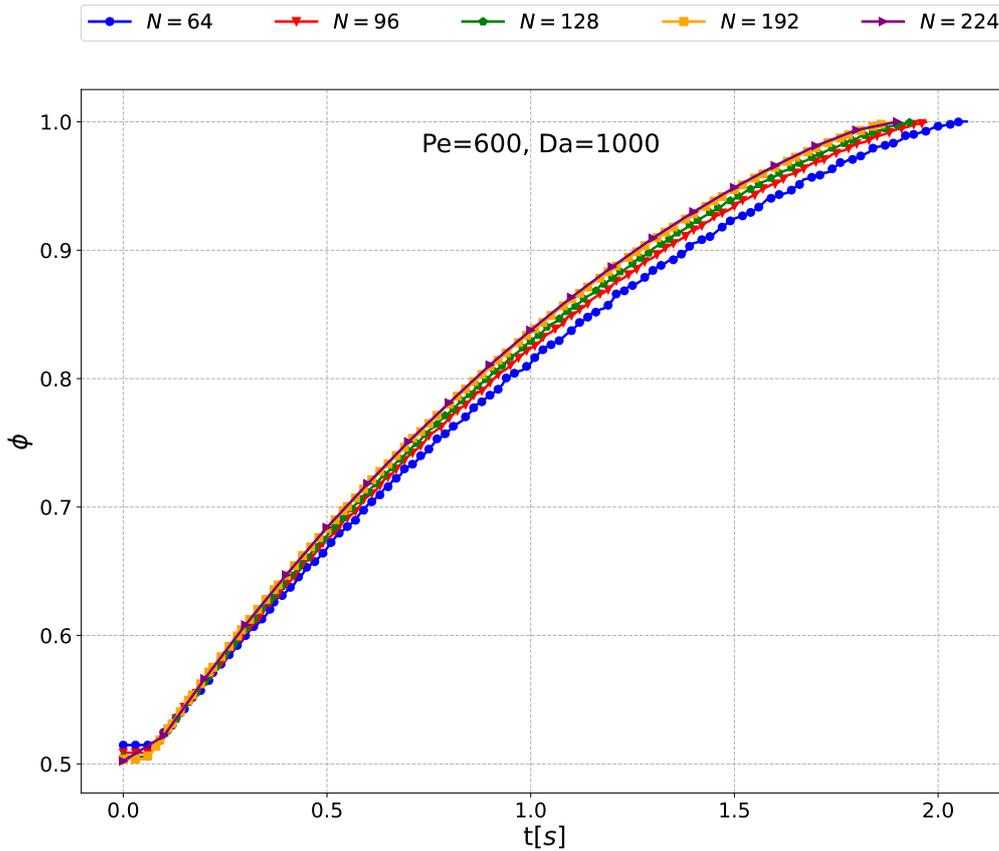


Figure 3.3 – L'évolution temporelle de la porosité résultant du test de convergence de la grille

Ensuite, nous nous intéressons aux conditions aux limites à utiliser dans les simulations. Nous étudions les changements induits par les conditions aux limites imposées aux bords du domaine

sur les résultats de la dissolution. Nous considérons dans un premier cas des conditions de flux de masse nul (BC 1) à travers les parois supérieure et inférieure du fait que le domaine est borné. Dans un second cas, nous considérons des conditions périodiques (BC 2) de sorte que le milieu peut être considéré comme étendu à l'infini dans la direction y . Ceci nous permettra dans la suite de faire l'extension en milieu poreux dont la microstructure est constituée par la répétition périodique d'une cellule élémentaire composée d'une inclusion circulaire. L'effet des conditions aux limites est mis en évidence par l'étude de la variation de la porosité et la perméabilité du milieu.

La figure 3.4 montre que le type de conditions aux limites imposées aux parois supérieure et inférieure du domaine affecte le temps de dissolution. En termes simples, cela peut être expliqué par le comportement de la vitesse dans le milieu. Imposer une vitesse nulle sur les parois, comme illustré sur la figure 3.5a signifie que l'écoulement du fluide est limité entre deux plans. Ainsi, plus la vitesse est élevée autour du grain, plus la concentration diminue et la dissolution devient rapide. Cependant, cet effet n'est pas observé sur la figure 3.5b où le domaine est ouvert et la vitesse autour du grain reste moins importante. Il est important de noter que initialement (au régime stationnaire du fluide) la perméabilité du cas BC 1 est inférieure à celle du cas BC 2, à cause des parois solides inférieure et supérieure.

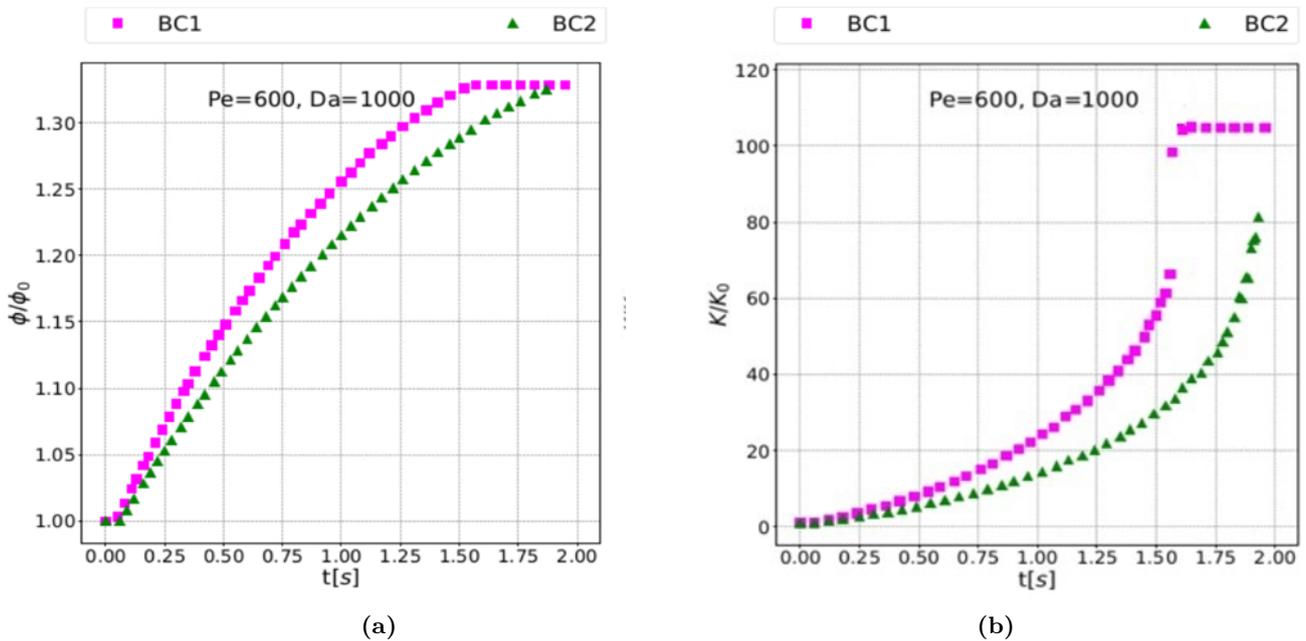


Figure 3.4 – Influence des conditions aux limites sur les bords inférieur et supérieur sur la variation en temps de la porosité et la perméabilité

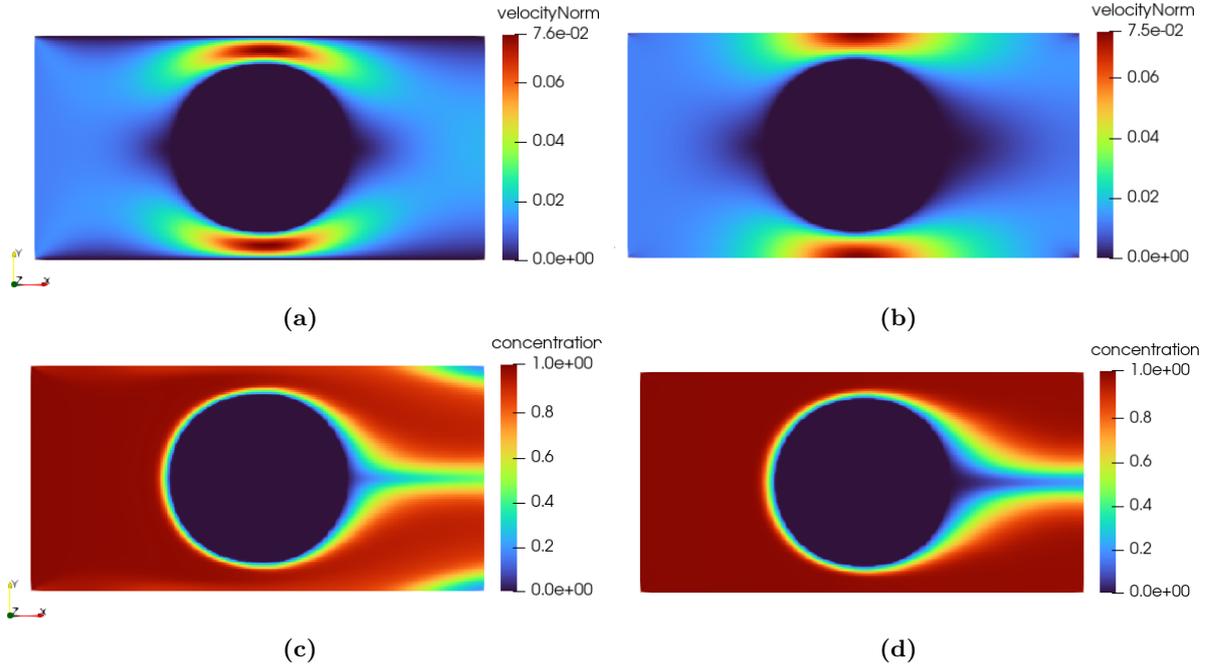


Figure 3.5 – Distributions du champ de vitesse et de concentration dans le domaine d'inclusion circulaire à l'état stationnaire pour un $Pe=600$. Dans les figures 3.5a et 3.5c, le domaine est délimité par des parois solides en haut et en bas sur lesquelles la vitesse est nulle. Dans les figures 3.5b et 3.5d, le domaine est considéré comme étant ouvert avec des conditions périodiques dans la direction y

Bien que la dissolution soit ralentie si le domaine est ouvert (c'est-à-dire conditions périodiques) et que le milieu soit donc moins perméable, le type de conditions aux limites ne modifie pas la variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée. Ceci est illustré dans la figure 3.6.

Pour aborder l'objectif de cette section, nous choisissons dans ce qui suit, la cellule carrée sélectionnée de la figure 3.2 avec la condition périodique (BC 2) pour étudier l'influence de la dissolution sur la morphologie du milieu et ce qui en découle comme relation entre les propriétés qui le caractérisent. D'une part, la forme carrée de la cellule garantit que le chemin initialement parcouru dans les directions x et y est le même, et d'autre part, la périodicité permet d'étendre la cellule par répétitions pour en faire un milieu poreux du fait que les bords supérieur et inférieur sont libres et peuvent se connecter.

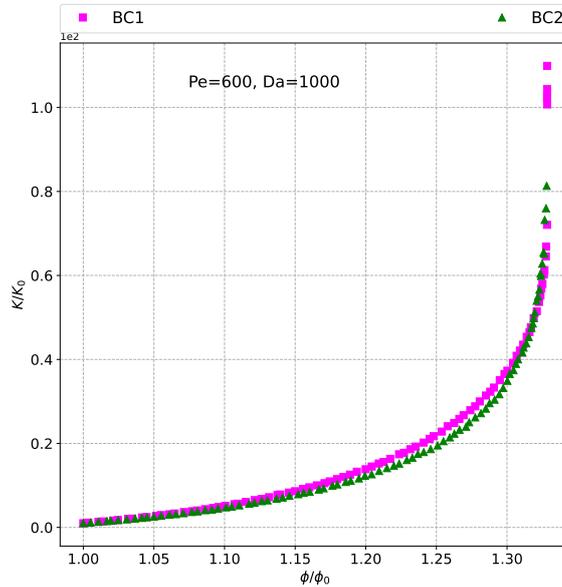


Figure 3.6 – Influence des conditions aux limites aux bords supérieur et inférieur du milieu simulé sur la variation de sa perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée

3.3.2 Etude de l'influence du régime du transport sur la relation perméabilité – porosité.

Dans cette section nous nous intéressons à l'influence de la vitesse de fluide U_{in} et celle de la réaction chimique k sur l'évolution de la forme du grain. Les variations de ces paramètres sont prises en compte dans les nombres de Péclet Pe et de Damköhler Da selon le tableau 3.1. En réponse à la réaction de dissolution la taille du grain diminue avec le temps. La figure 3.7 montre la perméabilité et la porosité qui augmentent pendant la dissolution du milieu. Globalement, les tendances observées dans les graphiques sont approximativement similaires, sauf pour les combinaisons de Pe faible et de Da élevé.

Pour les faibles Da (symboles de couleurs bleue et orange), les tendances de la perméabilité en fonction de la porosité apparaissent similaires quel que soit la valeur de nombre de Péclet. Elles sont également en bon concordance avec la courbe perméabilité-porosité d'un changement de taille uniforme que nous obtenons en diminuant manuellement le rayon du grain de 2×10^{-5} à chaque fois. La relation perméabilité-porosité suit une loi de puissance dont l'équation est présentée sur la figure 3.7. Le bon accord entre les courbes de dissolution uniforme et les autres régimes de transport nous permet de prédire que certains cas conservent la forme presque circulaire pendant la dissolution. De plus, leur modélisation par une simple réduction de rayon n'est pas aberrante.

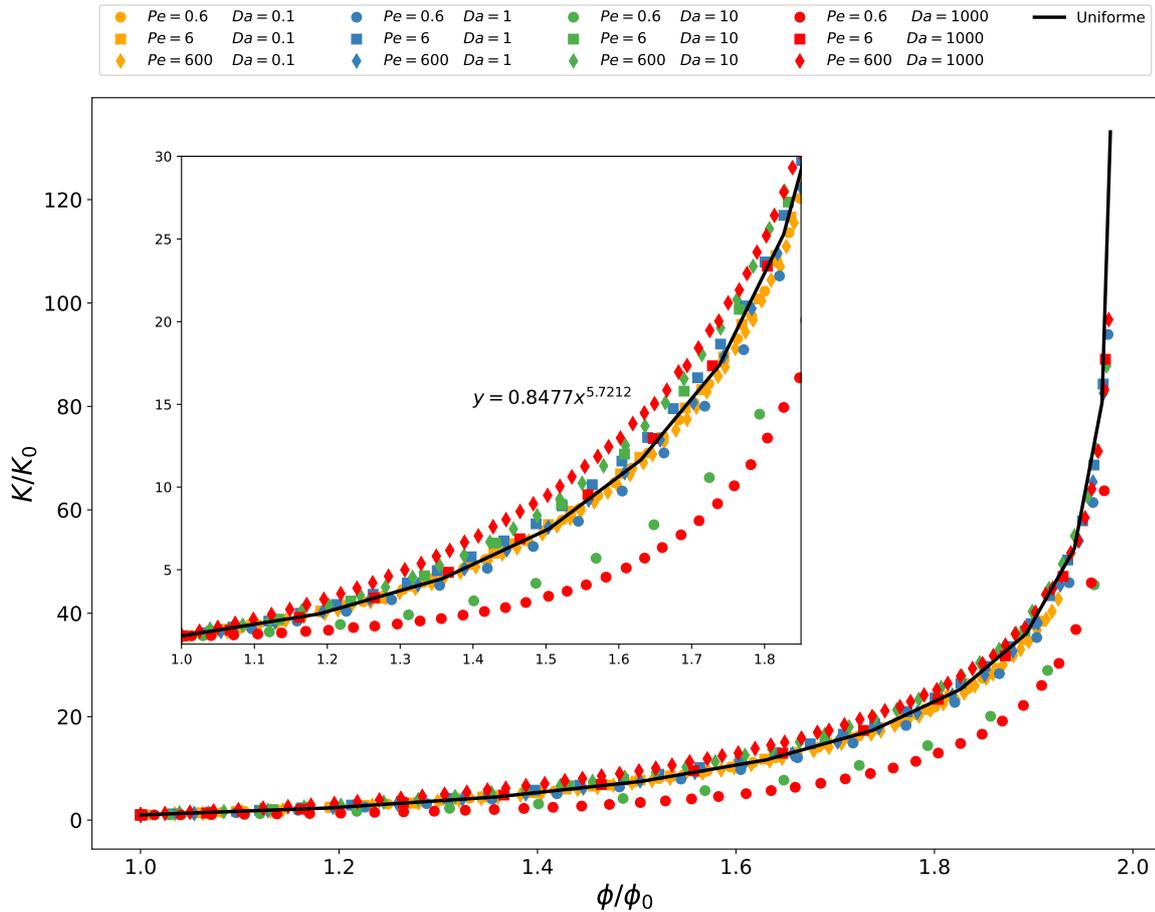


Figure 3.7 – Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée pour différentes valeurs de Pe et Da

Pour les grands Da (symboles en couleur rouge), lorsque Pe augmente, la perméabilité montre une augmentation qui dépend de Pe pour une porosité fixe. Tant que Pe est faible, la porosité augmente beaucoup plus vite que la perméabilité, ce qui entraîne une augmentation du volume de fluide sans pour autant favoriser le passage du fluide dans le milieu. En effet, la hauteur du grain varie de manière négligeable par rapport à sa largeur ce qui explique sa résistance au passage du fluide. Cette observation reste vraie même pour $Da = 10$. En revanche, si Pe et Da sont tous les deux élevés, le transport est dominé par l'advection et la réaction. La vitesse dans la zone limitée par le grain et les bords supérieur et inférieur du canal devient la plus élevée par rapport aux autres cas. Dans ces zones, la concentration est différente à celle de l'équilibre chimique par advection. De plus, l'effet de la réaction est important ce qui favorise une dissolution du grain plus importante dans la direction y que celle selon x . Cela rend le milieu plus perméable dans la direction x , qui est la direction de l'écoulement.

Intéressons nous maintenant aux cas où Pe est constant (les courbes de mêmes symboles de la figure 3.7). Nous remarquons pour $Pe = 0.6$, que la perméabilité diminue lorsque Da augmente. En effet, l'influence de l'advection est faible par rapport à la diffusion. Pour de faibles Da le changement de géométrie du grain est uniforme. Lorsque Da augmente l'effet de la réaction devient important devant celui de la diffusion. Un front de dissolution apparaît et la forme géométrique n'est plus circulaire. Nous remarquons également que la perméabilité augmente avec Da pour $Pe = 600$ contrairement au cas de $Pe = 0.6$. Lorsque Da est faible les courbes sont proches à la courbe uniforme synonyme d'une forme proche circulaire. Cela dû aux effets de faible réaction et de diffusion par rapport à l'advection. Ce constat change lorsque Da augmente et le milieu devient relativement perméable par rapport aux autres cas. La forme géométrique de l'inclusion, n'est plus circulaire puisqu'elle tend à ressembler à une ellipse dont le grand axe est dans le sens de l'écoulement, ce qui facilite le passage du fluide.

Il serait intéressant de compléter ces explications apportées sur les courbes de la figure 3.7, par une étude qualitative de l'évolution de la forme des grains résultant de la dissolution.

3.3.3 Evolution de la morphologie au cours de la dissolution

Dans le but d'apporter un éclairage sur les interprétations dans la section précédente et comprendre l'effet des régimes de transport sur l'évolution de la géométrie, nous nous intéressons à la forme géométrique de l'inclusion. Son évolution est illustrée sur la figure 3.3 en fonction de Pe et Da pour différentes valeurs de porosité normalisée.

Dans cette figure, ϕ_0 est la porosité initiale correspondante au volume initial de la phase solide. Comme nous l'avons déjà constaté précédemment, la forme géométrique du grain est dépendante du régime de transport réactif caractérisé par les nombres de Péclet et de Damköhler. L'évolution de la forme géométrique est la conséquence des champs de vitesse et de concentration ainsi que le taux de réaction à l'interface. Nous remarquons des différences importantes sur la forme de l'inclusion pour des Da importants par rapport aux autres cas. Lorsque Da est faible la forme géométrique est plus ou moins uniforme.

Intéressons nous maintenant aux formes de l'interface du grain obtenues pour $Da = 1000$. Pour un Pe faible, l'effet de la diffusion est dominant, la réaction de dissolution dépend en effet de la distribution de la concentration qui est sous forme d'isolignes verticales. Cela explique le front de dissolution visible pour les différentes valeurs de la porosité normalisée. A contrario, pour un Pe élevé, le transport rapide de la concentration dissout principalement les bords supérieur et inférieur du grain d'où la forme allongée et aplatie du grain au cours du temps dans la direction de l'écoulement.

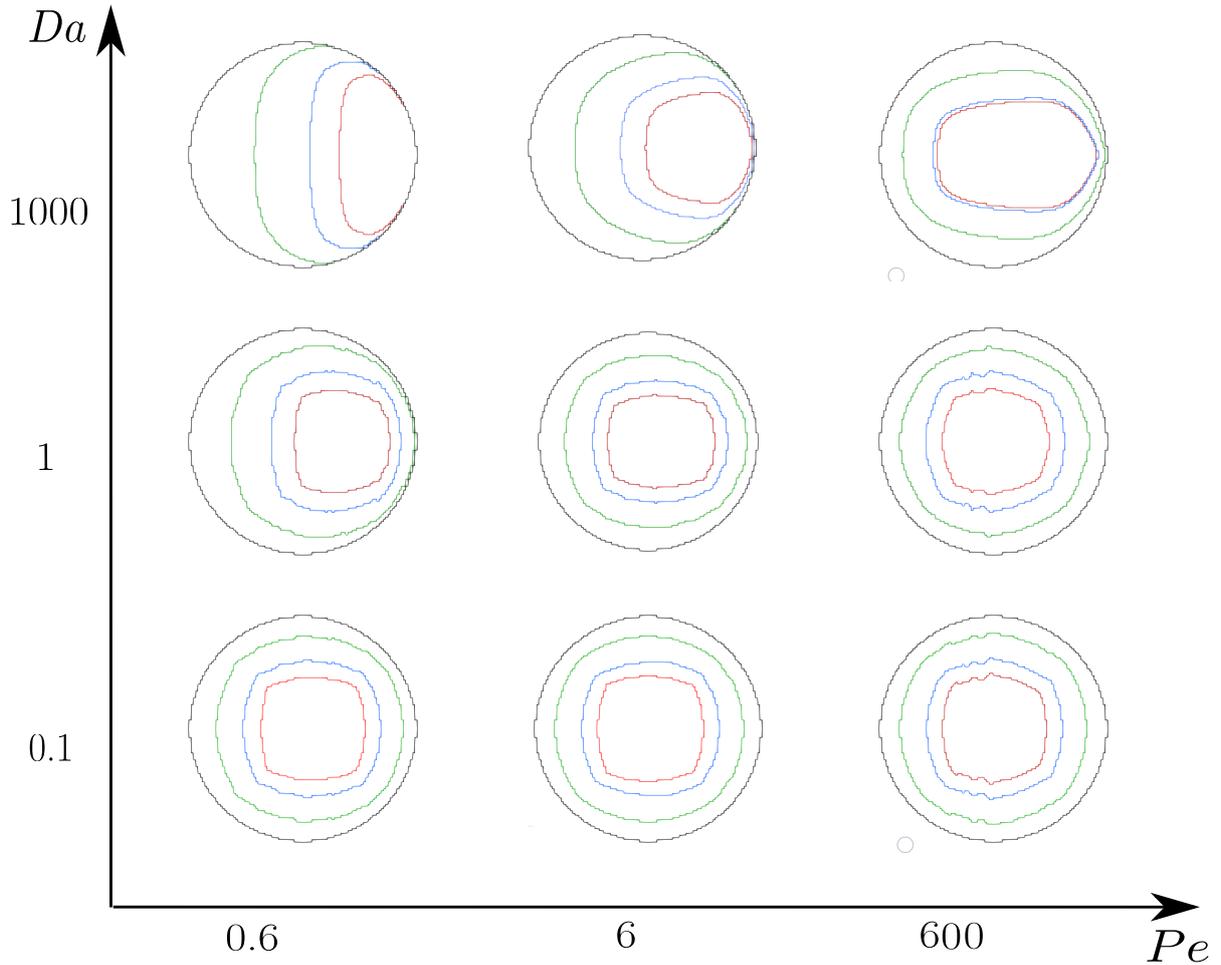


Figure 3.8 – Evolution de la morphologie de l'inclusion au cours de la dissolution pour différentes valeurs de Péclet et de Damköhler. Les porosités normalisées sont $\frac{\phi}{\phi_0} = 1$ (noir), $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.3$ (vert), $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.6$ (bleu) et $\frac{\phi}{\phi_0} = 1.75$ (rouge)

A l'inverse, si les réactions sont lentes ($Da = 0.1$ et $Da = 1$), la dissolution devient plus uniforme à la surface du disque. Dans ce cas, l'effet de la réaction est faible par rapport aux effets de la diffusion ou de l'advection. Cela induit une répartition plus ou moins uniforme de la concentration autour du grain, par conséquent une forme géométrique quasi-circulaire.

Le suivi de l'évolution de la forme des grains facilite la compréhension de ce qui est observé sur la relation perméabilité-porosité dans la figure 3.7 mais ne permet pas de la quantifier. Il est connu que la perméabilité est sensible à la surface spécifique où sont imposées des conditions de vitesse nulle qui résiste à l'écoulement. Dans cette étude, la surface est simplement le périmètre de l'inclusion par unité de profondeur. Les variations de la surface normalisée à la surface initiale sont tracées dans la figure 3.9a pour différents régimes de transport. La variation de la surface de l'inclusion en fonction de la porosité normalisées est essentiellement similaire

pour tous les cas simulés, même si le volume solide n'occupe pas la même forme. Pourtant l'évolution temporelle du volume du solide dans la figure 3.9b montre une grande dépendance vis-à-vis des régimes de transport et de dissolution.

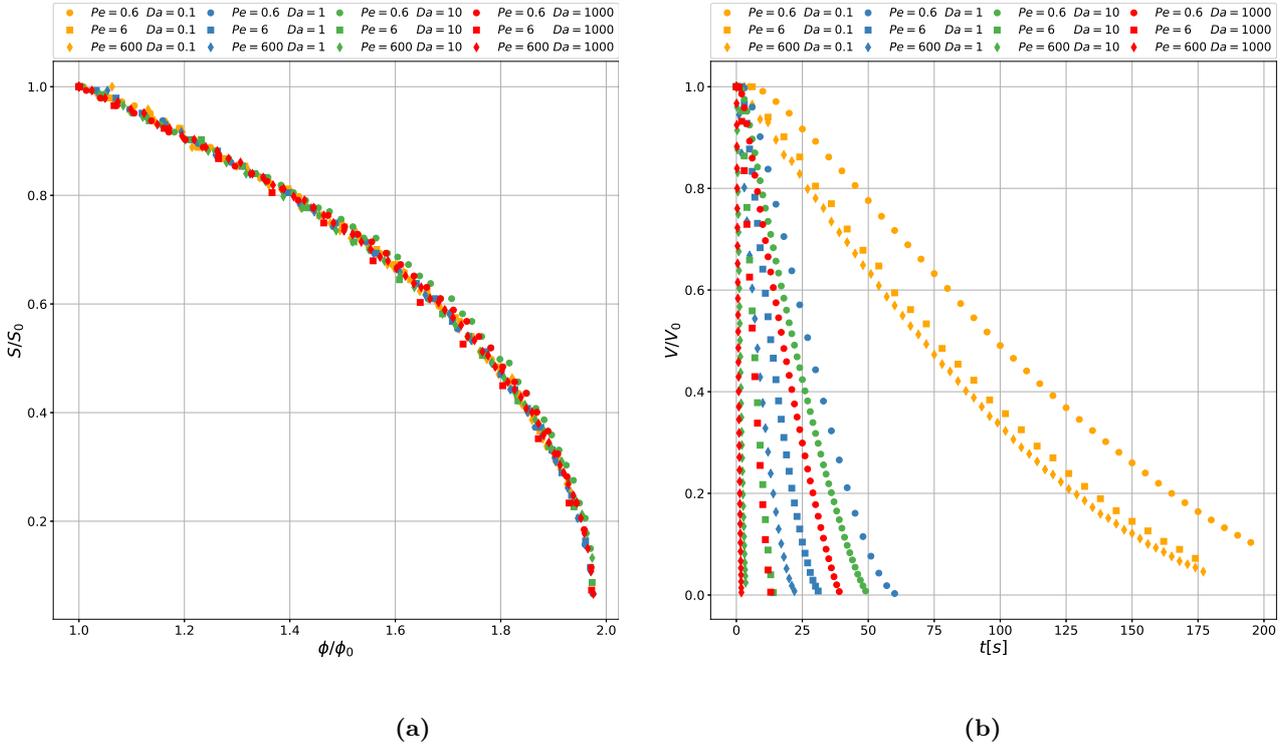


Figure 3.9 – Suivi de l'évolution de la surface normalisée figure 3.9a et du volume du solide figure 3.9b pour différents régime de dissolution de l'inclusion circulaire.

Sur la base des résultats obtenus, il est possible par les relations perméabilité-porosité de distinguer le milieu le plus perméable selon les différents régimes de transport réactif et ainsi d'évaluer quantitativement les milieux vis à vis du transport réactif. Cependant, les paramètres combinés comme la perméabilité, la surface spécifique et la porosité dans cette étude, ne permet pas de quantifier finement la distribution locale des phases dissoutes. En effet, les surfaces spécifiques associées au volume du solide existant dans le milieu sont très proches quel que soit le changement de forme du grain lors de la dissolution.

Pour évaluer quantitativement l'anisotropie observée sur les grains à l'échelle du pore, un autre paramètre telle que la tortuosité devrait nous renseigner sur la forme de l'inclusion et surtout sur sa résistance au transport. La tortuosité constitue une bonne mesure de quantification de l'évolution de la microstructure par dissolution [177]. Nous sommes particulièrement intéressés par la tortuosité déterminée à partir du coefficient de diffusion effectif de la cellule contenant l'inclusion. Notons que le couplage entre le transport et l'écoulement est faible. Ainsi,

le changement de vitesse est une conséquence du changement de morphologie. Nous choisissons donc de suivre la tortuosité de diffusion qui dépend directement de la morphologie plutôt que la tortuosité hydraulique qui dépend en plus de la vitesse.

3.3.4 Etude de l'influence du régime du transport sur la relation tortuosité – porosité.

Pour calculer la tortuosité de diffusion telle que définie dans l'équation (3.5), nous devons déterminer D^{eff} comme dans la relation (3.6). Nous suivrons pour cela une méthodologie qui consiste à résoudre une équation de diffusion jusqu'à stationnarité.

Si nous considérons la diffusion moléculaire classique de la concentration $c(x, y)$:

$$\frac{\partial q}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (-D \vec{\nabla} q) = 0 \quad , \quad q_{\text{in}} = 1 \text{ et } q_{\text{out}} = 0 \quad (3.8)$$

où $q(x, y)$ est la concentration d'un traceur inerte de coefficient de diffusion D isotrope. A l'état stationnaire, le flux $\mathbf{j} = -D \vec{\nabla} q$ est constant.

$$\begin{bmatrix} j_x \\ j_y \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} D & 0 \\ 0 & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \frac{\partial q}{\partial x} \\ \frac{\partial q}{\partial y} \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} D \frac{\partial q}{\partial x} \\ D \frac{\partial q}{\partial y} \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

Réduisons la dimension du problème en éliminant l'effet de la direction y et en considérant la concentration moyenne Q tel que :

$$Q = \frac{1}{L_y} \int_0^{L_y} q(x, y) dy = Q(x) \quad (3.10)$$

La nouvelle équation à résoudre dans la direction x devient :

$$\frac{d}{dx} \underbrace{\left(-D_x^{\text{eff}} \frac{dQ}{dx} \right)}_{J_x} = 0 \quad \text{avec} \quad Q_{\text{in}} = q_{\text{in}} \text{ et } Q_{\text{out}} = q_{\text{out}} \quad (3.11)$$

Nous calculons J_x numériquement, nous déterminons D_x^{eff} par l'équation (3.6). La même méthode est suivie pour calculer la tortuosité dans la direction y avec :

$$T_{yy} = \frac{\phi D}{D_y^{\text{eff}}} \quad (3.12)$$

en considérant cette fois le bord inférieur et le bord supérieur comme l'entrée et la sortie du domaine respectivement.

En résumé, le calcul de la tortuosité dans les directions x et y de la cellule carré avec inclusion circulaire, se fait en résolvant en supplément deux équations de diffusion par la LBM.

Les figures 3.10 et 3.11 représentent la variation des composantes diagonales du tenseur de tortuosité T_{xx} et T_{yy} en fonction de la porosité normalisée pour différentes valeurs de Pe et pour $Da = 0.1$ et $Da = 1000$ respectivement. Les courbes de couleur noire dans les graphiques 3.10a et 3.10b correspondent au cas d'un changement de géométrie par diminution progressive du rayon du grain circulaire.

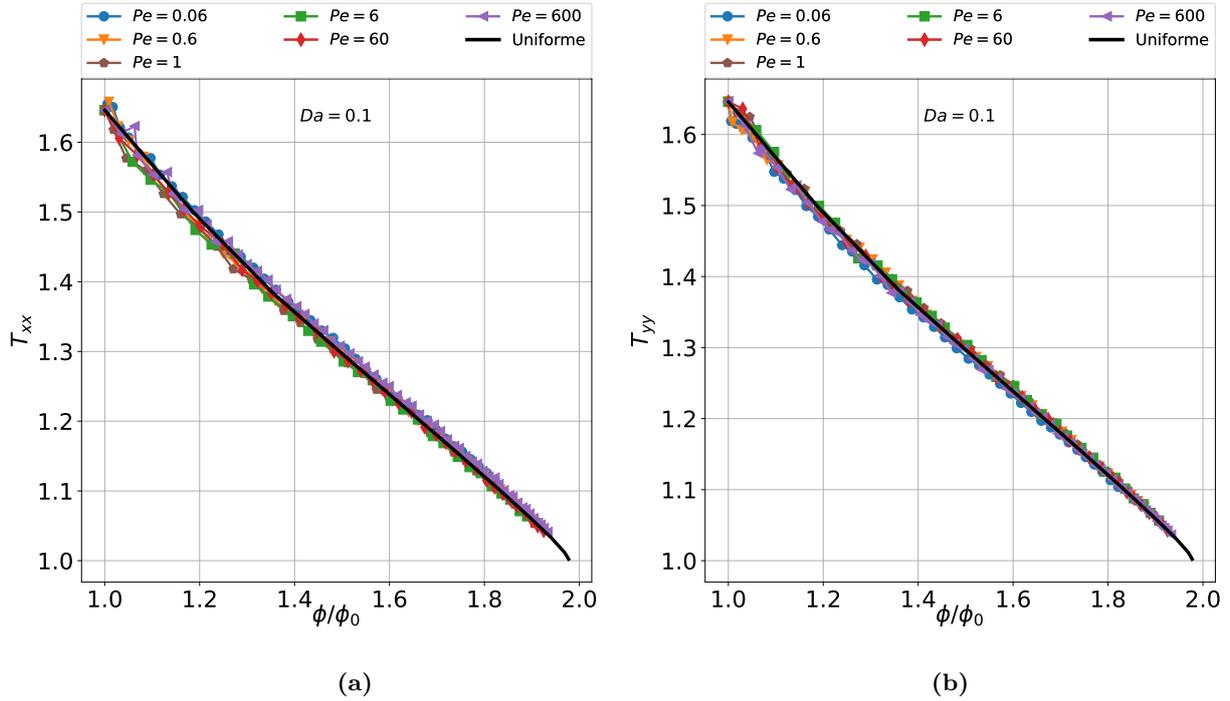


Figure 3.10 – Les tortuosités dans les directions x dans la figure 3.10a et y dans la figure 3.10b en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction lente ($Da = 0.1$)

Les graphiques 3.10 montrent que les tortuosités T_{xx} et T_{yy} dans les directions x et y sont inversement proportionnelles à la porosité. Elles diminuent de façon similaire à partir d'une valeur maximale, qui est la même dans les deux directions puisque le milieu est initialement symétrique, jusqu'à une valeur minimale.

$$\lim_{\phi \rightarrow \phi_{\max}} T = 1 \quad \text{tel que} \quad \phi_{\max} = 1 \quad (3.13)$$

La tortuosité en absence de solide (dissolution totale) tend vers 1, car le chemin parcouru est égal à la longueur de la cellule.

Nous constatons que pour les réactions lentes, l'évolution des tortuosités T_{xx} et T_{yy} est très proche de la courbe de la tortuosité uniforme (courbe noire) quel que soit le régime de transport dominant qu'il s'agisse de diffusion ou d'advection. En effet, lorsque la réaction est lente (faibles valeurs de Da) la forme circulaire de l'inclusion est conservée (diminution de rayon). Le calcul de la tortuosité dans ce cas confirme d'une manière quantifiée l'isotropie de la cellule. Pour une réaction lente, il est possible de modéliser la dissolution à l'échelle macroscopique par des modèles de réduction de porosité uniforme.

Dans le cas d'une réaction rapide, les composantes diagonales du tenseur de tortuosité sont fortement affectées par le régime de transport comme le montre la figure 3.11. Nous remarquons pour certaines valeurs de Pe , que les tortuosités T_{xx} et T_{yy} s'écartent de la solution uniforme correspondant à une forme circulaire. En effet, pour une porosité constante T_{xx} et T_{yy} sont des fonctions décroissante et croissante de Pe respectivement (voir figures 3.11a et 3.11b).

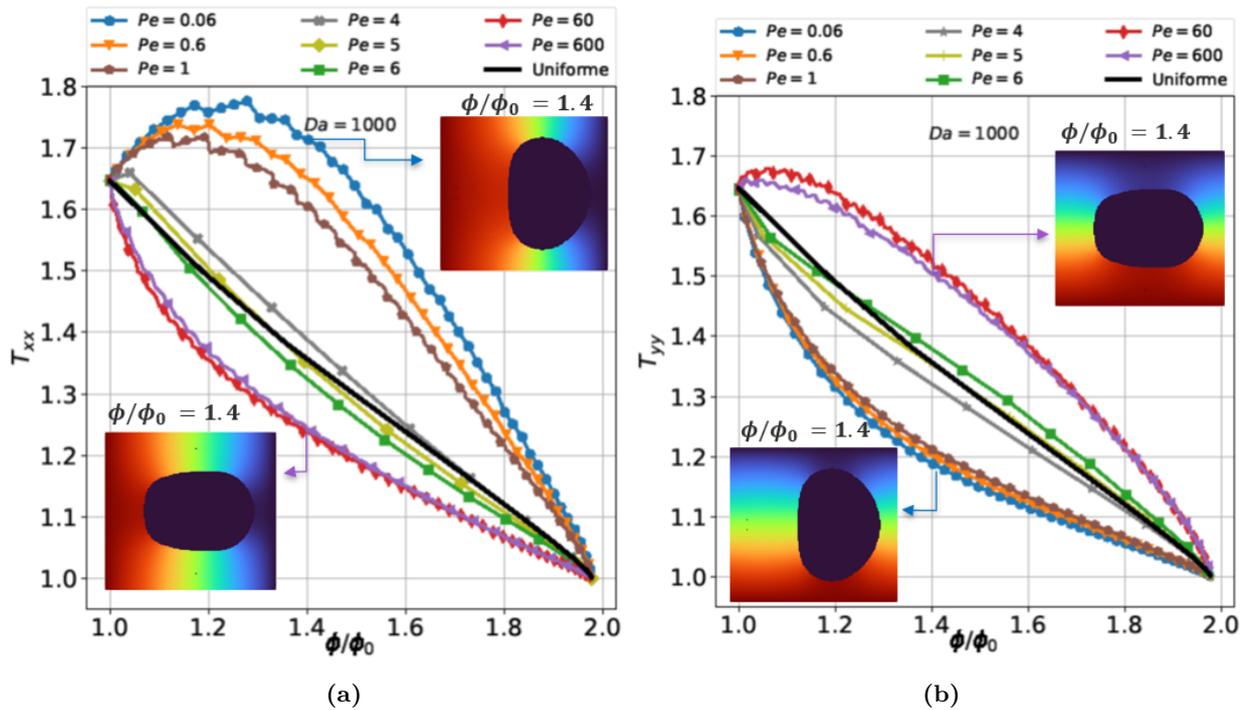


Figure 3.11 – Relation entre les tortuosités dans les directions x dans la figure 3.11a et y dans la figure 3.11b en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction rapide. Les distributions du scalaire de la tortuosité pour les cas extrêmes sont également présentées

Nous remarquons aussi pour le cas d'une réaction rapide et une faible advection $Pe < 1$ que la tortuosité T_{xx} augmente et ensuite diminue en fonction de la porosité. Ceci est dû à la forme

aplatie du grain dans la direction y , ce qui représente plus de chemin à parcourir de la gauche vers la droite de la cellule carrée. Puisque la dissolution est frontale, la modification de la géométrie se fait surtout dans la direction x ce qui augmente la tortuosité. Cela reste valable si la hauteur de la surface du grain projetée sur l'axe des y est égale au diamètre initial du grain dans le cas échéant la tortuosité T_{xx} diminue. Le même effet est observé pour la tortuosité T_{yy} mais pour des Pe importants. Dans ce cas l'inclusion est aplatie dans la direction x , ce qui a pour effet d'augmenter la valeur de T_{yy} .

La tortuosité est un paramètre pertinent pour quantifier l'influence de la dissolution sur la forme des grains. La déformation par réaction chimique du grain est reflétée par l'anisotropie du tenseur de la tortuosité (c'est-à-dire $T_{xx} \neq T_{yy}$) qui exprime la résistance du milieu dans certaines directions plus que d'autres. En examinant l'évolution du rapport T_{xx}/T_{yy} dans les graphiques 3.12 nous voyons que pour une dissolution lente le changement de géométrie du l'inclusion circulaire dans les directions x et y sont analogues et le rapport évolue autour de 1 (figure 3.12a). Cependant, ce n'est pas le cas pour les réactions rapides où le rapport T_{xx}/T_{yy} varie et indique une anisotropie sur la forme du grain. Le rapport est inférieur à 1 pour un Pe élevé, ce qui implique que la trajectoire moyenne dans la direction x est plus petite que celle dans la direction y . Le grain est donc plus allongé selon x . De même pour un Pe faible où le rapport supérieur à 1 signifie que le milieu est plus résistant dans le sens de l'écoulement. Le grain diminue donc en largeur plus qu'en hauteur ce qui rend la forme allongée suivant y .

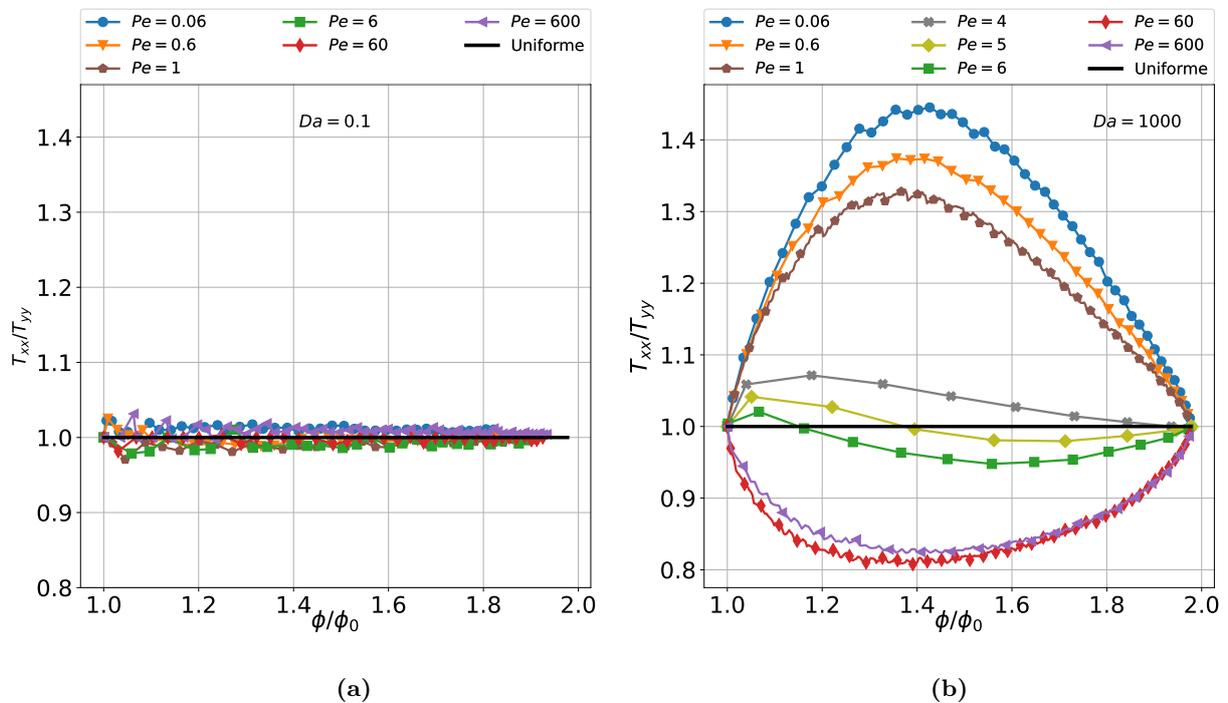


Figure 3.12 – Rapport des composantes diagonales de la tortuosité T_{xx} et T_{yy} en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction rapide 3.12b et lente 3.12a

3.4 Dissolution d'un milieu poreux périodique

Nous nous intéressons dans cette section à la dissolution de plusieurs grains circulaires. Considérons maintenant un modèle représentatif simplifié d'un milieu poreux dont la microstructure consiste en une répétition séquentielle de plusieurs cellules élémentaires contenant chacune une inclusion circulaire. Le milieu modélisé est composé de 6 grains centrés dans des cellules carrées avec un décalage d'une cellule vide pour l'entrée et une pour la sortie comme l'illustre la figure 3.13. Le domaine d'étude est maillé selon une grille rectangulaire 512×64 . Une vitesse constante U_{in} est imposée à $x = 0$, une pression P_{out} est fixée en sortie $x = L_x$ et des conditions périodiques sur la vitesse sont appliquées sur les bords supérieur et inférieur. Les conditions aux limites sur la partie transport réactif sont les mêmes que celles imposées dans le cas d'une seule cellule élémentaire. La concentration C_{in} est imposée à $x = 0$ et un flux de diffusion nul est fixé à $x = L_x$. Comme pour la vitesse, des conditions périodiques sont appliquées à la concentration pour $y = 0$ et $y = L_y$. Les grains solides ont des frontières réactives qui évoluent en fonction de la concentration dans le milieu. Les paramètres utilisés dans cette partie sont résumés dans le tableau 3.3.

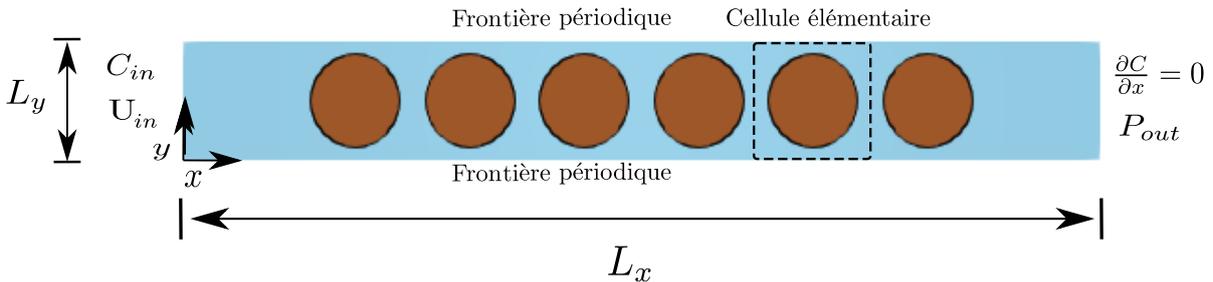


Figure 3.13 – Modèle idéalisé utilisé pour la simulation du milieu poreux à l'échelle du pore. Il est constitué d'une succession d'inclusions circulaires dans des cellules élémentaires

Bien que le milieu simulé soit une représentation très simplifiée d'un milieu poreux, il possède un intérêt particulier qui consiste à mettre en avant l'influence de la présence de plusieurs grains sur la dissolution. De plus, l'alignement des inclusions permet de suivre l'évolution de leurs formes au cours du temps et de voir l'influence des uns sur les autres. Cette structure du milieu est souvent utilisée dans les études d'homogénéisation pour valider les processus de mise à l'échelle en les comparant aux résultats moyens de la simulation numérique à l'échelle de pores [9, 182].

Paramètres	Unité SI	Unité lb	
$L_x \times L_y$	0.004×0.0005	512×64	
R	0.0002	25.6	
ρ	1000	1	
ν	10^{-6}	1/6	
D	10^{-8}	1/600	
Δx	7.812×10^{-6}	1	
Δt	1.017×10^{-5}	1	
V_M	3.69×10^{-5}	0.369	
$C_{in} = C_{ref}$	10^4	1	
$C_{eq} = C_0$	0	0	
k	2.5×10^{-2}	3.25×10^{-2}	$Da = \frac{k 2R}{D} = 1000$
	2.5×10^{-4}	3.25×10^{-4}	$Da = 10$
	2.5×10^{-5}	3.25×10^{-5}	$Da = 1$
	2.5×10^{-6}	3.25×10^{-6}	$Da = 0.1$
U_{in}	1.2×10^{-2}	1.56×10^{-2}	$Pe = \frac{U_{in} L_y}{D} = 600$
	1.2×10^{-4}	1.56×10^{-4}	$Pe = 6$
	1.2×10^{-5}	1.56×10^{-5}	$Pe = 0.6$

Table 3.3 – Paramètres utilisés dans les simulations de la dissolution d’une suite périodique de grain circulaire

Avec cette géométrie, nous étudions d’abord le comportement global du milieu soumis à la dissolution puis nous suivons le comportement de chaque cellule séparément pour mettre en avant la part de chaque cellule dans l’évolution globale du milieu poreux. En effet, cela permettrait de mettre en évidence les cas où le comportement collectif est reproductible par le comportement d’une seule cellule. En d’autres termes, nous cherchons à savoir si la dissolution du milieu poreux peut être toujours considérée comme une simple généralisation de la dissolution de cellules répétée plusieurs fois.

Comme dans les cas précédents, pour étudier l’influence du transport réactif sur l’évolution du milieu poreux, nous présentons les résultats des simulations en fonction de Pe et Da . Les résultats englobent divers aspects quantitatifs telles que les relations normalisées de perméabilité-porosité, surface spécifique-porosité et tortuosité-porosité. L’évolution de la microstructure pendant la dissolution est analysée et mise en relation avec les tendances tracées.

3.4.1 Etude de l'influence du régime du transport sur la relation perméabilité – porosité

Les courbes de perméabilité-porosité normalisées pour l'ensemble du milieu poreux sont présentées sur la figure 3.14. La limite inférieure du graphique correspond à la plus faible valeur de Pe et à la valeur la plus élevée de Da . La limite supérieure est la courbe pour Pe et Da les plus élevés. Pour une porosité constante, la perméabilité normalisée est une fonction décroissante de Da pour des Pe faibles et croissante pour des Pe élevés.

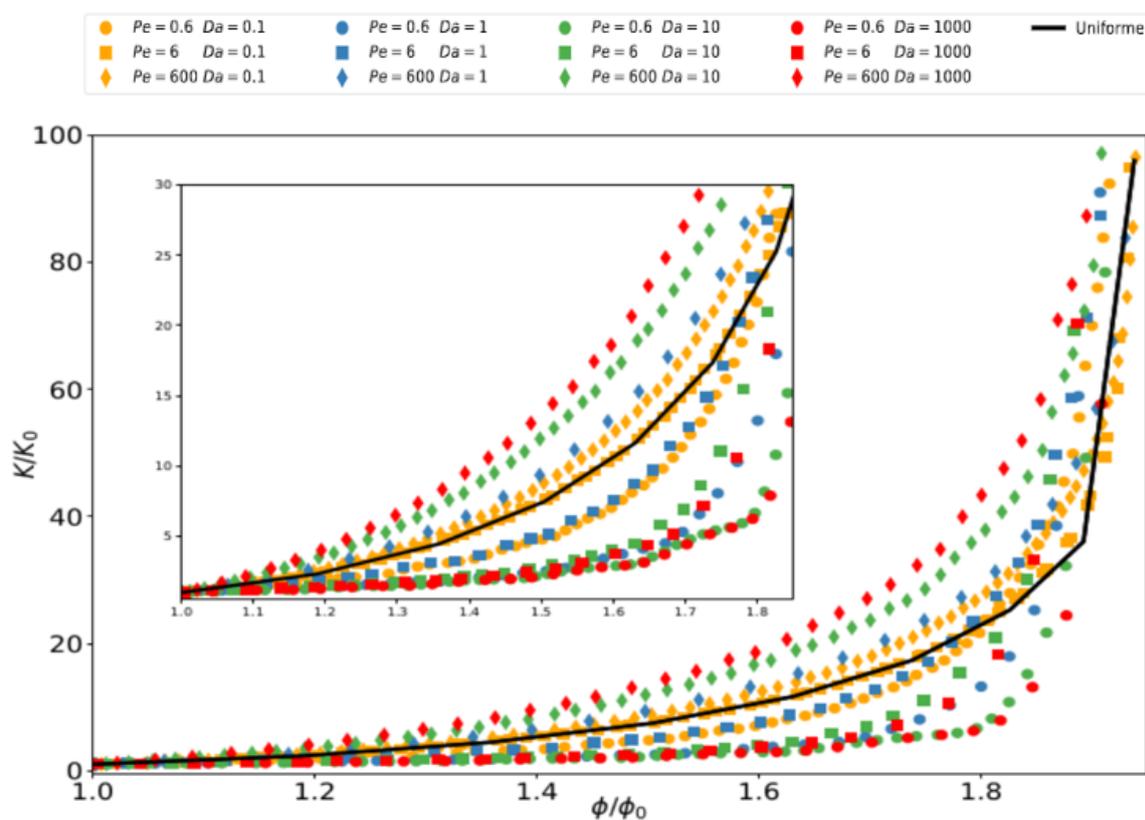


Figure 3.14 – Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée du milieu poreux pour différentes combinaisons de Pe et Da

Le milieu est alors plus perméable dans deux situations : quand la réaction est rapide dans un régime où l'advection est prédominante ou quand la réaction est lente dans un régime où la diffusion est prédominante. En effet, pour Pe faible, la porosité augmente plus fortement que la perméabilité, comme le suggère la pente des courbes marquées par des symboles ronds dans la figure 3.14. Ceci est dû à l'augmentation du volume de fluide dans le milieu sans ouvrir la voie au passage du fluide dans le sens de l'écoulement. Les évolutions globales montrent les mêmes tendances dans le cas d'une ou plusieurs inclusions. Mais les courbes sont plus écartées dans la

figure 3.14 de cette étude que dans le cas d'une seule inclusion.

Pour appuyer notre interprétation, nous mettons en évidence dans la section ci-dessous les variations de champs de concentration et de vitesse produites dans le milieu lors de la dissolution.

3.4.2 Evolution de la morphologie au cours de la dissolution

Intéressons nous dans cette partie à l'évolution des champs de concentration et de vitesse dans le milieu poreux. Les simulations présentées dans cette section associent deux valeurs du nombre de Péclet ($Pe = 0.6$ et $Pe = 600$) à deux valeurs du nombre de Damköhler ($Da = 0.1$ et $Da = 1000$). Les figures 3.15a et 3.15b présentent le champs de concentration de $Pe = 600$ avec $Da = 0.1$ et $Da = 1000$ respectivement. Pour le Da faible, le fluide est complètement saturé par la concentration, et tous les grains solides sont entourés de la même quantité de réactif qui est consommé de manière uniforme à la surface du solide. Ainsi, tout au long du processus de dissolution, les grains solides conservent une forme quasi-circulaire.

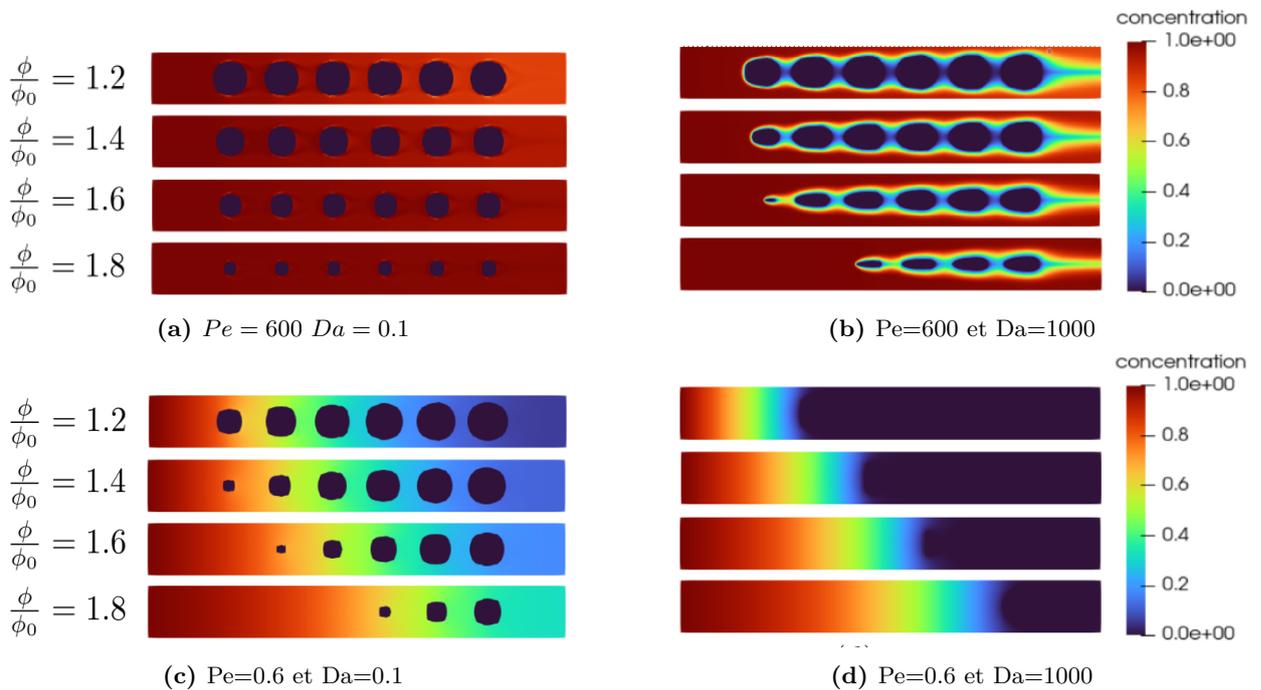


Figure 3.15 – Illustration du champ de concentration normalisé C/C_{ref} milieu poreux pour différentes valeurs de Pe et de Da

Pour $Da = 1000$, les inclusions solides s'écartent de la forme circulaire pendant la dissolution,

et nous observons, sur la figure 3.15b, une forme plus allongée dans la direction de l'écoulement. Cette asymétrie de la forme solide est la même que celle observée pour le cas d'une inclusion dans la figure 3.8 de la section 3.3. Elle résulte de la distribution non-uniforme de la concentration à l'interface due aux conditions d'écoulement. En effet, la figure 3.16b montre que l'écoulement ralentit entre les grains jusqu'à une vitesse nulle d'où les faibles valeurs de la concentration dans ces zones. C'est la vitesse élevée qui a pu être relevée sur les faces latérales, qui leur permettent de devenir les principaux sites de la réaction rapide. Et comme le côté droit du minéral solide est moins exposé à la concentration du réactif que le côté gauche qui lui fait face, cela allonge la forme de la réaction.

Dans le cas d'un faible Pe , le transport est dominé par la diffusion dans le milieu. Lorsque Da est faible, la figure 3.15c montre une dissolution sous forme de front étalé sur plusieurs grains (exemple $\phi/\phi_0 = 1.2$ les quatre premières inclusions). La forme géométrique des grains reste circulaire. Cependant, lorsque Da est élevé, l'effet de la réaction est plus important par rapport à celui de la diffusion. La concentration varie entre l'entrée ($x = 0$) et le début du front de dissolution.

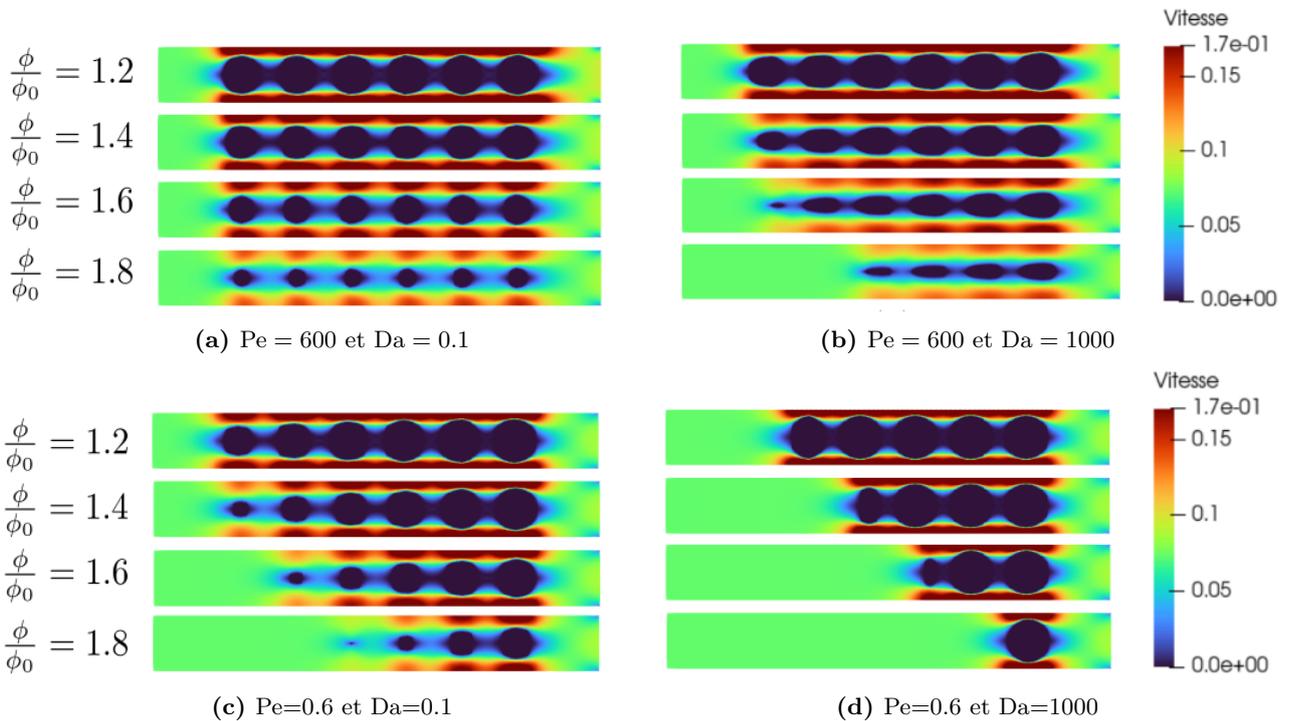


Figure 3.16 – Illustration du champ de vitesse normalisée par $U_{max} = 0.165 [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe = 600$ et $U_{max} = 1.65 \times 10^{-4} [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe = 0.6$ dans le milieu

La figure 3.16 montre la norme du champ de vitesse normalisée par U_{max} pour différents

Pe et Da. La vitesse U_{max} correspond à la vitesse maximale dans le milieu obtenue à l'état stationnaire avant le début du processus de dissolution (voir l'algorithme figure 2.1). Il est à noter que cette vitesse diminue après le premier changement de géométrie dû à la dissolution. Il est aussi intéressant de noter que ce qui a été observé sur le graphique de perméabilité-porosité dans la figure 3.14, est également prouvé par le champ de vitesse dans la figure 3.16. En partant du fait que pour un Da donné et pour une porosité fixe, nous observons que plus l'écoulement est rapide, plus la dissolution est représentée par la diminution de la hauteur du disque, ce qui favorise le passage du fluide. Ainsi, une augmentation de la perméabilité est observée sur la figure 3.14.

Nous avons pu montrer qu'il existe une forte dépendance entre les régimes de transport et de réaction caractérisés par les nombres Pe et Da et les différentes formes de dissolution. Celles-ci se distinguent les unes des autres, pour une même porosité, par la surface réactive disponible pour le réactif. Dans le cas d'une seule inclusion, malgré la forme différente obtenue lors de la dissolution, la variation de la surface spécifique est la même pour tous les cas (voir figure 3.9a).

Pour la dissolution d'une série de grains, nous avons vu que la forme et le nombre de grains changent pour un volume de solide donné selon les valeurs de Pe et Da. Il convient donc, dans la section suivante, de mettre en évidence l'influence du régime de transport sur l'évolution de la surface réactive.

3.4.3 Etude de l'influence du régime du transport sur la relation surface spécifique – porosité

Dans les simulations réalisées sur le milieu de la figure 3.13, nous calculons la surface spécifique instantanée. Sa variation en fonction de la porosité normalisée est présentée sur la figure 3.17. Nous observons que la surface spécifique dépend du régime de transport. Cette caractéristique est en désaccord avec ce qui est remarqué pour le cas de l'inclusion unique. Nous remarquons la disparition des grains les un après les autres pour de faibles Pe et un important Da qui correspond au cas de la dissolution frontale. Cela explique les ondulations (au nombre de 6) dans la variation de la surface en fonction de la porosité (courbes avec symboles carrés et des cercles rouges).

Nous remarquons pour les autres courbes que lorsque la porosité $\frac{\phi}{\phi_0} < 1.3$, les surfaces sont les mêmes. Cela est dû au fait que tous les grains se dissolvent simultanément (voir la figure 3.16). Pour une porosité $\frac{\phi}{\phi_0} > 1.3$, la surface évolue de manière similaire pour tous les cas sauf pour le cas de faibles Pe et Da (courbes du symbole carrés bleu et cercles jaunes). Pour ce dernier cas, le nombre de grains est égale à 5, contrairement aux autres qui sont à 6.

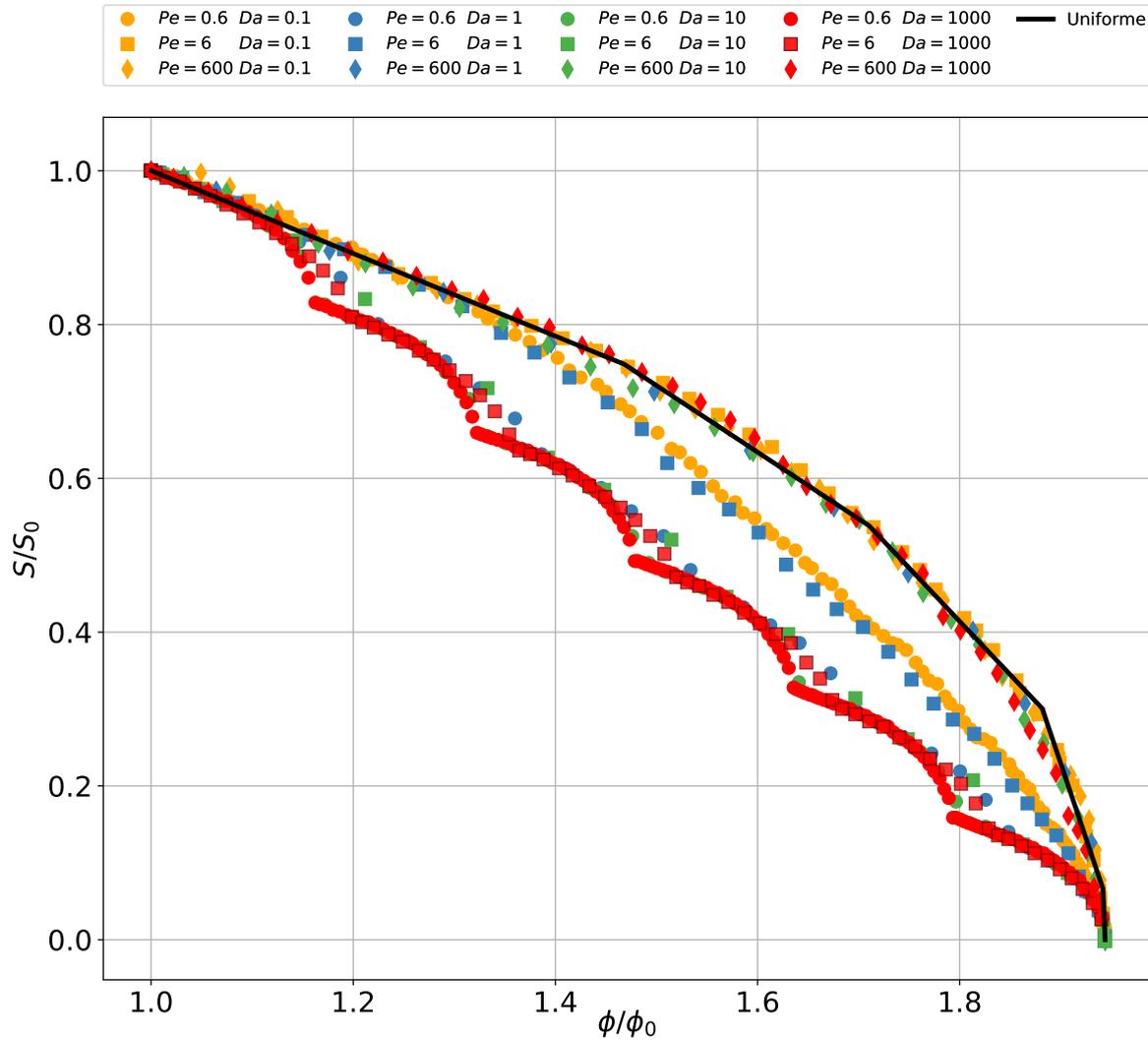


Figure 3.17 – Variation de la surface spécifique normalisée en fonction de la porosité normalisée pour différents Pe et Da pour un milieu poreux périodique

En conclusion, le milieu poreux n'est pas contrôlé que par le volume de solides qu'il contient, mais aussi par sa distribution. Une même quantité de solides peut être distribuée sur différentes surfaces spécifiques et sous plusieurs formes. L'évolution de la forme de la microstructure de l'ensemble du milieu peut être mesurée par la tortuosité. La figure 3.18 montre pour un Da faible et un Pe modéré ou élevé le rapport des composantes de la tortuosité est proche de 1, il commence à s'écarter pour un Pe faible à cause de la disparition complète de certains éléments.

La grande anisotropie est capturée pour les réactions rapides, où des formes d'inclusion non uniformes apparaissent dans le milieu.

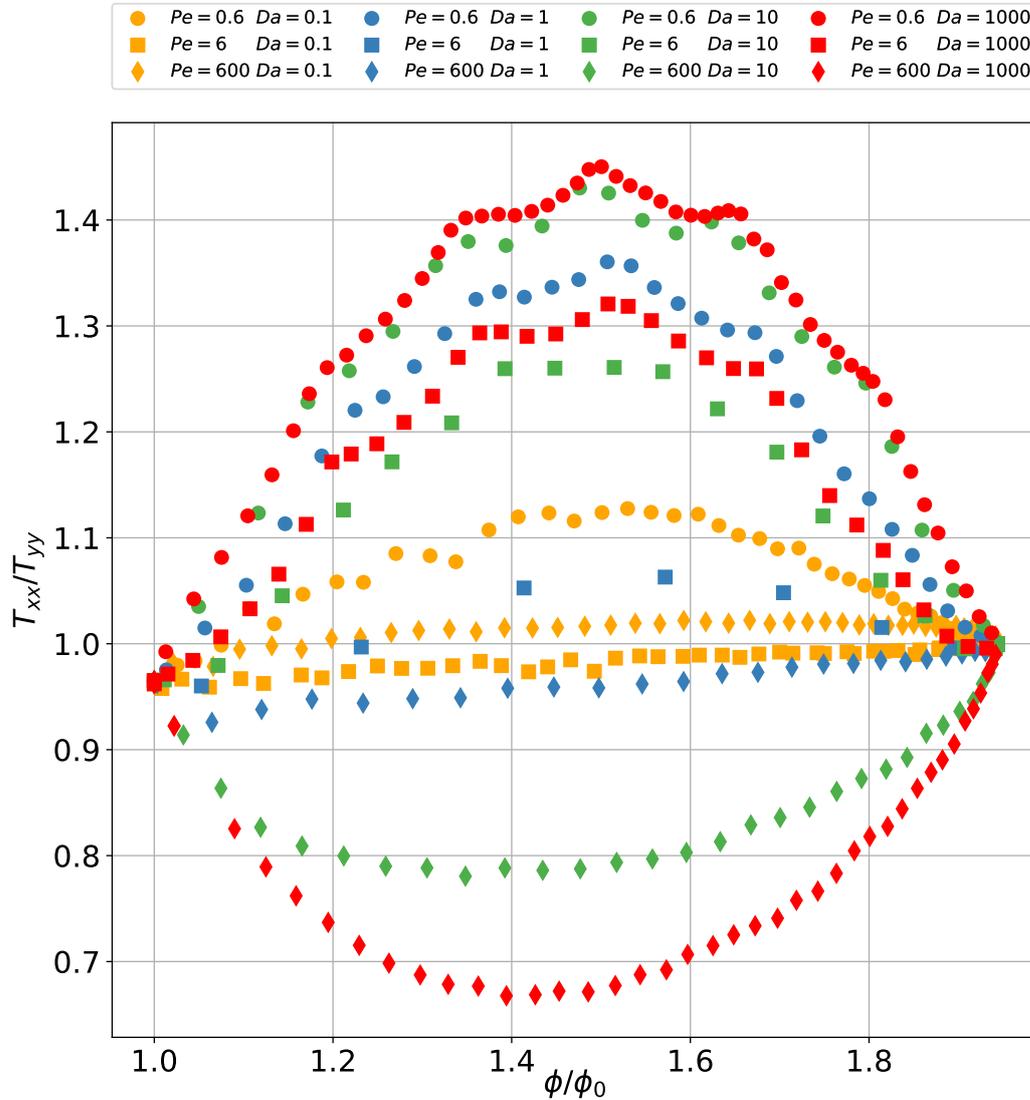


Figure 3.18 – Rapport des composantes diagonales de la tortuosité T_{xx} et T_{yy} en fonction de la porosité normalisée pour différents régimes de transport en présence d'une réaction rapide dans un milieu poreux

En somme, ce qui a été retenu de l'étude du milieu poreux formé par une série de grains, comme les relations perméabilité-porosité et tortuosité-porosité et les aspects d'anisotropie apparus sur les grains, sont de même nature que ce qui est vu pour l'inclusion circulaire, alors que la surface spécifique a un comportement différent dans les deux études. Cette différence prouve que ce qui

est obtenu sur une cellule élémentaire ne peut pas toujours être généré sur le milieu façonné de la répétition périodique. Le problème soulevé est de comprendre comment la dissolution d'un grain affecte son voisinage. Pour être précis, poussons notre étude plus loin et suivons le comportement de chaque cellule séparément.

3.4.4 Suivi temporel de l'évolution des inclusions circulaires cellule par cellule

Rappelons qu'un écoulement rapide (Pe élevé) pourrait rapidement transporter la concentration sur une longue distance dans la direction x . Le gradient de concentration développé autour des interfaces perturbe les équilibres sur la rangée de grains et initie la dissolution dans ces zones. L'évolution de la porosité en fonction du temps suivie dans la figure 3.19a pour chaque grain séparément prouve que la dissolution commence aux interfaces de tous les grains presque simultanément pour un Pe élevé.

Pour de grands Da , la figure 3.19b montre que la dissolution commence à $t = 0.2 - 0.3$ [s] sur tous les grains mais la durée de dissolution des grains n'est pas la même. Le réactif agit sur le premier grain beaucoup plus rapidement que les autres. La disparition des grains se fait par ordre de leur position de sorte que le premier grain se dissout plus rapidement que le suivant et ainsi de suite. Alors que pour un Pe élevé mais un Da faible, le réactif transporté par le fluide arrive rapidement sur les sites réactifs et commence la dissolution sur les grains pour $t = 7$ [s] et 11 [s] (voir figure 3.19a). La dissolution elle-même est assez lente dans le temps, les grains évoluent de manière uniforme en forme et ont besoin d'un temps à peu près équivalent pour disparaître.

Pour les régimes de transport où la diffusion domine comme sur la figure 3.19c et 3.19d les grains se dissolvent successivement selon deux modes. Pour la réaction lente, la dissolution commence sur les grains un par un de sorte que la dissolution devient de plus en plus lente d'un grain à l'autre. Pour la réaction rapide, la dissolution du grain suivant a lieu presque à la fin de la dissolution du grain précédent. Un front efface les grains successivement. On en déduit que si l'on prend une série de N cellules dans une rangée, cela ne revient pas vraiment à dissoudre N fois la cellule.

Sur la base des résultats obtenus et des conclusions tirées de cette section, dont la plus fondamentale est que le processus de dissolution d'un seul grain n'a pas nécessairement le même impact que celui de la chaîne de grains et dépend des régimes qui prédominent, nous percevons dans la section suivante l'étude d'un cas général en mettant en scène le désordre des grains dans l'espace poral.

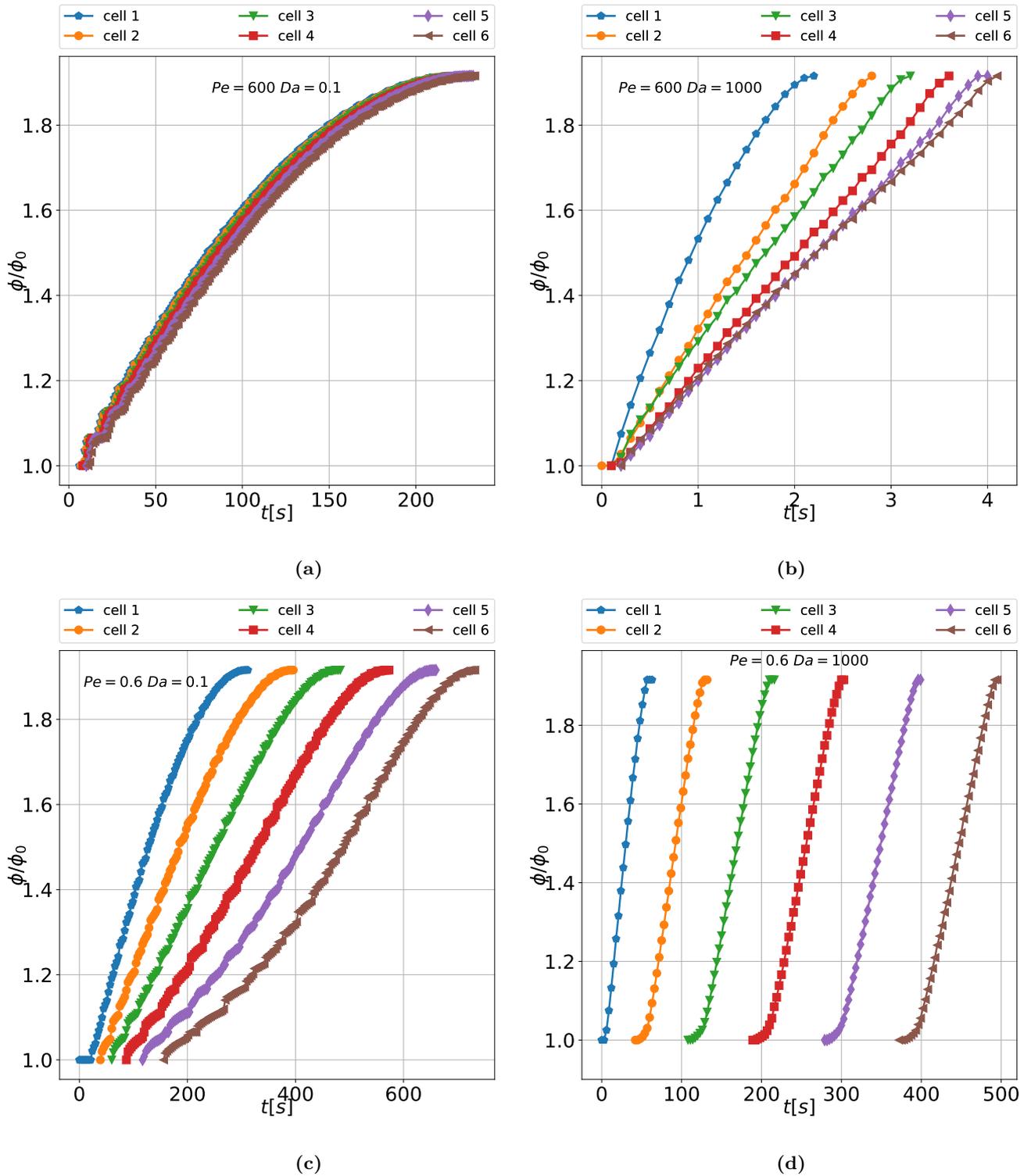


Figure 3.19 – Suivi de la variation temporelle de la porosité normalisée cellule par cellule pour différents régimes de transport réactif

3.5 Dissolution des milieux poreux aléatoires

Pour étudier les changements induits par la dissolution dans les milieux poreux aléatoires, nous appliquons le modèle de transport réactif basé sur la méthode de Boltzmann sur réseau dont l'algorithme est présenté dans la figure 2.1. L'une des premières étapes de la construction du modèle est de définir la géométrie du milieu à simuler.

3.5.1 Génération des milieux poreux

La modélisation du transport de masse réactive dans cette section est effectuée sur des échantillons numériques de milieux poreux. La microstructure poreuse de ces échantillons est générée à l'aide de la librairie libre de Python "Porespy", développée par "Porous Materials Engineering & Analysis Lab (PMEAL)" [183]. Ce logiciel est une collection d'outils d'analyse d'images utilisés pour extraire des informations des images 2D/3D de matériaux poreux. Il permet également de créer des milieux poreux bidimensionnels ou tridimensionnels, isotropes ou anisotropes en ajustant les paramètres d'entrée associés que nous aborderons dans la suite. Le module générateur "random sequential addition of spheres" de PoreSpy que nous utilisons dans cette étude vise à créer une image composée de sphères placées de façon aléatoire où les principaux paramètres d'entrée suivants peuvent être spécifiés : la taille de la grille en indiquant le nombre de pixels utilisés dans les directions horizontale et verticale, le nombre total de disques, leur rayon, la porosité, la distance minimale entre deux disques, etc. Le principal avantage de cette approche est que le chevauchement des disques peut être évité ou contrôlé. Dans le cadre de ce travail, les milieux poreux sont composés de disques de même taille qui ne se chevauchent pas afin de garantir la même porosité dans les milieux. Chaque domaine bidimensionnel consiste en une grille de 448 x 320 mailles qui comprend un ensemble de 25 inclusions circulaires. Les mêmes porosités sont initialement fixées sachant que les disques ont un rayon $r=52$ lb.

La figure 3.20 regroupe des sélections de milieux poreux. La figure 3.20a présente une structure poreuse régulière et les autres présente des structures complètement aléatoires.

Une fois les images élaborées, le logiciel porespy les convertit du mode image en un fichier texte par la fonction "porespy.io.to_palabos". Le fichier produit est une représentation binaire contenant 3 étiquettes : 2 pour solide, 1 pour interface, 0 pour fluide. Palabos lit ce fichier pour mettre en place la géométrie et exécute la simulation en fonction de la dynamique des nœuds.

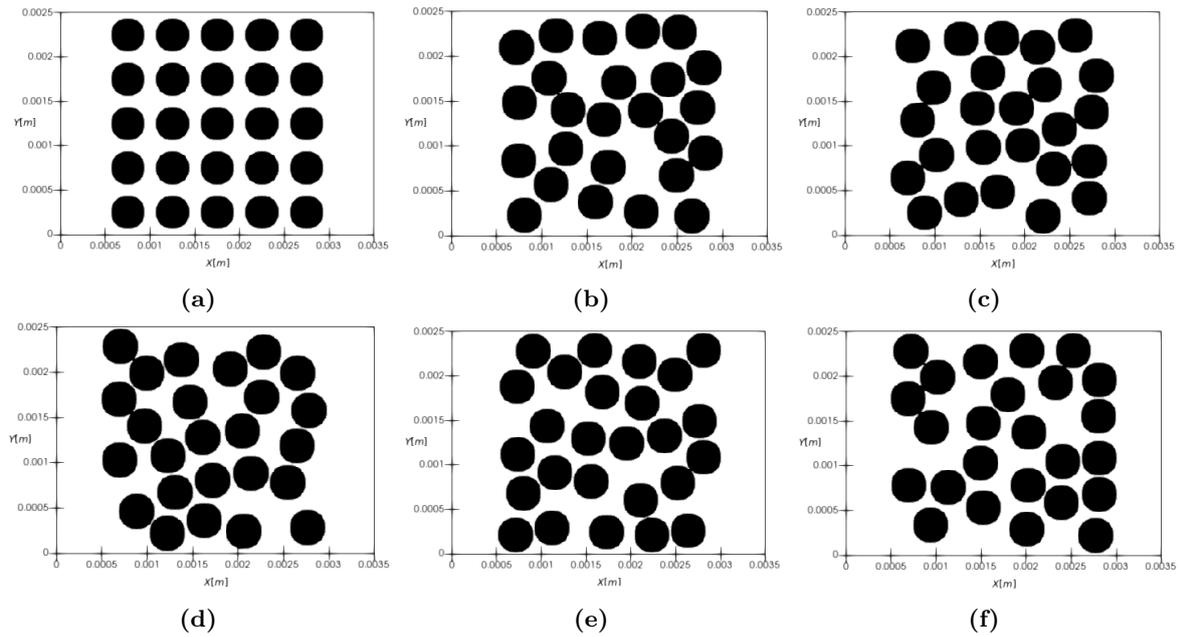


Figure 3.20 – Milieux poreux numériques d’une longueur $L_x = 0.0035$ [m] et d’une largeur $L_y = 0.0025$ [m] avec divers désordres. Figure 3.20a : Structure d’arrangement ordonnée ; figures 3.20b, 3.20c, 3.20d, 3.20e, 3.20f : Structure d’arrangement arbitraire. Le noir indique les solides réactifs ; le blanc est l’espace des pores

3.5.2 Effet du caractère aléatoire de la structure poreuse sur les propriétés du milieu poreux

La répartition des solides dans les milieux poreux est l’un des principaux facteurs contrôlant la perméabilité du milieu. Elle favorise l’écoulement des fluides dans certaines zones beaucoup plus que d’autres. En examinant la relation entre la perméabilité et la porosité pour différents régimes de dissolution et milieux, nous observons différentes relations mettant en jeu l’influence de l’hétérogénéité du milieu. Un exemple pour un ensemble de Pe et Da est présenté dans la figure 3.21.

Différents régimes de dissolution sont observés sur la figure 3.22 en fonction de la combinaison de Pe et Da , reflétant la dominance d’un phénomène sur l’autre. En effet, le phénomène de dissolution localisée plus à l’entrée se produit pour un Pe et Da faible alors que pour un Pe faible si la réaction est rapide, la dissolution se traduit par une avancée du front qui efface brutalement les solides en diffusant.

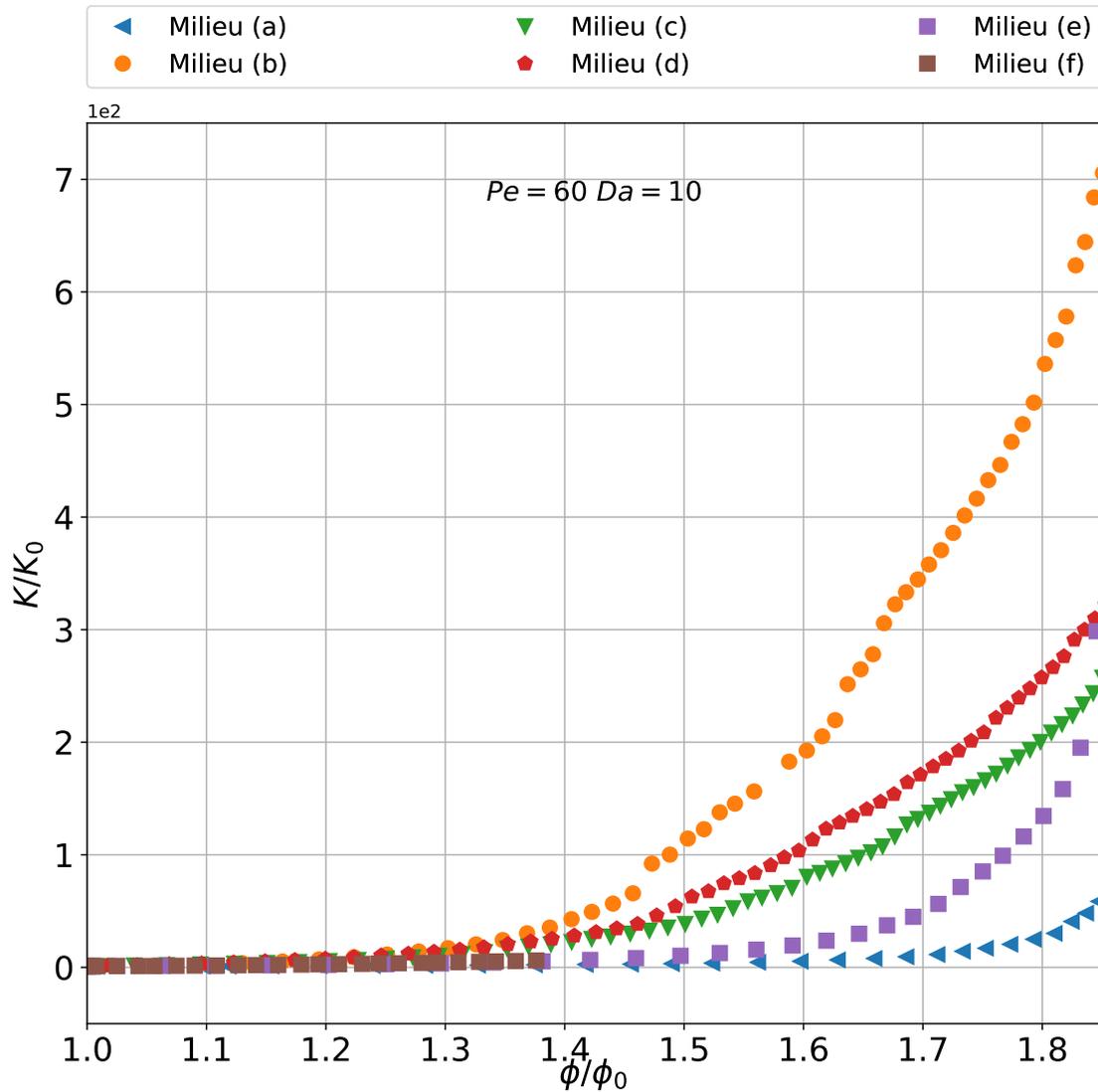


Figure 3.21 – Relation perméabilité-porosité pour les milieux poreux de la figure 3.20 avec $Pe=60$ et $Da=10$

Pour un Pe élevé et un Da faible la dissolution se fait partout ce qui élargit les espaces entre les grains créant des chemins préférentiels : on peut parler de dissolution ramifiée. Par contre, si Pe et Da sont élevés, la dissolution se produit principalement dans les chemins de haute perméabilité où la vitesse d'écoulement est élevée. Dans ces chemins, la solution en déséquilibre chimique est rapidement renouvelée par advection. Par conséquent, la dissolution a lieu en priorité dans les zones traversées par le fluide à grande vitesse, c'est-à-dire les voies très perméables, ce qui implique la canalisation du milieu.

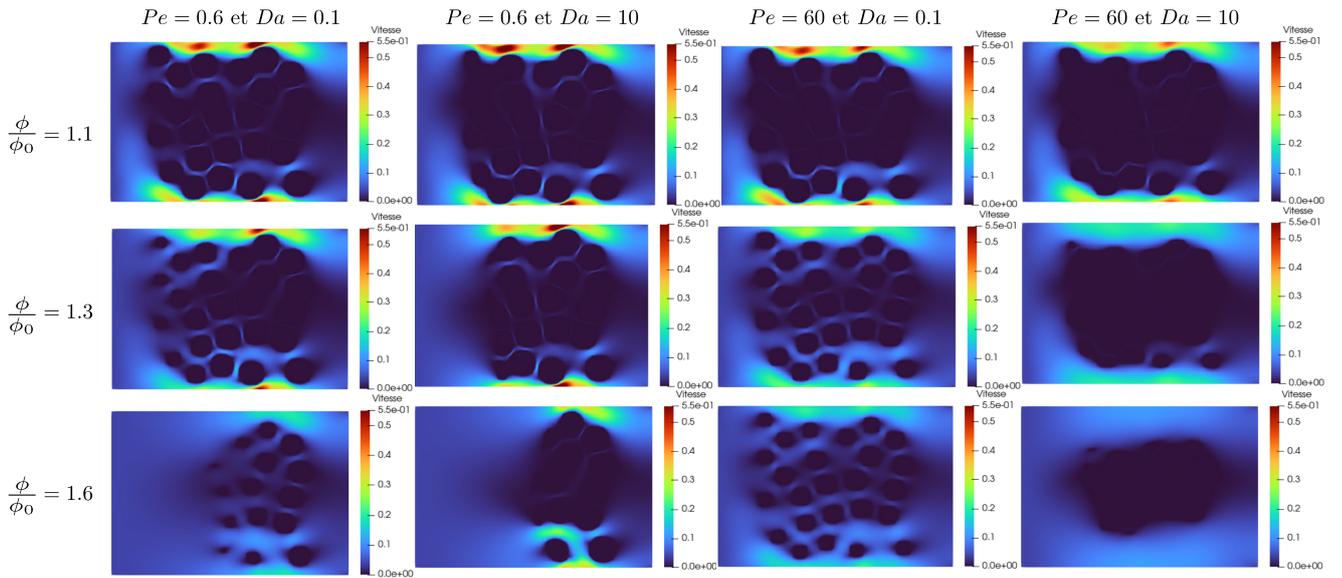


Figure 3.22 – Illustration du champ de vitesse normalisé par $U_{max} = 6.5 \times 10^{-3} [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe=60$ et $U_{max} = 6.5 \times 10^{-5} [m \cdot s^{-1}]$ pour $Pe=0.6$ dans le milieu poreux 3.20d pour différents nombres de Pe et Da

La distribution du champ de concentration et son évolution pour différentes porosités (par exemple celui du milieu 3.20d présenté dans la figure 3.23) semblent cohérentes avec le cas de la dissolution de la séquence de grains dans la section précédente.

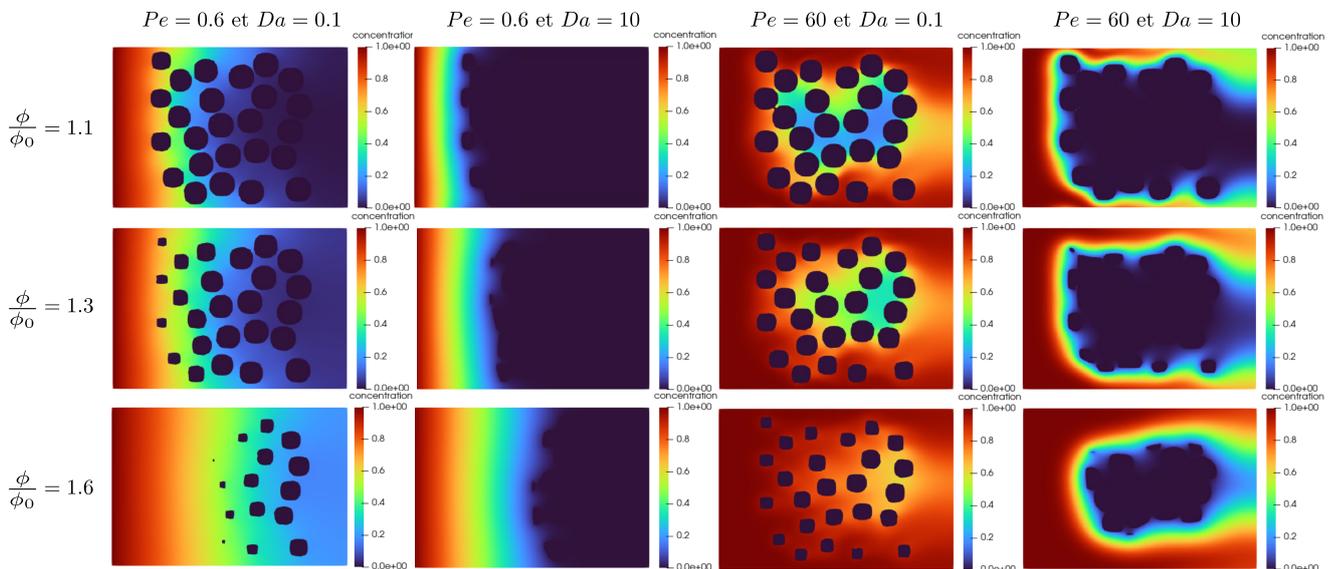


Figure 3.23 – Illustration du champ de concentration normalisé par $C_{ref} = 10^4 [mol \cdot m^{-3}]$ dans le milieu poreux 3.20d pour différents nombres de Pe et Da

3.6 Transport réactif dans les milieux complexes

De manière plus générale, le modèle qui a été développé peut s'adapter au transport de masse dans des milieux poreux de tout type de complexité. Nous avons par exemple tester le code avec un milieu poreux généré par PoreSpy, mais cette fois la microstructure poreuse n'est pas un simple arrangement de disques. La fonction "blobs" de Porespy permet de créer des milieux poreux d'une taille donnée et d'une porosité fixe avec une morphologie plus complexe. La structure interne du milieu est contrôlée par un paramètre de correction appelé "blobbiness" qui varie dans la gamme de 0 à 1. La figure 3.24 compare trois compositions de milieux poreux bidimensionnels avec une porosité de 0.6 en fonction du paramètre de correction.

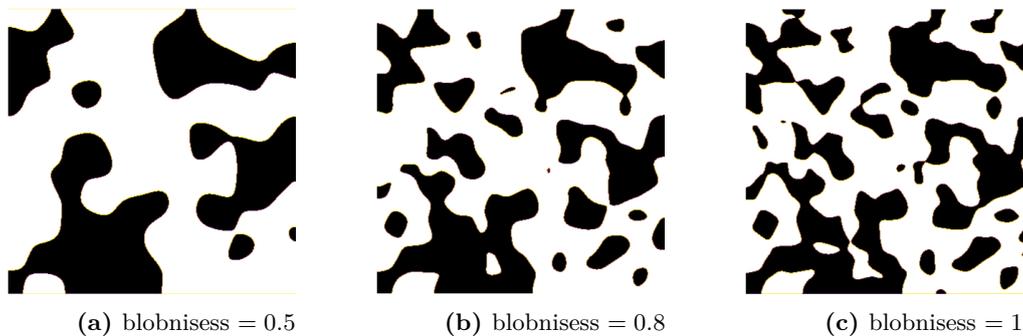


Figure 3.24 – Trois représentations des milieux poreux générés par Porespy avec différents "blobbiness"

La figure 3.24 montre qu'en réduisant la valeur du paramètre "blobbiness", un plus grand diamètre de pore est obtenu dans la structure finale. Les images des milieux poreux obtenus sont traduites par une matrice binaire et peuvent être lues facilement par Palabos pour initialiser la géométrie.

D'autres méthodes de construction de milieux poreux sont également utiles pour étudier le transport réactif. En effet, le code développé peut être utilisé pour des échantillons réels comme celui de la figure 3.25a. En utilisant le logiciel "ImageJ", une image capturée est lue puis reproduite comme dans la figure 3.25b sous la forme d'une matrice binaire. La pureté de la figure et d'autres critères peuvent être réglés [184].

Considérons une structure du milieu poreux illustrée à la figure 3.26 utilisé par Kang et al. [114]. Le milieu a une porosité de 0,43 avec une grille carrée de taille de maille de 256 lb. Le milieu poreux étant délimité de haut et bas, une condition de vitesse nulle est imposée. Les paramètres des simulations sont donnés dans le tableau 3.4. La vitesse caractéristique utilisée dans le calcul de Péclet est déterminée numériquement. Elle correspond à la vitesse moyenne du fluide en régime stationnaire dans la géométrie initiale du milieu avant d'être soumis à la dissolution.

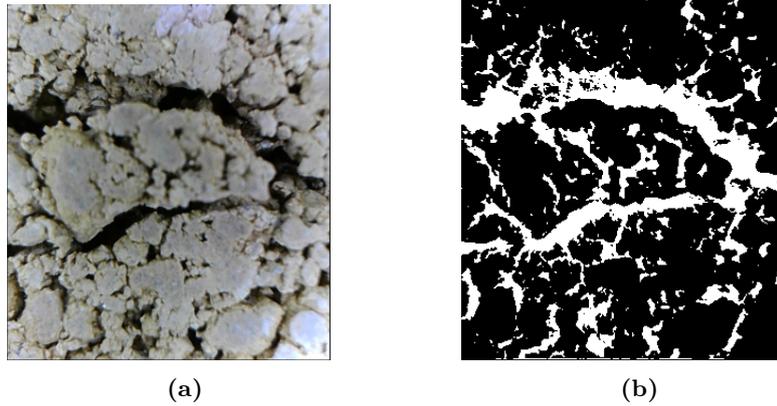


Figure 3.25 – Figure 3.25a : Échantillon du milieu poreux composé de terre avec une porosité ouverte de 30% produit au laboratoire LGCGM de l'INSA-Rennes. Figure 3.25b : transformation du milieu 3.25a en image matricielle numérique prête à l'utilisation dans la simulation

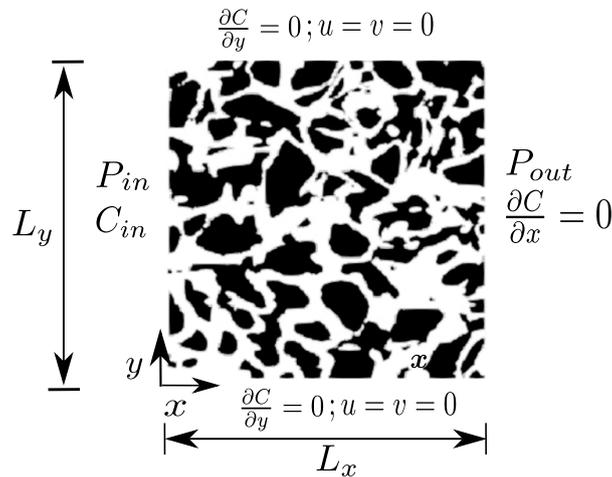


Figure 3.26 – Schématisation du milieu poreux simulé et des conditions aux limites

Nous simulons l'écoulement, le transport et la dissolution couplés dans ce milieu pour vérifier dans un premier temps la capacité du code à gérer des milieux complexes. A cette fin, nous regardons si les champs de vitesse et de concentration sont adaptés à la morphologie interne évolutive du milieu contenant les pores ouverts et fermés. Les figures 3.27 montrent les champs de vitesse à différentes porosités pendant la dissolution pour Pe et Da élevés. Nous voyons que, contrairement à la condition périodique, la vitesse élevée est relativement distribuée au milieu de l'espace des pores. Cette information est importante pour comprendre les phénomènes qui suivent, tels que le transport d'espèces et l'échange de matière. En effet, les figures 3.28 montrent que les gradients de concentration sont de plus en plus élevés dans les chemins les plus perméables. Ces chemins privilégiés pour le fluide sont les sites les plus exposés à la dissolution.

Considérons un régime de transport avec un Pe modéré et varions la vitesse de réaction en

Paramètres	Unité physique	Unité lb	
$L_x \times L_y$	0.0256×0.0256	256×256	
ρ	1000	1	
ν	10^{-6}	1/6	
D	10^{-7}	1/60	
Δx	10^{-4}	1	
Δt	1.6667×10^{-3}	1	
V_M	3.69×10^{-5}	0.369	
$C_{eq} = C_{ref}$	10^4	1	
k	3.906×10^{-5}	6.5×10^{-3}	Da = 10
	3.906×10^{-6}	6.5×10^{-4}	Da = 1
	3.906×10^{-7}	6.5×10^{-5}	Da = 0.1
$\Delta P = P_{in} - P_{out}$	3.3×10^{-1}	9.167×10^{-2}	Pe = 10.7
	3.3×10^{-2}	9.167×10^{-3}	Pe = 1.2
	3.3×10^{-3}	9.167×10^{-4}	Pe = 0.12

Table 3.4 – Paramètres de la simulation de dissolution dans le milieu de la figure 3.25

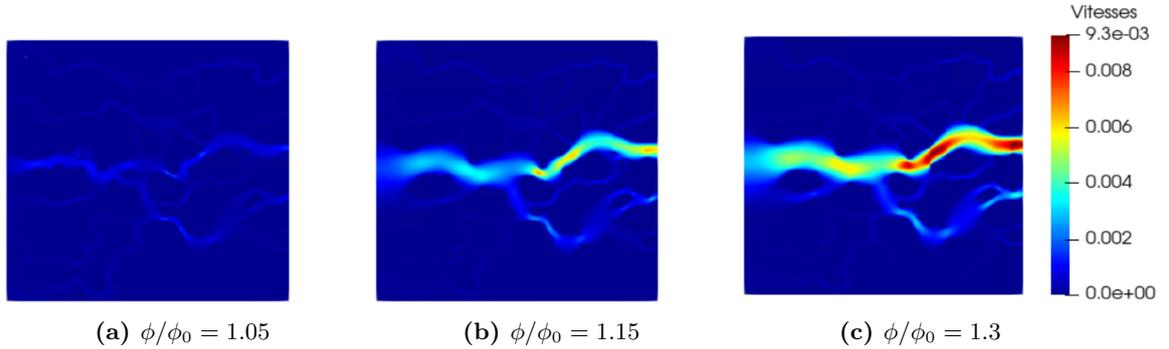


Figure 3.27 – Distributions du champ de vitesse à $Pe = 10.7$, $Da = 10$

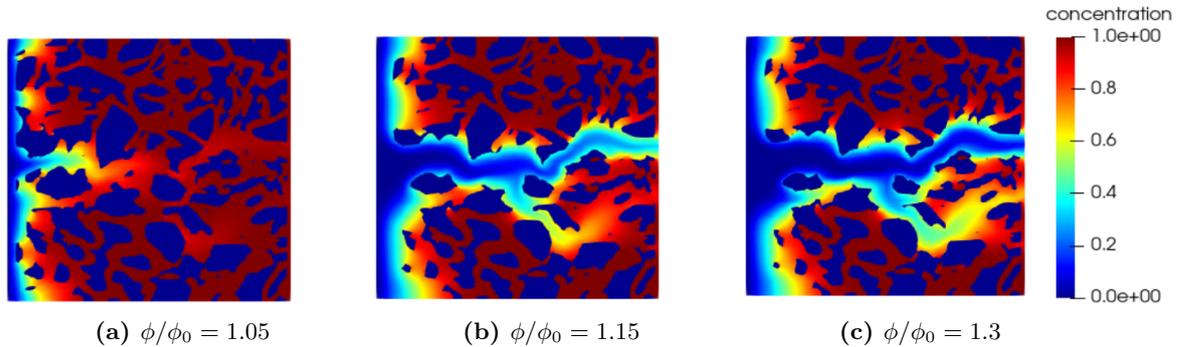


Figure 3.28 – Distributions du champ de concentration normalisée à $Pe = 10.7$, $Da = 10$

changeant Da . Nous observons trois modèles de dissolution différents comme le montre le champ de concentration dans les figures 3.29,3.30,3.31.

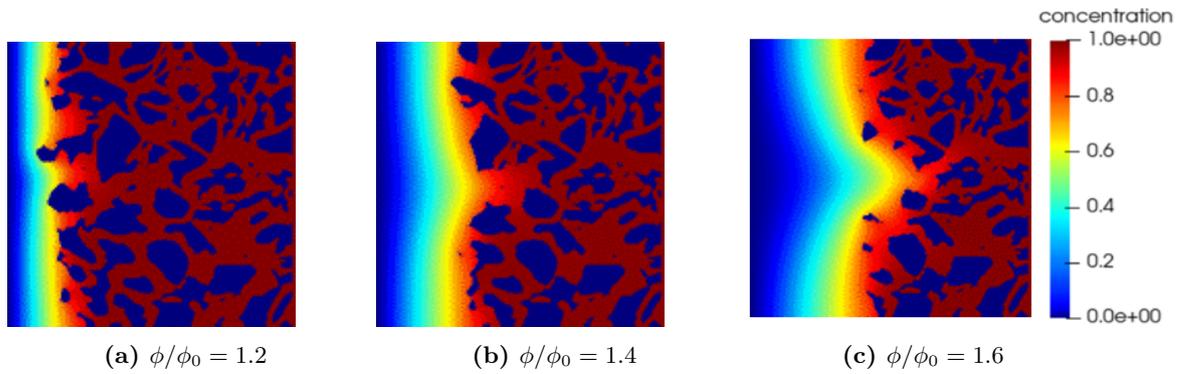


Figure 3.29 – Distribution de la concentration normalisée à $Pe = 1.2$, $Da = 10$

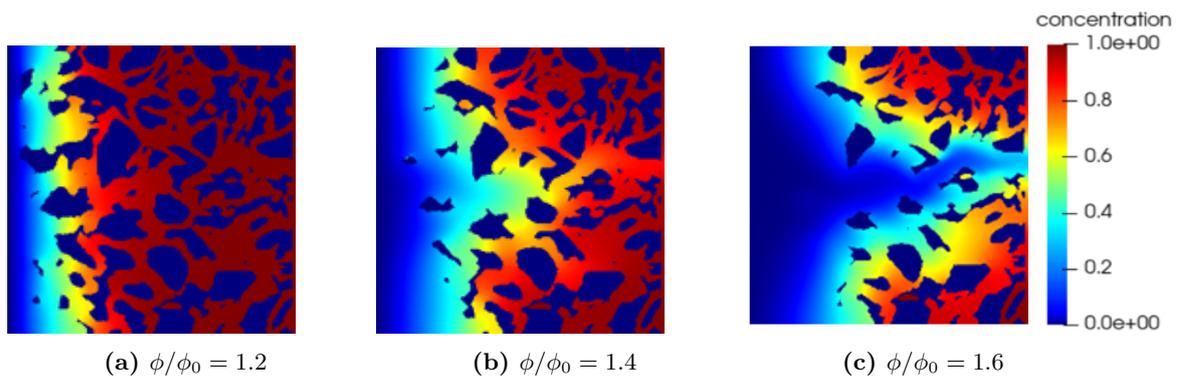


Figure 3.30 – Distribution de la concentration normalisée à $Pe = 1.2$, $Da = 1$

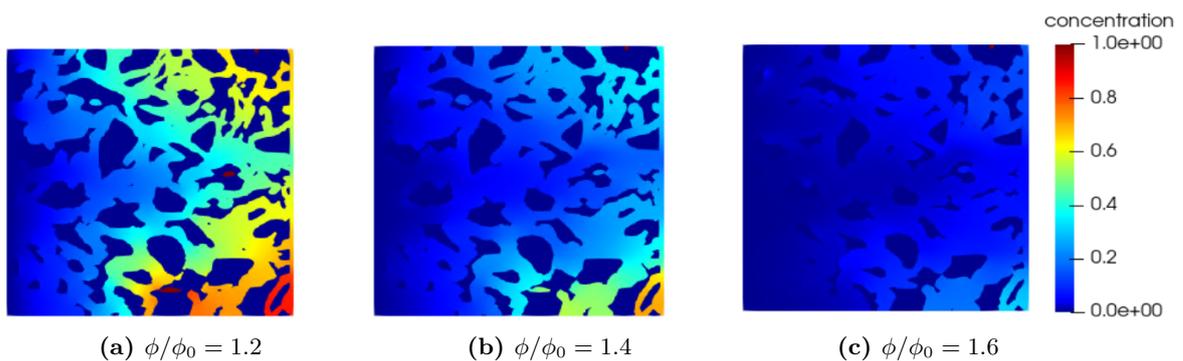


Figure 3.31 – Distribution de la concentration normalisée à $Pe = 1.2$, $Da = 0.1$

Nous pouvons donc généraliser les résultats en déduisant qu'indépendamment de l'hétérogénéité de la microstructure du milieu poreux, nous pouvons associer des classifications des

motifs dissous en fonction du nombre de Pe et Da. Nous observons un motif de dissolution frontal si Pe est faible et Da élevé, canalisé ou ramifié si Pe et Da sont tous deux élevés, uniforme pour Da faible, et mixte (contenant une transition d'un modèle à l'autre) si le Da est modéré. Les variations de perméabilité normalisée en fonction de la porosité à différents Pe et Da sont présentées sur la figure 3.32. L'ordre de ces relations est analogue à ce qui a été observé dans le cas des milieux poreux basés sur une répétition périodique de cellule élémentaire.

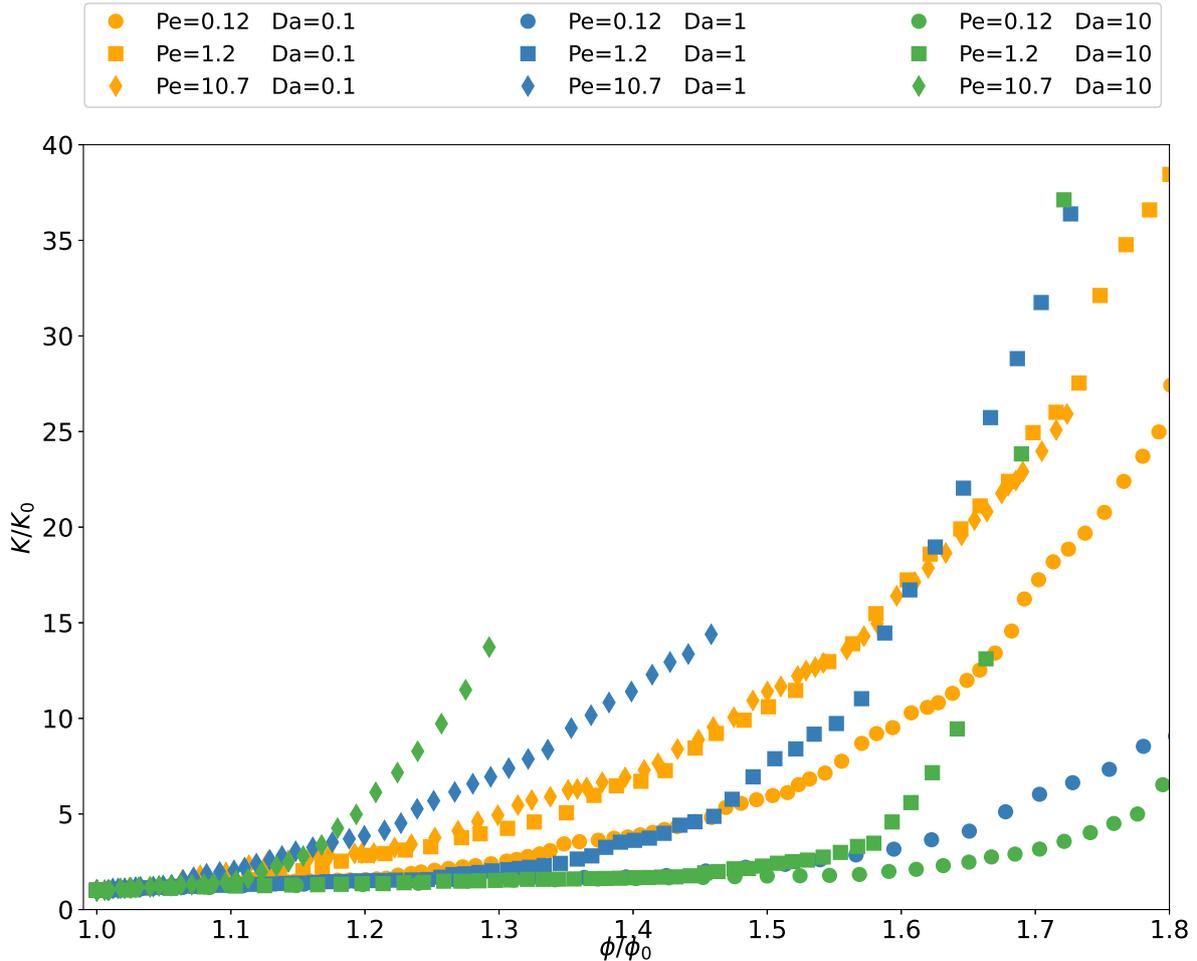


Figure 3.32 – Variation de la perméabilité normalisée en fonction de la porosité normalisée à différentes valeurs de Pe et Da correspondant à la dissolution du milieu poreux à structure compliquée de la figure 2.16

3.7 Conclusion

Nous avons examiné l'impact des changements induits par la dissolution sur les propriétés de quatre types de milieux poreux : inclusion circulaire, milieu poreux périodique, milieux poreux

aléatoires et milieu poreux à structure complexe. Nous avons constaté que les relations entre les propriétés macroscopiques dépendent fortement des régimes de transport et de dissolution, ainsi que de la géométrie du milieu poreux. Nous avons suivi et analysé l'évolution de la microstructure.

Dans le cas d'une inclusion, nous avons pu distinguer les milieux les moins résistants aux fluides en fonction de l'ensemble des Pe et Da imposés. Nous avons remarqué que l'évolution de la forme du grain ne modifie pas a priori la variation de la surface spécifique en fonction de la porosité. Cette conclusion n'est pas vraie pour le cas d'un milieu poreux où la surface spécifique d'un volume occupé par un solide dépend de deux critères : la forme et le nombre de grains du milieu.

De plus, nous avons confirmé l'isotropie de la cellule en calculant la tortuosité en présence d'une réaction lente. Nous avons prouvé que la dissolution de l'inclusion circulaire peut être modélisée par des modèles de réduction de porosité uniforme pour les réactions lentes et pour certaines valeurs de Pe pour les réactions rapides.

Plus précisément, nous avons prouvé qu'un grain peut avoir un effet sur son voisinage. Ainsi, la dissolution d'une série de N grains ne signifie pas nécessairement la dissolution de N fois un grain. Cette conclusion est conditionnée par les régimes de transport et de dissolution qui régissent le milieu. Elle n'est vraie que pour des Pe suffisamment élevés et des Da faibles.

Nous avons aussi constaté que la distribution aléatoire des solides dans la structure des pores a une influence sur les relations porosité-perméabilité. Cependant, elle ne change pas la classification du modèle de dissolution. Nous avons présenté différents types de modèles comme la dissolution uniforme, canalisée, frontale, ramifiée, etc.

En conclusion, cette étude met en évidence la complexité des changements induits par la dissolution, même pour le système chimique simple considéré, sur les propriétés macroscopiques des milieux poreux à l'échelle du pore. Il est donc important de comprendre les interactions qui existent dans les modèles de dissolution solide avec des systèmes chimiques plus complexes proches de la réalité. Il est également nécessaire de déterminer comment l'utilisation de modèles numériques peut améliorer l'efficacité de la résolution des problèmes de transport réactif. Dans ce qui suit, ces aspects seront évoqués dans les perspectives.

Conclusions générales et perspectives

L'objectif général de ce travail de recherche était de développer un modèle numérique de transport d'espèces réactives pour prédire les changements dans la microstructure d'un milieu poreux saturé, permettant ainsi une étude à l'échelle du pore des phénomènes d'altération dus aux réactions chimiques hétérogènes. La méthode LBM a été choisie pour ses avantages, qui ont été rappelés dans la section 1.4 de ce manuscrit. Ainsi le modèle développé au cours de mon travail de thèse permet le suivi de l'évolution du champ de concentration d'une espèce chimique au cours du processus de transport par advection et diffusion. Il permet également de prendre en compte le couplage du transport de masse, des réactions chimiques et de la modification de la phase solide suite aux réactions chimiques. Cependant, ce travail a été limité à une réaction de dissolution.

Le modèle développé au cours de cette thèse de doctorat est donc basé sur la méthode de Boltzmann sur réseau. Il couple un solveur d'écoulement de fluide à un modèle de transport par advection et diffusion à une seule espèce. Le milieu poreux est complètement saturé par un fluide monophasique incompressible. En ce qui concerne la modélisation du transport de l'espèce chimique et son couplage avec l'écoulement, plusieurs hypothèses ont été émises.

Premièrement, le coefficient de diffusion dans l'équation de transport est considéré constant. Deuxièmement, la concentration de l'espèce chimique dans le fluide est suffisamment faible pour que la présence de l'espèce dans le fluide n'influence pas son écoulement impliquant ainsi un couplage faible.

Les réactions de surface ont été modélisées comme des flux réactifs résultant des gradients de concentration qui se produisent suite à l'échange de masse entre les deux phases. Elles sont traitées comme des conditions aux limites de l'équation d'advection et de diffusion. Une grande partie de la littérature a été consacrée à ces conditions aux limites en raison de l'accent mis sur certains critères : la conservation du flux à l'interface, précision numérique, flexibilité des schémas, et autres contraintes sur les approches proposées.

Une des difficultés de ces méthodes est d'adapter le traitement des réactions hétérogènes aux structures complexes des pores. Afin d'intégrer ces réactions sur tout type de frontière, des traitements spécifiques des nœuds d'interface sont requis. Ces traitements nécessitent un calcul de la normale à la surface dans différentes orientations et pour des formes arbitraires ainsi que la distinction entre interfaces plates et courbes. Pour tous ces critères, il a été décidé de comparer différents schémas issus d'études antérieures, qu'ils soient locaux ou non, afin d'étudier la précision de leurs performances. Ainsi, nous avons retenu le schéma proposé par Meng et al [117] en le limitant pour l'instant à une position de l'interface localisée à mi-distance entre deux nœuds ($q = 0$).

La deuxième difficulté est que les interfaces solide-fluide sont le siège de dissolution ou de précipitation, ce qui fait que l'espace des pores lui-même change avec le temps. Par conséquent, un autre défi à relever a été de déplacer l'interface solide-fluide réactive pour suivre l'évolution de la morphologie du milieu. Pour décrire l'évolution de la microstructure nous avons utilisé la méthode des valeurs seuils, "VOP", qui consiste à considérer les frontières comme des frontières marquées. Le suivi de l'évolution de la frontière réactive nous a permis d'analyser la répartition microscopique des phases dissoutes ou précipitées dans le volume des pores.

Le premier résultat de ce travail a consisté à valider le modèle implémenté dans Palabos. Cette validation a été conduite en plusieurs étapes. Elle a consisté de partir, à chaque étape, d'un nombre réduit de phénomènes pour les valider. Tout d'abord, les processus d'écoulement et de diffusion d'une seule espèce, sur des géométries simples, en particulier le transport entre deux plans, sont validés par des solutions analytiques en régime instationnaire. L'effet des paramètres liés à la méthode numérique tels que la discrétisation spatiale et le temps de relaxation ont été examinés. Ensuite une série de simulations a été réalisée pour la validation de la mise en œuvre de la chimie par des solutions analytiques en régime transitoire ou permanent. La précision des schémas de Kang, Meng et Différence Finie implémentés a été examinée et complétée par des études d'erreurs. Nos travaux montrent un excellent accord entre les solutions analytiques et numériques dans tous les cas testés au cours de cette thèse. Dans une dernière étape, la modification de la microstructure a été validée par des études de référence issues de la littérature. Le suivi de l'interface mobile par dissolution d'une barre minérale due à une diffusion unidirectionnelle a été validée par des solutions numériques d'éléments finis. Nous avons également validé le modèle en étudiant la dissolution uniforme d'un milieu à fracture simple dont la corrélation perméabilité - porosité obéit à une loi cubique. Toutes les validations effectuées montrent que le solveur développé est capable de simuler le processus de dissolution/précipitation des minéraux dans des milieux 2D à l'échelle du pore.

Ensuite, l'importance de l'hétérogénéité du milieu pour prédire l'évolution de la structure du pore et de la perméabilité pendant le transport réactif a été considérée. Ainsi, la relation perméabilité-porosité normalisées est explorée dans différents types de milieux allant d'une représentation simplifiée du pore à des cas plus complexes de milieux : milieu à fracture simple, milieu à inclusion circulaire, milieu poreux périodique, milieux poreux aléatoires et milieu poreux complexe. Les résultats ont montré que la relation entre la perméabilité et la porosité s'est avérée fortement dépendante des nombres de Péclet et de Damköhler qui contrôlent la prédominance des régimes de transport et de réactivité et de la géométrie du milieu étudié. Cette relation nous permet d'identifier la résistance du milieu au transport pendant la dissolution. L'interprétation menée a été consolidée par une analyse comparative des morphologies du milieu associées à différentes porosités lors de la dissolution.

Nous avons aussi utilisé notre modèle pour étudier la dissolution d'une inclusion circulaire soumise à différents régimes de transport. Nous avons d'abord discuté de la sensibilité des résultats à la résolution de la discrétisation spatiale et aux conditions aux limites. Les résultats ont montré que plus la discrétisation spatiale est fine, plus la disparition du solide dans le milieu est rapide. Pour les conditions aux limites des bords extérieures du milieu simulé notamment les parois supérieures et inférieures, nous avons considéré deux types de conditions aux limites : conditions de flux de masse nul et conditions périodiques. Nous avons conclu que le type de conditions aux limites affecte les évolutions temporelles de la porosité et de la perméabilité mais n'affecte pas les relations perméabilité-porosité. Il a été montré que ces relations suivent une loi de puissance similaire, sauf dans les cas de réaction rapide (grand Da) où des déviations des relations sont apparues par rapport au cas de référence (dissolution uniforme). Ces changements sont qualifiés par le suivi de la déformation de l'inclusion circulaire qui montre une dissolution uniforme pour les réactions lentes avec différents nombres de Péclet et une dissolution non uniforme pour les réactions rapides qui diffèrent selon le régime de transport régi dans le milieu. L'anisotropie observée sur l'inclusion a été quantifiée par la relation tortuosité-porosité. Nous avons donc pu prouver qu'il est possible de modéliser la dissolution à l'échelle macroscopique en utilisant des modèles de réduction de la porosité uniforme si la réaction est lente.

Nous avons ensuite étendu l'étude précédente à la simulation du milieu poreux constitué par une répétition périodique d'une cellule élémentaire à inclusion circulaire. La principale contribution de cette étude est que la dissolution de séries de N grains ne peut pas toujours être reproduite à partir de la dissolution N fois d'une seule cellule élémentaire. Ceci peut être considéré comme une conséquence de l'impact de la dissolution d'un grain sur son voisinage. Nous avons aussi montré que l'évolution de la surface spécifique du milieu n'est pas seulement contrôlée par le volume de solides qu'il contient mais aussi par sa répartition.

Après, nous avons étudié la sensibilité de la dissolution aux changements de l'hétérogénéité

décrite numériquement par la position aléatoire des grains. Les résultats montrent que le mode de distribution des solides dans la structure des pores a une influence sur les propriétés du milieu. Pour illustrer l'impact du régime de transport sur les types de dissolution, des aperçus de la morphologie à différentes porosités sont extraits en fonction de Pe et Da . Cinq types de dissolution ont été observés dans les simulations : dissolution uniforme, dissolution canalisée, dissolution ramifiée, dissolution frontale et dissolution mixte.

Perspectives

Dans ce travail de thèse, la modélisation numérique du transport de masse avec prise en compte d'une réaction de dissolution à l'échelle de pores ont été explorés. Les perspectives directes qui peuvent être envisagées concernent le transport réactif multi-espèces ainsi que la prise en compte de réactions hétérogènes.

Transport réactif multi-espèces

Un modèle de transport réactif implique un mélange fluide-solide séparé par des interfaces qui constituent des sites réactifs et qui sont le siège de phénomènes de transformation de phase. Les réactions à l'interface expriment l'échange de matière entre le fluide et le solide mais ne sont pas la seule source réactive du système étudié. Comme mentionné dans le chapitre 1, les processus réactifs peuvent également se produire dans le fluide lui-même. Cependant, l'intégration des processus réactifs dans le modèle que nous avons développé se fait au prix d'une simplification consistant à ne considérer qu'une seule espèce dissoute et à se limiter au traitement des réactions qui ont lieu aux interfaces. Par conséquent, l'échange de matière dans le fluide n'est pas pris en compte.

Une première étape à faire dans le futur serait d'étendre ce modèle au cas du transport multi-espèces qui permettrait de prendre en compte les processus réactifs entre les espèces aqueuses. De même, l'incorporation de plusieurs composants au modèle de transport réactif permettrait de prendre en compte plusieurs réactions hétérogènes et homogènes en même temps et pourrait aider à étudier des processus complexes plus réalistes.

Un système multi-espèces conduirait à écrire le système chimique comme une matrice de réaction qui fixe le nombre d'équations d'advection-diffusion à résoudre. Classiquement, la matrice de réaction chimique est construite sur la base de la représentation canonique de cette dernière, ce qui revient à regrouper les espèces dans le volume du fluide sous deux catégories d'espèces : les primaires et les secondaires dont le nombre est égal au nombre de réactions chimiques. Les réactions homogènes dans le volume du fluide, sont considérées comme très

rapides par rapport au temps de transport caractéristique, et sont modélisées à l'équilibre par une loi d'action de masse. Cette modélisation nécessite un traitement spécifique soit au moyen d'un module chimique souvent basé sur des méthodes d'algèbre linéaire comme la méthode de Newton-Raphson en raison de la non-linéarité des équations chimiques, soit par des codes géochimiques tels que "Phreeqc" [121, 185, 186]. Il est évident que l'utilisation de ce type de code offre une base de données assez importante sur les réactions chimiques.

Avec ces modèles multi-espèces, il serait possible de reproduire des applications réelles qui sont généralement formées par plus d'une réaction chimique. Par exemple, il serait possible de prendre en compte les réactions de précipitation qui se produisent à la suite de la création d'espèces solubles en raison de la dissolution de certains minéraux.

Traitement des réactions chimiques hétérogènes

Comme mentionné dans le chapitre 2, il est rare dans la littérature que les interfaces solide-fluide soient traitées comme un terme source dans l'équation LBE pour la diffusion advective au lieu de les exprimer comme des conditions aux limites. Pour ce faire, il faut supposer que les réactions hétérogènes sont pseudo-homogènes. De plus, la précision de la modélisation des réaction par un terme source n'est pas discutée dans la littérature. Il serait alors intéressant de comparer le traitement des réactions comme conditions aux limites au traitement des termes sources dans les équations d'advection-diffusion afin de déterminer la précision des deux méthodes pour résoudre les réactions et de connaître leur flexibilité pour s'adapter à différentes géométries ainsi que leurs performances.

Extension du modèle en 3D

Le modèle de transport par advection-diffusion actuellement développé dans Palabos est basé sur un réseau D2Q5. Il considère le mouvement des espèces d'un nœud à l'autre dans des directions orthogonales uniquement. Bien que les réseaux D2Q5 et D2Q9 donnent des résultats similaires dans la résolution de transport [112], ils servent de base pour déterminer quels nœuds sont marqués comme interfaces. Les liens entre les nœuds solide-fluide sont donc liés au réseau utilisé dans la résolution de transport. Un réseau D2Q9 donne évidemment une interface plus lisse que celle définie par un réseau D2Q5. Une question importante à considérer en premier lieu est d'étudier l'influence des réseaux D2Q5 et D2Q9 sur le changement de la microstructure.

Autrement, il existe une bibliothèque spécifique dans Palabos pour résoudre l'écoulement et le transport 3D. Par conséquent, une extension de notre modèle de transport réactif en 3D est certainement un intérêt scientifique inévitable pour rendre la modélisation du transport réactif plus réaliste. A cette fin, l'extension de la condition aux limites de Meng en 3D serait

attendue. Cela implique que le nombre de fonctions de distribution inconnues à l'interface augmente et que des méthodes pour les déterminer doivent être proposées et validées. En outre, la méthode de suivi de l'interface pour la mise à jour de la phase solide doit également être liée à la géométrie étendue. Les milieux poreux 3D à utiliser peuvent être déterminés par des méthodes de traitement d'images [54].

Annexe A

La loi de distribution des vitesses de Maxwell

James Clerk Maxwell a découvert que le traitement d'un grand nombre de particules est difficile même si la loi est connue (deuxième loi de Newton). En effet, le suivi de la trajectoire de chaque particule est incontrôlable dans un système macroscopique. L'idée de Maxwell face à ce problème c'est qu'il n'est pas important de connaître la position et la vitesse de chaque particule à chaque pas de temps. L'effet de la molécule peut être caractérisé par la fonction de distribution f .

Lorsqu'un gaz est laissé tranquille pendant un temps suffisamment long, il atteint un état d'équilibre. Pour un gaz considéré à l'équilibre, Maxwell définit f^{eq} comme étant la probabilité qu'une particule ait ses composantes de vitesse comprise entre v_x et $v_x + dv_x$, v_y et $v_y + dv_y$, v_z et $v_z + dv_z$.

Considérons d^3P la probabilité qu'une particule ait ses composantes de vitesse comprise entre v_x et $v_x + dv_x$, v_y et $v_y + dv_y$, v_z et $v_z + dv_z$:

$$d^3P = f^{\text{eq}}(\mathbf{v}) dv_x dv_y dv_z \quad (\text{A.1})$$

d^3P dépend de $\mathbf{v} = (v_x, v_y, v_z)$ et dv_x , dv_y , dv_z , mais ne dépend pas de la position de la particule puisque le gaz est en équilibre. dP_x la probabilité qu'une particule ait une vitesse comprise entre v_x et $v_x + dv_x$ est donnée :

$$dP_x = \varphi_x(v_x) dv_x \quad \text{de même} \quad dP_y = \varphi_y(v_y) dv_y \quad \text{et} \quad dP_z = \varphi_z(v_z) dv_z \quad (\text{A.2})$$

D'après la loi des probabilités composées,

$$d^3P = dP_x dP_y dP_z \quad (\text{A.3})$$

En partant d'un point donné de l'espace avec une vitesse \mathbf{v} dans toutes les directions, la particule décrit une sphère. Les particules dont les composantes de vitesse sont comprises entre v_x et $v_x + dv_x$, v_y et $v_y + dv_y$, v_z et $v_z + dv_z$ sont celles qui sont sur la coquille de sphère comme le montre la figure A.1.

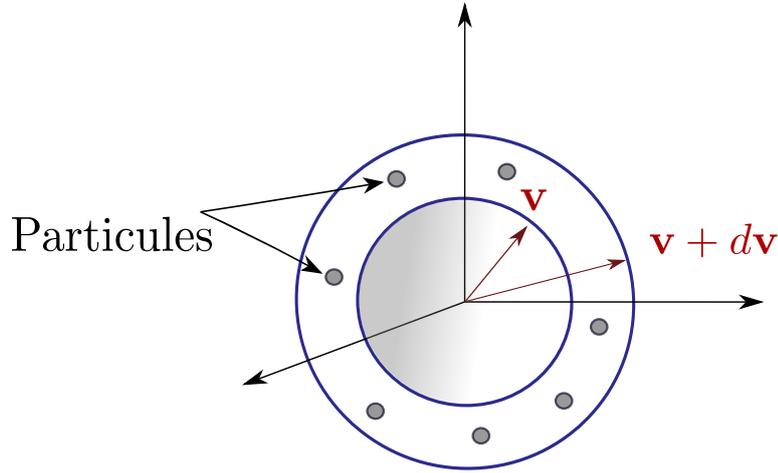


Figure A.1 – Position des particules ayant des vitesses entre \mathbf{v} et $\mathbf{v} + d\mathbf{v}$

La forme sphérique garantit que l'espace est isotrope¹. Par conséquent, la probabilité sera inchangée et la fonction $f^{\text{eq}}(\mathbf{v})$ ne dépend pas du vecteur \mathbf{v} , au mieux elle dépend de l'intensité de vitesse \mathbf{v} .

$$d^3P = f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)dv_x dv_y dv_z \quad (\text{A.4})$$

avec $|\mathbf{v}| = \sqrt{v_x^2 + v_y^2 + v_z^2}$.

D'autre part, l'isotropie de l'espace assure : $\varphi_x = \varphi_y = \varphi_z = \varphi$,
ce qui nous permet de trouver facilement que :

$$f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|) = \varphi(v_x) \varphi(v_y) \varphi(v_z) \quad (\text{A.5})$$

On obtient alors :

$$d^3P = f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)dv_x dv_y dv_z \quad (\text{A.6})$$

avec $|\mathbf{v}| = \sqrt{v_x^2 + v_y^2 + v_z^2}$.

1. signifie qu'il n'y a pas de direction privilégiée

Dérivons l'équation (A.5) par rapport au composant v_x , on obtient :

$$\frac{\partial f^{\text{eq}}}{\partial v_x} = \frac{df^{\text{eq}}}{d\mathbf{v}} \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial v_x} = \frac{v_x}{|\mathbf{v}|} \frac{df^{\text{eq}}}{dv} \quad (\text{A.7})$$

$$= \frac{\partial}{\partial v_x} (\varphi(v_x) \varphi(v_y) \varphi(v_z)) = \varphi(v_y) \varphi(v_z) \frac{d\varphi(v_x)}{dv_x} \quad (\text{A.8})$$

$$\frac{1}{|\mathbf{v}|} \frac{df^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)}{d\mathbf{v}} = \frac{\varphi(v_y) \varphi(v_z)}{v_x} \frac{d\varphi(v_x)}{dv_x} \quad (\text{A.9})$$

En divisant l'égalité ci-dessus par $f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)$ et en remplaçant ensuite $f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)$ par son expression (A.5) dans le second membre de l'égalité, on obtient

$$\frac{1}{|\mathbf{v}| f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)} \frac{df^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|)}{d\mathbf{v}} = \frac{1}{v_x \varphi(v_x)} \frac{d\varphi(v_x)}{dv_x} \quad (\text{A.10})$$

Il est clair que le terme $|\mathbf{v}|$ du membre de gauche dépend v_x, v_y, v_z , tandis que celui de droite ne dépend que de v_x alors le résultat est nécessairement une constante que nous nommons α .

$$\int \frac{d\varphi(v_x)}{\varphi(v_x)} = \ln \varphi(v_x) = \int \alpha v_x dv_x = \frac{\alpha}{2} v_x^2 + \ln A \quad (\text{A.11})$$

avec A constante à déterminer.

L'équation (A.11) implique :

$$\varphi_x(v_x) = A e^{\frac{\alpha}{2} v_x^2}, \quad \text{de même } \varphi_y(v_y) = A e^{\frac{\alpha}{2} v_y^2} \quad \text{et} \quad \varphi_z(v_z) = A e^{\frac{\alpha}{2} v_z^2} \quad (\text{A.12})$$

Posons $B = -\frac{\alpha}{2}$, $B > 0$ puisque α est forcément négatif (car sinon la probabilité qu'une particule ait une composante de vitesse infinie serait infinie, ce qui est impossible).

Pour déterminer l'expression de f^{eq} , il suffit de trouver les valeurs des constantes A et B.

Remplaçons l'équation (A.12) dans (A.5), nous obtenons :

$$f^{\text{eq}}(|\mathbf{v}|) = A^3 e^{-B|\mathbf{v}|^2} \quad (\text{A.13})$$

$$\begin{aligned} A^3 \int e^{(-Bv^2)} d\mathbf{v} &= \rho \quad (\text{Définition de la densité}) \\ \Rightarrow A^3 \left(\sqrt{\frac{\pi}{B}}\right)^3 &= \rho \quad (\text{A.14}) \\ \Rightarrow A &= \rho^{\frac{1}{3}} \left(\frac{B}{\pi}\right)^{\frac{1}{2}} \end{aligned}$$

La valeur moyenne de v_x^2 est calculée par :

$$\begin{aligned}
 \langle v_x^2 \rangle &= \frac{\int_0^{+\infty} v_x^2 e^{-Bv_x^2} dv_x}{\int_0^{+\infty} e^{-Bv_x^2} dv_x} \\
 &= \frac{\int_0^{+\infty} v_x^2 e^{-Bv_x^2} dv_x}{\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{B}}} \\
 &= \frac{\frac{1}{4B} \sqrt{\frac{\pi}{B}}}{\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{B}}} \\
 &= \frac{1}{2B}
 \end{aligned} \tag{A.15}$$

On utilise le fait que : $\langle v_x^2 \rangle = \langle v_y^2 \rangle = \langle v_z^2 \rangle = \frac{1}{3} \langle \mathbf{v}^2 \rangle$. On a :

$$\langle \mathbf{v}^2 \rangle = \int_0^{+\infty} \mathbf{v}^2 \rho \left(\frac{B}{\pi} \right)^{\frac{3}{2}} e^{-B\mathbf{v}^2} 4\pi \mathbf{v}^2 d\mathbf{v} = \frac{3}{2B} \tag{A.16}$$

D'après l'hypothèse que la partie de l'énergie liée à la température est due à l'agitation cinétique des particules [93], nous avons que :

$$\begin{aligned}
 \rho e &= \frac{3}{2} \rho RT = \frac{1}{2} \int |\mathbf{v}|^2 f d^3\mathbf{v} = \frac{1}{2} \rho \langle \mathbf{v}^2 \rangle \\
 \Rightarrow \frac{3}{2} \rho RT &= \frac{\rho}{2} \frac{3}{2B} \\
 \Rightarrow B &= \frac{1}{2RT}
 \end{aligned} \tag{A.17}$$

D'où l'expression de la fonction d'équilibre en 3D est :

$$f^{\text{eq}}(\mathbf{x}, |\mathbf{v}|, t) = \rho \left(\frac{1}{2\pi RT} \right)^{\frac{3}{2}} e^{-|\mathbf{v}|^2/(2RT)} \tag{A.18}$$

Plus généralement, pour un espace de dimension "d"

$$f^{\text{eq}}(\mathbf{x}, |\mathbf{v}|, t) = \rho \left(\frac{1}{2\pi RT} \right)^{\frac{d}{2}} e^{-|\mathbf{v}|^2/(2RT)} \tag{A.19}$$

Annexe B

Lien entre l'équation de lattice Boltzmann et l'équation d'advection diffusion

Pour retrouver l'équation d'advection diffusion depuis l'équation de Boltzmann, la méthode la plus couramment utilisée est le développement de Chapman-Enskog. D'autres méthodes sont également disponibles dans la littérature [93]. La démonstration se base principalement sur la partie hors équilibre de g , $g_i^{neq} = g_i - g_i^{eq}$. La manière de déterminer la partie non-équilibrée n'est pas évidente, pour cela l'analyse de Chapman-Enskog est utilisée.

Analyse de Chapman-Enskog

Le développement de Chapman-Enskog consiste à exprimer g_i comme une expansion de perturbation autour de la fonction de distribution d'équilibre g_i^{eq} [187]. Il s'écrit

$$g_i = g_i^{(0)} + \varepsilon g_i^{(1)} + \varepsilon^2 g_i^{(2)} + \dots \quad (\text{B.1})$$

· ε est le nombre de Knudsen

Il est également nécessaire d'étendre les opérateurs de dérivation spatiale et temporelle pour obtenir les équations macroscopiques. Cette expansion des dérivées est souvent appelée expansion multi-échelles. Ainsi le développement de Chapman-Enskog de la dérivée temporelle est donnée par :

$$\partial_t = \sum_{i=1}^{\infty} \varepsilon^i \partial_t^{(i)} \quad (\text{B.2})$$

L'équation ci-dessus n'est qu'une définition formelle mais qui n'a pas de sens mathématique. En effet, les différents composants de la dérivée temporelle ∂_t à des ordres variés de Kn ne sont pas considérés eux-mêmes des dérivées en temps. Ce sont juste des termes à différents ordres de Kn de sorte que leurs sommes présentent la dérivée temporelle. Dans la démonstration, nous utilisons le développement jusqu'à l'ordre 2 de ε de la dérivée temporelle

$$\partial_t = \varepsilon \partial_t^{(1)} + \varepsilon^2 \partial_t^{(2)} + \mathcal{O}(\varepsilon^3) \quad (\text{B.3})$$

Cependant, pour la dérivée spatiale une seule échelle d'espace suffit,

$$c_{i\alpha} \partial_\alpha = \varepsilon c_{i\alpha} \partial_\alpha^{(1)} + \mathcal{O}(\varepsilon^2) \quad (\text{B.4})$$

Passage de LBE à ADE

Le développement de Taylor de la fonction $g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t)$ est donné par :

$$g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t, t + \Delta t) - g_i(\mathbf{x}, t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Delta t^n}{n!} (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha)^n g_i \quad (\text{B.5})$$

On néglige le terme d'ordre 3,

$$\sum_{n=3}^{\infty} \frac{\Delta t^n}{n!} (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha)^n g_i \quad (\text{B.6})$$

nous obtenons le développement de Taylor d'ordre 2 de l'équation de lattice Boltzmann 1.63 :

$$\Delta t (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha) g_i + \frac{\Delta t^2}{2} (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha)^2 g_i + \mathcal{O}(\Delta t^3) = -\frac{\Delta t}{\tau_g} g_i^{\text{neq}} \quad (\text{B.7})$$

Pour éliminer la dérivative d'ordre 2, le terme $\left(\frac{\Delta t}{2}\right) (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha)$ est pris en facteur dans l'équation (B.7)

$$\Delta t (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha) g_i = -\frac{\Delta t}{\tau_g} g_i^{\text{neq}} + \Delta t (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha) \left[-\frac{\Delta t}{2} \underbrace{(\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha) g_i}_{\Omega_i = \frac{1}{\tau_g} [g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t) - g_i(\mathbf{x}, t)]} \right] + \mathcal{O}(\Delta t^3) \quad (\text{B.8})$$

\implies

$$\Delta t (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha) g_i = -\frac{\Delta t}{\tau_g} g_i^{\text{neq}} + \Delta t (\partial_t + c_{i\alpha} \partial_\alpha) \frac{\Delta t}{2\tau_g} g_i^{\text{neq}} \quad (\text{B.9})$$

Ensuite, l'analyse de Chapman-Enskog (B.1) est appliqué et les termes de même ordre de ε

sont séparés pour avoir :

$$O(\varepsilon^0) : \quad -\frac{\Delta t}{\tau_g} (g_i^{(0)} - g_i^{eq}) = 0 \quad (\text{B.10})$$

$$O(\varepsilon^1) : \quad (\partial_t^{(1)} + c_{i\alpha} \partial_\alpha^{(1)}) g_i^{eq} = -\frac{1}{\tau_g} g_i^{(1)} \quad (\text{B.11})$$

$$O(\varepsilon^2) : \quad \partial_t^{(2)} g_i^{eq} + (\partial_t^{(1)} + c_{i\alpha} \partial_\alpha^{(1)}) \left(1 - \frac{\Delta t}{2\tau_g}\right) g_i^{(1)} = -\frac{1}{\tau_g} g_i^{(2)} \quad (\text{B.12})$$

De $O(\varepsilon^0)$, on déduit que $g_i^{(0)} = g_i^{eq}$ Puis en utilisant les conditions

$$\sum_i g_i = \sum_i g_i^{(0)} = \sum_i g_i^{eq} = C \quad \text{et} \quad \sum_i g_i^{(1)} = \sum_i g_i^{(2)} = 0 \quad (\text{B.13})$$

dans le moment d'ordre zéro de l'équation $O(\varepsilon^1)$ (B.12), on obtient :

$$\sum_i (\partial_t^{(1)} + c_{i\alpha} \partial_\alpha^{(1)}) g_i^{eq} = 0 \quad (\text{B.14})$$

Remplaçant $O(\varepsilon^1)$ dans $O(\varepsilon^2)$, nous obtenons $O(\varepsilon^2)$ en terme de $g_i^{(0)}$

$$\partial_t^{(2)} g_i^{(0)} + (\partial_t^{(1)} + c_{i\alpha} \partial_\alpha^{(1)}) \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) (\partial_t^{(1)} + c_{i\alpha} \partial_\alpha^{(1)}) g_i^{(0)} = -\frac{1}{\tau_g} g_i^{(2)} \quad (\text{B.15})$$

$$\left[\partial_t^{(2)} + \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) (\partial_t^{(1)})^2 + (\Delta t - 2\tau_g) \partial_t^{(1)} c_{i\alpha} \cdot \partial_\alpha^{(1)} + \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) c_{i\alpha} c_{i\alpha} : \partial_\alpha^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \right] g_i^{(0)} = -\frac{1}{\tau_g} g_i^{(2)} \quad (\text{B.16})$$

Prenons, le moment d'ordre zéro de l'équation (B.16) :

$$\begin{aligned} \partial_t^{(2)} \sum_i g_i^{(0)} + \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) (\partial_t^{(1)})^2 \sum_i g_i^{(0)} + (\Delta t - 2\tau_g) \partial_t^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(0)} c_{i\alpha} + \\ \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) (\partial_\alpha^{(1)})^2 \sum_i g_i^{(0)} c_{i\alpha} c_{i\alpha} = 0 \quad (\text{B.17}) \end{aligned}$$

le terme à droite s'annule grâce à la condition B.13.

De l'équation (B.14), le terme $\partial_t^{(2)} \sum_i g_i^{eq}$ peut être écrit :

$$\partial_t^{(2)} \sum_i g_i^{eq} = -\partial_t^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(eq)} c_{i\alpha} \quad (\text{B.18})$$

Remplaçant (B.18) dans (B.17) :

$$\underbrace{\partial_t^{(2)} \sum_i g_i^{\text{eq}}}_{\text{terme 1}} + \underbrace{\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \partial_t^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(\text{eq})} c_{i\alpha}}_{\text{terme 2}} + \underbrace{\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \left(\partial_\alpha^{(1)}\right)^2 \sum_i g_i^{\text{eq}} c_{i\alpha} c_{i\alpha}}_{\text{terme3}} = 0 \quad (\text{B.19})$$

Enfin, pour recouvrir l'équation d'advection diffusion, il suffit d'appliquer les moment de g_i^{eq} à l'équation (B.19)

— **Terme 1** : indépendamment de la structure du réseau et de l'ordre de g_i^{eq} on a :

$$\partial_t^{(2)} \sum_i g_i^{\text{eq}} = \partial_t^{(2)} C \quad (\text{B.20})$$

le développement de Chapman Enskog de la dérivée temporelle (B.3) nous donne :

$$\partial_t^{(2)} C = \frac{1}{\varepsilon^2} \partial_t C - \frac{1}{\varepsilon^1} \partial_t^{(1)} C \quad (\text{B.21})$$

Ensuite, par (B.14) et le développement de Chapman Enskog pour la dérivée spatiale (B.4) on obtient :

$$\frac{1}{\varepsilon^1} \partial_t^{(1)} C = \frac{1}{\varepsilon^1} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(\text{eq})} c_{i\alpha} = \frac{1}{\varepsilon^2} \quad (\text{B.22})$$

Les équations (B.21) et (B.22) impliquent :

$$\partial_t^{(2)} \sum_i g_i^{\text{eq}} = \frac{1}{\varepsilon^2} \left(\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla_\alpha \cdot u_\alpha C \right) \quad (\text{B.23})$$

— **Terme 2** : indépendamment de la structure du réseau et de l'ordre de g_i^{eq}

$$\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \partial_t^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(\text{eq})} c_{i\alpha} = \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \partial_\alpha^{(1)} \cdot \left[u_\alpha \partial_t^{(1)} C + C \partial_t^{(1)} u_\alpha \right] \quad (\text{B.24})$$

Si on considère le temps de variation de l'écoulement lent c'est-à-dire $\partial_t^{(1)} u = 0$, et on utilise l'équation (B.14) on obtient :

$$\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \partial_t^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(\text{eq})} c_{i\alpha} = - \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \partial_\alpha^{(1)} \mathbf{u} \mathbf{u} \partial_\alpha^{(1)} C \quad (\text{B.25})$$

Pour un écoulement incompressible $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0$, l'équation (B.4) donne

$$\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \partial_t^{(1)} \partial_\alpha^{(1)} \cdot \sum_i g_i^{(\text{eq})} c_{i\alpha} = - \frac{1}{\varepsilon^2} \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} \nabla_\alpha^2 C \quad (\text{B.26})$$

— **Terme 3** : dépend du type de la structure du réseau et de g_i^{eq}

Pour g_i^{eq} linéaire (indépendamment du réseau) et de l'équation (B.4), le terme 3 peut s'écrire comme :

$$\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \left(\partial_\alpha^{(1)}\right)^2 \sum_i g_i^{eq} c_{i\alpha} \cdot c_{i\alpha} = \frac{1}{\varepsilon^2} c_s^2 \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \nabla_\alpha^2 C \quad (\text{B.27})$$

Pour les réseaux orthogonal¹ avec g_i^{eq} de second ordre, le terme 3 devient :

$$\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \left(\partial_\alpha^{(1)}\right)^2 \sum_i g_i^{eq} c_{i\alpha} c_{i\alpha} = \frac{1}{\varepsilon^2} \left[\left(c_s^2 - \frac{u_\gamma u_\gamma}{2}\right) \delta_{\alpha\beta} + \frac{u_\gamma u_\delta \delta_{\alpha\beta\gamma\delta}}{2c_s^2} \right] \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \nabla_{\alpha\beta} C \quad (\text{B.28})$$

Pour les réseaux d'ordre élevé de vitesse avec une g_i^{eq} quadratique, le terme 3 devient :

$$\left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \left(\partial_\alpha^{(1)}\right)^2 \sum_i g_i^{eq} c_{i\alpha} \cdot c_{i\alpha} = \frac{1}{\varepsilon^2} \left(c_s^2 + u_\alpha \cdot u_\alpha\right) \left(\frac{\Delta t}{2} - \tau_g\right) \nabla_\alpha^2 C \quad (\text{B.29})$$

Finalement, l'équation de l'advection-diffusion est obtenue en remplaçant ces termes dans l'équation (B.19) :

— Tous les réseaux avec g_i^{eq} linéaire nous donne :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla_\alpha C \cdot u_\alpha = \left(\tau_g - \frac{\Delta t}{2}\right) \left(c_s^2 - u_\alpha \cdot u_\alpha\right) \nabla_\alpha^2 C \quad (\text{B.30})$$

— Les réseaux orthogonaux avec g_i^{eq} quadratique :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla_\alpha C u_\alpha = \left[c_s^2 \delta_{\alpha\beta} + \left(\frac{u_\gamma u_\delta \delta_{\alpha\beta\gamma\delta}}{2c_s^2} - \frac{u_\gamma u_\gamma}{2} \delta_{\alpha\beta} - u_\alpha u_\beta \right) \right] \left(\tau_g - \frac{\Delta t}{2}\right) \nabla_{\alpha\beta} C \quad (\text{B.31})$$

Les réseaux d'ordre élevé de vitesses avec g_i^{eq} quadratique :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla_\alpha C \cdot u_\alpha = c_s^2 \left(\tau_g - \frac{\Delta t}{2}\right) \nabla_\alpha^2 C \quad (\text{B.32})$$

En comparant les équations (B.30),(B.31) et (B.32), on déduit l'expression du coefficient de diffusion :

$$D = c_s^2 \left(\tau_g - \frac{\Delta t}{2}\right) \quad (\text{B.33})$$

1. c'est-à-dire tous les vitesses discrètes sont orthogonales tel que D2Q5

Bibliographie

- [1] J. Beaudoin, R. Feldman, and P. Tumidajski, “Pore structure of hardened portland cement pastes and its influence on properties,” *Advanced Cement Based Materials*, 1994.
- [2] E. Walther, M. Bogdan, R. Bennacer, and C. De Sa, “Cement paste morphologies and effective diffusivity : using the lattice boltzmann method,” *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 2016.
- [3] É. Walther, *Contribution de la Lattice Boltzmann Method à l’étude de l’enveloppe du bâtiment*. PhD thesis, Université Paris-Saclay, 2016.
- [4] R. A. Patel, J. Perko, D. Jacques, G. De Schutter, K. Van Breugel, and G. Ye, “A versatile pore-scale multicomponent reactive transport approach based on lattice Boltzmann method : Application to portlandite dissolution,” *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 2014.
- [5] R. A. Patel, *Lattice Boltzmann method based framework for simulating physico-chemical processes in heterogeneous porous media and its application to cement paste*. PhD thesis, Ghent University, 2016.
- [6] Q. Kang, P. C. Lichtner, and D. R. Janecky, “Lattice boltzmann method for reacting flows in porous media,” *Adv. Appl. Math. Mech*, 2010.
- [7] L. Luquot and P. Gouze, “Experimental determination of porosity and permeability changes induced by injection of co2 into carbonate rocks,” *Chemical Geology*, 2009.
- [8] J. Pereira Nunes, M. Blunt, and B. Bijeljic, “Pore-scale simulation of carbonate dissolution in micro-ct images,” *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 2016.
- [9] C. Soullaine, S. Roman, A. Kovscek, and H. A. Tchelepi, “Mineral dissolution and wormholing from a pore-scale perspective,” *Journal of Fluid Mechanics*, 2017.
- [10] V. Starchenko and A. J. Ladd, “The development of wormholes in laboratory-scale fractures : Perspectives from three-dimensional simulations,” *Water Resources Research*, 2018.
- [11] Q. Kang, “Lattice Boltzmann Method for Reacting Flows in Porous Media,” *AAMM*, 2010.

- [12] D. Alemani, *A Lattice Boltzmann numerical approach for modelling reaction-diffusion processes in chemically and physically heterogeneous environments*. PhD thesis, University of Geneva, 2007.
- [13] D. G. Von Der Schulenburg, T. Pintelon, C. Picioreanu, M. Van Loosdrecht, and M. Johns, “Three-dimensional simulations of biofilm growth in porous media,” *AIChE Journal*, 2009.
- [14] Y. Tang, A. J. Valocchi, C. J. Werth, and H. Liu, “An improved pore-scale biofilm model and comparison with a microfluidic flow cell experiment,” *Water Resources Research*, 2013.
- [15] H. Yoon, Q. Kang, and A. J. Valocchi, “Lattice Boltzmann-Based Approaches for Pore-Scale Reactive Transport,” *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2015.
- [16] M. Benioug, F. Golfier, C. Oltéan, M. Buès, T. Bahar, and J. Cuny, “An immersed boundary-lattice boltzmann model for biofilm growth in porous media,” *Advances in Water Resources*, 2017.
- [17] P. B. Bedient, H. S. Rifai, C. J. Newell, *et al.*, *Ground water contamination : transport and remediation*. Prentice-Hall International, Inc., 1994.
- [18] A. S. Mayer, *Soil and groundwater contamination : Nonaqueous phase liquids*. American Geophysical Union, 2005.
- [19] C. Steefel, C. Appelo, B. Arora, D. Jacques, T. Kalbacher, O. Kolditz, V. Lagneau, P. Lichtner, K. U. Mayer, J. Meeussen, *et al.*, “Reactive transport codes for subsurface environmental simulation,” *Computational Geosciences*, 2015.
- [20] P. R. Di Palma, C. Huber, and P. Viotti, “A new lattice boltzmann model for interface reactions between immiscible fluids,” *Advances in Water Resources*, 2015.
- [21] I. Lagzi and D. Ueyama, “Pattern transition between periodic liesegang pattern and crystal growth regime in reaction–diffusion systems,” *Chemical Physics Letters*, 2009.
- [22] L. Chen, Q. Kang, Y.-L. He, and W.-Q. Tao, “Mesoscopic study of the effects of gel concentration and materials on the formation of precipitation patterns,” *Langmuir*, 2012.
- [23] N. Kalia and V. Balakotaiah, “Effect of medium heterogeneities on reactive dissolution of carbonates,” *Chemical Engineering Science*, 2009.
- [24] M. Ghommem, W. Zhao, S. Dyer, X. Qiu, and D. Brady, “Carbonate acidizing : Modeling, analysis, and characterization of wormhole formation and propagation,” *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2015.
- [25] X. Ma, J. Mou, H. Lin, F. Jiang, K. Liu, and X. Zhao, “Lattice boltzmann simulation of wormhole propagation in carbonate acidizing,” *Journal of Energy Resources Technology*, 2017.
- [26] L. Chen, Q. Kang, B. A. Robinson, Y.-L. He, and W.-Q. Tao, “Pore-scale modeling of multiphase reactive transport with phase transitions and dissolution-precipitation processes in closed systems,” *Physical Review E*, 2013.

-
- [27] X. Zhou, Z. Xu, Y. Xia, B. Li, and J. Qin, "Pore-scale investigation on reactive flow in porous media with immiscible phase using lattice boltzmann method," *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2020.
- [28] Y. Fawaz, *Stimulation dynamique des réservoirs d'hydrocarbures*. PhD thesis, Université de Pau et des Pays de l'Adour, 2021.
- [29] P. Liu, H. Xue, L. Zhao, X. Zhao, and M. Cui, "Simulation of 3d multi-scale wormhole propagation in carbonates considering correlation spatial distribution of petrophysical properties," *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, vol. 32, pp. 81–94, 2016.
- [30] S. Molins, D. Trebotich, C. I. Steefel, and C. Shen, "An investigation of the effect of pore scale flow on average geochemical reaction rates using direct numerical simulation," *Water Resources Research*, 2012.
- [31] L. Chen, Q. Kang, Q. Tang, B. A. Robinson, Y.-L. He, and W.-Q. Tao, "Pore-scale simulation of multicomponent multiphase reactive transport with dissolution and precipitation," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2015.
- [32] S. Ovaysi and M. Piri, "Pore-scale dissolution of CO_2 + SO_2 in deep saline aquifers," *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2013.
- [33] P. Gouze and L. Luquot, "X-ray microtomography characterization of porosity, permeability and reactive surface changes during dissolution," *Journal of contaminant hydrology*, 2011.
- [34] P. Cubillas, S. Köhler, M. Prieto, C. Causserand, and E. H. Oelkers, "How do mineral coatings affect dissolution rates? an experimental study of coupled CaCO_3 dissolution— CaCO_3 precipitation," *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2005.
- [35] D. Daval, I. Martinez, J. Corvisier, N. Findling, B. Goffé, and F. Guyot, "Carbonation of Ca-bearing silicates, the case of wollastonite : Experimental investigations and kinetic modeling," *Chemical Geology*, 2009.
- [36] W. H. Hundsdorfer, J. G. Verwer, and W. Hundsdorfer, *Numerical solution of time-dependent advection-diffusion-reaction equations*. Springer, 2003.
- [37] M. Jiang, Z. Xu, and Z. Zhou, "Pore-scale investigation on reactive flow in porous media considering dissolution and precipitation by lbm," *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021.
- [38] F. Golfier, *Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse-INPT, 2001.
- [39] P. Meakin and A. M. Tartakovsky, "Modeling and simulation of pore-scale multiphase fluid flow and reactive transport in fractured and porous media," *Reviews of Geophysics*, vol. 47, no. 3, 2009.
- [40] Y. Baqer and X. Chen, "A review on reactive transport model and porosity evolution in the porous media," *Environmental Science and Pollution Research*, 2022.

- [41] M. Bourbatache, O. Millet, and C. Moyne, “Upscaling diffusion–reaction in porous media,” *Acta Mechanica*, 2020.
- [42] M. K. Bourbatache, *Modélisation du transfert des ions chlorures dans les matériaux cimentaires par homogénéisation périodique*. PhD thesis, La Rochelle, 2009.
- [43] C. M. Gramling, C. F. Harvey, and L. C. Meigs, “Reactive transport in porous media : A comparison of model prediction with laboratory visualization,” *Environmental science & technology*, 2002.
- [44] C. Knutson, C. Werth, and A. Valocchi, “Pore-scale simulation of biomass growth along the transverse mixing zone of a model two-dimensional porous medium,” *Water Resources Research*, 2005.
- [45] P. C. Lichtner and Q. Kang, “Upscaling pore-scale reactive transport equations using a multiscale continuum formulation,” *Water Resources Research*, 2007.
- [46] S. Molins, D. Trebotich, G. H. Miller, and C. I. Steefel, “Mineralogical and transport controls on the evolution of porous media texture using direct numerical simulation,” *Water Resources Research*, 2017.
- [47] P. Mostaghimi, B. S. Tollit, S. J. Neethling, G. J. Gorman, and C. C. Pain, “A control volume finite element method for adaptive mesh simulation of flow in heap leaching,” *Journal of Engineering Mathematics*, 2014.
- [48] J. Donea, S. Giuliani, and J.-P. Halleux, “An arbitrary lagrangian-eulerian finite element method for transient dynamic fluid-structure interactions,” *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 1982.
- [49] C. Stoker, “Developments of the arbitrary lagrangian-eulerian method in non-linear solid mechanics,” *HC Stoker Enschedel, the Netherlands*, 1999.
- [50] Z. Xu, P. Meakin, and A. M. Tartakovsky, “Diffuse-interface model for smoothed particle hydrodynamics,” *Physical Review E*, 2009.
- [51] A. M. Tartakovsky, P. Meakin, T. D. Scheibe, and B. D. Wood, “A smoothed particle hydrodynamics model for reactive transport and mineral precipitation in porous and fractured porous media,” *Water resources research*, 2007.
- [52] A. M. Tartakovsky, G. Redden, P. C. Lichtner, T. D. Scheibe, and P. Meakin, “Mixing-induced precipitation : Experimental study and multiscale numerical analysis,” *Water Resources Research*, 2008.
- [53] L. Chen, Y.-L. He, Q. Kang, and W.-Q. Tao, “Coupled numerical approach combining finite volume and lattice boltzmann methods for multi-scale multi-physicochemical processes,” *Journal of Computational Physics*, 2013.
- [54] M. Liu and P. Mostaghimi, “Pore-scale simulation of dissolution-induced variations in rock mechanical properties,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2017.

-
- [55] M. Hoefner and H. S. Fogler, "Pore evolution and channel formation during flow and reaction in porous media," *AIChE Journal*, 1988.
- [56] L. Li, C. A. Peters, and M. A. Celia, "Upscaling geochemical reaction rates using pore-scale network modeling," *Advances in water resources*, 2006.
- [57] D. Kim, C. A. Peters, and W. Lindquist, "Upscaling geochemical reaction rates accompanying acidic co₂-saturated brine flow in sandstone aquifers," *Water Resources Research*, 2011.
- [58] A. Raoof, H. Nick, T. Wolterbeek, and C. Spiers, "Pore-scale modeling of reactive transport in wellbore cement under co₂ storage conditions," *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2012.
- [59] J. P. Nogues, J. P. Fitts, M. A. Celia, and C. A. Peters, "Permeability evolution due to dissolution and precipitation of carbonates using reactive transport modeling in pore networks," *Water Resources Research*, 2013.
- [60] Q. Kang, D. Zhang, P. C. Lichtner, and I. N. Tsimpanogiannis, "Lattice boltzmann model for crystal growth from supersaturated solution," *Geophysical Research Letters*, 2004.
- [61] S. Sullivan, F. Sani, M. Johns, and L. Gladden, "Simulation of packed bed reactors using lattice boltzmann methods," *Chemical Engineering Science*, 2005.
- [62] F. Verhaeghe, S. Arnout, B. Blanpain, and P. Wollants, "Lattice-boltzmann modeling of dissolution phenomena," *Physical Review E*, 2006.
- [63] S. D. Walsh and M. O. Saar, "Interpolated lattice boltzmann boundary conditions for surface reaction kinetics," *Physical Review E*, 2010.
- [64] A. Parmigiani, C. Huber, O. Bachmann, and B. Chopard, "Pore-scale mass and reactant transport in multiphase porous media flows," *Journal of Fluid Mechanics*, 2011.
- [65] S. Succi, E. Foti, and F. Higuera, "Three-dimensional flows in complex geometries with the lattice boltzmann method," *EPL (Europhysics Letters)*, 1989.
- [66] M. L. Stewart, A. L. Ward, and D. R. Rector, "A study of pore geometry effects on anisotropy in hydraulic permeability using the lattice-boltzmann method," *Advances in water resources*, 2006.
- [67] X. Shan and H. Chen, "Lattice boltzmann model for simulating flows with multiple phases and components," *Physical review E*, 1993.
- [68] J. Tölke, "Implementation of a lattice boltzmann kernel using the compute unified device architecture developed by nvidia," *Computing and Visualization in Science*, 2010.
- [69] A. Fakhari, Y. Li, D. Bolster, and K. T. Christensen, "A phase-field lattice boltzmann model for simulating multiphase flows in porous media : Application and comparison to experiments of co₂ sequestration at pore scale," *Advances in water resources*, 2018.

- [70] A. De Rosis, "A lattice boltzmann model for multiphase flows interacting with deformable bodies," *Advances in water resources*, 2014.
- [71] Q. Kang, D. Zhang, and S. Chen, "Immiscible displacement in a channel : simulations of fingering in two dimensions," *Advances in water resources*, 2004.
- [72] X. He, S. Chen, and G. D. Doolen, "A Novel Thermal Model for the Lattice Boltzmann Method in Incompressible Limit," *Journal of Computational Physics*, 1998.
- [73] A. Ibrahim, M. El-Amin, A. Mohammadein, and R. S. R. Gorla, "Lattice boltzmann technique for heat transport phenomena coupled with melting process," *Heat and Mass Transfer*, 2017.
- [74] L. D. Landau and E. Lifshitz, "Fluid mechanics," *Course of theoretical physics*, 1959.
- [75] P. Nithiarasu, K. Seetharamu, and T. Sundararajan, "Natural convective heat transfer in a fluid saturated variable porosity medium," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1997.
- [76] K. Besnard, *Modélisation du transport réactif dans les milieux poreux hétérogènes. Application aux processus d'adsorption cinétique non linéaire*. PhD thesis, Université Rennes 1, 2003.
- [77] M. Sahimi, *Flow and transport in porous media and fractured rock : from classical methods to modern approaches*. John Wiley & Sons, 2011.
- [78] T. Phenomena, "by rb bird, we stewart, and en lightfoot," *Transp. Phenomena, Revis. 2nd*, 1960.
- [79] P. Lichtner, "Continuum formulation of multicomponent-multi-phase reactive transport," *Reviews in Mineralogy*, 1996.
- [80] J. Rubin, "Transport of reacting solutes in porous media : Relation between mathematical nature of problem formulation and chemical nature of reactions," *Water Resour. Res.*, 1983.
- [81] P. C. Lichtner, "Continuum model for simultaneous chemical reactions and mass transport in hydrothermal systems," *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1985.
- [82] M. Pekař, "Affinity and reaction rates : Reconsideration of theoretical background and modelling results," *Zeitschrift für Naturforschung A*, 2009.
- [83] A. C. Lasaga and A. C. Lasaga, *Kinetic theory in the earth sciences*. JSTOR, 1998.
- [84] A. A. Jeschke and W. Dreybrodt, "Pitfalls in the determination of empirical dissolution rate equations of minerals from experimental data and a way out : an iterative procedure to find valid rate equations, applied to ca-carbonates and-sulphates," *Chemical Geology*, 2002.
- [85] E. Kashani, A. Mohebbi, A. E. F. Monfared, and A. Raoof, "Non-linear boundary conditions for the convection-diffusion equation in lattice boltzmann framework," *Chemical Engineering Science*, 2022.

-
- [86] D. A. Wolf-Gladrow, *Lattice-gas cellular automata and lattice Boltzmann models : an introduction*. Springer, 2004.
- [87] C. Michael, T. Daniel, and J. Thorne, “Lattice boltzmann modeling ; an introduction for geoscientists and engineers,” 2006.
- [88] A. A. Mohamad, *Lattice Boltzmann Method*. Springer London, 2011.
- [89] J. Latt, *Hydrodynamic limit of lattice Boltzmann equations*. PhD thesis, University of Geneva, 2007.
- [90] E. M. Vigen, “The lattice boltzmann method : Fundamentals and acoustics,” 2014.
- [91] G. Silva and V. Semiao, “Truncation errors and the rotational invariance of three-dimensional lattice models in the lattice boltzmann method,” *Journal of Computational Physics*, 2014.
- [92] F. Lominé, L. Scholtes, L. Sibille, and P. Poullain, “Modeling of fluid–solid interaction in granular media with coupled lattice boltzmann/discrete element methods : application to piping erosion,” *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 2013.
- [93] T. Krüger, H. Kusumaatmaja, A. Kuzmin, O. Shardt, G. Silva, and E. Vigen, *The Lattice Boltzmann Method : Principles and Practice*. Springer International Publishing, 2016.
- [94] P. L. Bhatnagar, E. P. Gross, and M. Krook, “A model for collision processes in gases. i. small amplitude processes in charged and neutral one-component systems,” *Physical review*, 1954.
- [95] E. Flekkøy, “Lattice bhatnagar-gross-krook models for miscible fluids,” *Physical Review E*, 1993.
- [96] M. Bechereau, *Élaboration de méthodes Lattice Boltzmann pour les écoulements bifluïdes à ratio de densité arbitraire*. PhD thesis, Université Paris Saclay (COmUE), 2016.
- [97] Y.-H. Qian, D. d’Humières, and P. Lallemand, “Lattice bgk models for navier-stokes equation,” *EPL (Europhysics Letters)*, 1992.
- [98] A. K. Alhilo, W. F. Hasan, and H. Farhat, “On the srt–mrt lattice boltzmann method : Validity limits of the single relaxation time for simulating single-phase flows,” *International Journal of Materials, Mechanics and Manufacturing*, vol. 8, 2013.
- [99] I. Ginzburg, F. Verhaeghe, and D. d’Humieres, “Two-relaxation-time lattice boltzmann scheme : About parametrization, velocity, pressure and mixed boundary conditions,” *Communications in computational physics*, 2008.
- [100] D. d’Humières, “Generalized lattice-boltzmann equations,” *Rarefied gas dynamics*, 1992.
- [101] A. Kuzmin and J. Derksen, “Introduction to the lattice boltzmann method,” in *LBM Workshop*, 2011.

- [102] O. BONNEFOY, “Méthode de boltzmann sur réseau.” emse.fr/~bonnefoy/Public/LBM-EMSE.pdf, 2020.
- [103] T. Inamuro, M. Yoshino, and F. Ogino, “A non-slip boundary condition for lattice boltzmann simulations,” *Physics of fluids*, 1995.
- [104] Q. Zou and X. He, “On pressure and velocity boundary conditions for the lattice boltzmann bgk model,” *Physics of fluids*, 1997.
- [105] P. Skordos, “Initial and boundary conditions for the lattice boltzmann method,” *Physical Review E*, 1993.
- [106] J. Latt, B. Chopard, O. Malaspinas, M. Deville, and A. Michler, “Straight velocity boundaries in the lattice boltzmann method,” *Physical Review E*, 2008.
- [107] A. J. Ladd, “Numerical simulations of particulate suspensions via a discretized boltzmann equation. part 1. theoretical foundation,” *Journal of fluid mechanics*, vol. 271, pp. 285–309, 1994.
- [108] G. Zhao-Li, Z. Chu-Guang, and S. Bao-Chang, “Non-equilibrium extrapolation method for velocity and pressure boundary conditions in the lattice boltzmann method,” *Chinese Physics*, 2002.
- [109] D. Wolf-Gladrow, “A lattice boltzmann equation for diffusion,” *Journal of statistical physics*, 1995.
- [110] Q. Kang, D. Zhang, S. Chen, and X. He, “Lattice Boltzmann simulation of chemical dissolution in porous media,” *Phys. Rev. E*, 2002.
- [111] Q. Kang, P. C. Lichtner, and D. Zhang, “Lattice Boltzmann pore-scale model for multi-component reactive transport in porous media,” *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 2006.
- [112] Q. Kang, P. C. Lichtner, and D. Zhang, “An improved lattice Boltzmann model for multicomponent reactive transport in porous media at the pore scale,” *Water Resources Research*, 2007.
- [113] Q. Kang, D. Zhang, and S. Chen, “Simulation of dissolution and precipitation in porous media,” *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 2003.
- [114] Q. Kang, L. Chen, A. J. Valocchi, and H. S. Viswanathan, “Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media,” *Journal of Hydrology*, 2014.
- [115] M. Taahodi, A. Mohebbi, and A. E. F. Monfared, “Lattice boltzmann study of porosity-permeability variation in different regimes of non-isothermal dissolution in porous media,” *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021.
- [116] T. Zhang, B. Shi, Z. Guo, Z. Chai, and J. Lu, “General bounce-back scheme for concentration boundary condition in the lattice-boltzmann method,” *Physical Review E*, 2012.

-
- [117] X. Meng and Z. Guo, "Boundary scheme for linear heterogeneous surface reactions in the lattice boltzmann method," *Physical Review E*, 2016.
- [118] L. Ju, C. Zhang, and Z. Guo, "Local reactive boundary scheme for irregular geometries in lattice boltzmann method," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2020.
- [119] C. Huber, B. Shafei, and A. Parmigiani, "A new pore-scale model for linear and non-linear heterogeneous dissolution and precipitation," *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2014.
- [120] M. Ahkami, A. Parmigiani, P. R. Di Palma, M. O. Saar, and X.-Z. Kong, "A lattice-boltzmann study of permeability-porosity relationships and mineral precipitation patterns in fractured porous media," *Computational Geosciences*, 2020.
- [121] H. Fazeli, R. Patel, and H. Hellevang, "Effect of pore-scale mineral spatial heterogeneity on chemically induced alterations of fractured rock : a lattice Boltzmann study," *Geofluids*, 2018.
- [122] S. G. Kim, W. T. Kim, and T. Suzuki, "Phase field modeling of directional eutectic solidification and comparison with experiments," *International Journal of Cast Metals Research*, 2003.
- [123] S. G. Kim, W. T. Kim, T. Suzuki, and M. Ode, "Phase-field modeling of eutectic solidification," *Journal of crystal growth*, 2004.
- [124] O. Bertrand, B. Binet, H. Combeau, S. Couturier, Y. Delannoy, D. Gobin, M. Lacroix, P. Le Quéré, M. Médale, J. Mencinger, *et al.*, "Melting driven by natural convection a comparison exercise : first results," *International Journal of Thermal Sciences*, 1999.
- [125] L. Tan and N. Zabarar, "A level set simulation of dendritic solidification with combined features of front-tracking and fixed-domain methods," *Journal of Computational Physics*, 2006.
- [126] L.-Q. Chen, "Phase-field models for microstructure evolution," *Annual review of materials research*, 2002.
- [127] Z. Chen, C. Shu, L. Yang, X. Zhao, and N. Liu, "Phase-field-simplified lattice boltzmann method for modeling solid-liquid phase change," *Physical Review E*, 2021.
- [128] F. De Sousa, N. Mangiavacchi, L. Nonato, A. Castelo, M. F. Tomé, V. Ferreira, J. Cuminato, and S. McKee, "A front-tracking/front-capturing method for the simulation of 3d multi-fluid flows with free surfaces," *Journal of Computational Physics*, 2004.
- [129] S. Tanguy, *Développement d'une méthode de suivi d'interface. Applications aux écoulements diphasiques*. PhD thesis, Université de Rouen, 2004.
- [130] N. Thürey, C. Körner, and U. Rüde, "Interactive free surface fluids with the lattice boltzmann method," *Technical Report05-4. University of Erlangen-Nuremberg, Germany*, 2005.
- [131] J. E. Pilliod Jr and E. G. Puckett, "Second-order accurate volume-of-fluid algorithms for tracking material interfaces," *Journal of Computational Physics*, 2004.

- [132] M. Rudman, "Volume-tracking methods for interfacial flow calculations," *International journal for numerical methods in fluids*, 1997.
- [133] H. Alihussein, M. Geier, and M. Krafczyk, "A parallel coupled lattice boltzmann-volume of fluid framework for modeling porous media evolution," *Materials*, 2021.
- [134] Y.-T. Kim, N. Goldenfeld, and J. Dantzig, "Computation of dendritic microstructures using a level set method," *Physical Review E*, 2000.
- [135] S. Osher, R. Fedkiw, and K. Piechor, "Level set methods and dynamic implicit surfaces," *Appl. Mech. Rev.*, 2004.
- [136] X. Li, H. Huang, and P. Meakin, "Level set simulation of coupled advection-diffusion and pore structure evolution due to mineral precipitation in porous media," *Water Resources Research*, 2008.
- [137] Z. Wang, J. Yang, B. Koo, and F. Stern, "A coupled level set and volume-of-fluid method for sharp interface simulation of plunging breaking waves," *International Journal of Multiphase Flow*, 2009.
- [138] R. Scardovelli and S. Zaleski, "Direct numerical simulation of free-surface and interfacial flow," *Annual review of fluid mechanics*, 1999.
- [139] E. Kashani, A. Mohebbi, A. E. F. Monfared, and A. Raoof, "Lattice boltzmann study of dissolution in porous media : Comparison of vop with vof-curved boundary coupling," *Journal of Petroleum Science and Engineering*, p. 110754, 2022.
- [140] M. Griebel and M. A. Schweitzer, *Meshfree methods for partial differential equations II*. Springer, 2005.
- [141] D. Yu and A. Ladd, "A numerical simulation method for dissolution in porous and fractured media," *Journal of Computational Physics*, 2010.
- [142] "The palabos project." <https://palabos.unige.ch/>.
- [143] J. Latt and B. Chopard, "Lattice boltzmann method with regularized pre-collision distribution functions," *Mathematics and Computers in Simulation*, 2006.
- [144] J. Latt, O. Malaspinas, D. Kontaxakis, A. Parmigiani, D. Lagrava, F. Brogi, M. B. Belgacem, Y. Thorimbert, S. Leclaire, S. Li, *et al.*, "Palabos : parallel lattice boltzmann solver," *Computers & Mathematics with Applications*, 2021.
- [145] J. Latt, "Choice of units in lattice boltzmann simulations," *Freely available online at [http://lmethod.org/_media/howtos : lbunits. pdf](http://lmethod.org/_media/howtos%3Albunits.pdf)*, 2008.
- [146] J.-M. Vanson, *Interdépendence entre géométrie, adsorption et transport dans les matériaux à porosité hiérarchique*. PhD thesis, Paris Sciences et Lettres (ComUE), 2016.
- [147] H. Liang, J. Xu, J. Chen, H. Wang, Z. Chai, and B. Shi, "Phase-field-based lattice boltzmann modeling of large-density-ratio two-phase flows," *Physical Review E*, 2018.

-
- [148] J. Latt, “Technical report : How to implement your ddq dynamics with only q variables per node (instead of 2q),” *Tufts University*, 2007.
- [149] J. P. Morris, P. J. Fox, and Y. Zhu, “Modeling low reynolds number incompressible flows using sph,” *Journal of computational physics*, 1997.
- [150] J. Crank, *The mathematics of diffusion*. Oxford university press, 1979.
- [151] D. J. Holdych, D. R. Noble, J. G. Georgiadis, and R. O. Buckius, “Truncation error analysis of lattice boltzmann methods,” *Journal of Computational Physics*, 2004.
- [152] C. Kothandaraman, *Fundamentals of heat and mass transfer*. New Age International, 2006.
- [153] S. D. C. Walsh and M. O. Saar, “Interpolated lattice Boltzmann boundary conditions for surface reaction kinetics,” *Phys. Rev. E*, 2010.
- [154] Y. Zhang, F. Jiang, and T. Tsuji, “Influence of pore space heterogeneity on mineral dissolution and permeability evolution investigated using lattice boltzmann method,” *Chemical Engineering Science*, 2022.
- [155] H. Carslaw and J. Jaeger, “Conduction of heat in solids : Oxford univ. press,” 1959.
- [156] P. Mostaghimi, M. Liu, and C. H. Arns, “Numerical simulation of reactive transport on micro-ct images,” *Mathematical Geosciences*, 2016.
- [157] N. S. Martys and H. Chen, “Simulation of multicomponent fluids in complex three-dimensional geometries by the lattice boltzmann method,” *Physical review E*, 1996.
- [158] Q. Kang, D. Zhang, and S. Chen, “Unified lattice boltzmann method for flow in multiscale porous media,” *Physical Review E*, 2002.
- [159] Z. Xu and X. Zhou, “Pore-scale study of the thermochemical process in porous media with immiscible phase by lattice boltzmann method,” *Journal of Heat Transfer*, 2021.
- [160] D. Zhang, S. Li, and Y. Li, “Pore-scale investigation on the effect of gas-liquid phase separation on reactive flow in a horizontal rough fracture using the lattice boltzmann method,” *Chemical Engineering Science*, 2021.
- [161] L. Li, R. Mei, and J. F. Klausner, “Lattice boltzmann models for the convection-diffusion equation : D2q5 vs d2q9,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2017.
- [162] F. P. Glasser, J. Marchand, and E. Samson, “Durability of concrete—degradation phenomena involving detrimental chemical reactions,” *Cement and Concrete Research*, 2008.
- [163] Q. T. Phung, N. Maes, E. Jacobs, D. Jacques, G. De Schutter, and G. Ye, “Insights and issues on the correlation between diffusion and microstructure of saturated cement pastes,” *Cement and Concrete Composites*, 2019.
- [164] M. K. Bourbatache, F. Bennai, C.-F. Zhao, O. Millet, and A. Ait-Mokhtar, “Determination of geometrical parameters of the microstructure of a porous medium : Application to cementitious materials,” *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 2020.

- [165] K. Bourbatache, O. Millet, A. Aït-Mokhtar, and O. Amiri, “Chloride transfer in cement-based materials. part 2. experimental study and numerical simulations,” *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 2013.
- [166] E. Larive, *Etude expérimentale des roches à très faible perméabilité par la mise en œuvre d’un perméamètre de précision*. Institut des sciences de la terre de l’eau et de l’espace de Montpellier, 2002.
- [167] M. B. Clennell, “Tortuosity : a guide through the maze,” *Geological Society, London, Special Publications*, 1997.
- [168] P. Adler, “Porous media : Geometry and transports butterworth,” 1992.
- [169] B. Ghanbarian, A. G. Hunt, R. P. Ewing, and M. Sahimi, “Tortuosity in porous media : a critical review,” *Soil science society of America journal*, 2013.
- [170] F. J. Valdés-Parada, M. L. Porter, and B. D. Wood, “The role of tortuosity in upscaling,” *Transport in porous media*, 2011.
- [171] P. C. Carman, “Fluid flow through granular beds,” *Chemical Engineering Research and Design*, 1997.
- [172] M. Matyka, A. Khalili, and Z. Koza, “Tortuosity-porosity relation in porous media flow,” *Physical Review E*, 2008.
- [173] A. Koponen, M. Kataja, and J. Timonen, “Tortuous flow in porous media,” *Physical Review E*, 1996.
- [174] A. Ebrahimi Khabbazi, J. Hinebaugh, and A. Bazylak, “Determining the impact of rectangular grain aspect ratio on tortuosity–porosity correlations of two-dimensional stochastically generated porous media,” *Science Bulletin*, 2016.
- [175] A. Nabovati and A. Sousa, “Fluid flow simulation in random porous media at pore level using lattice boltzmann method,” in *New trends in fluid mechanics research*, pp. 518–521, Springer, 2007.
- [176] A. Duda, Z. Koza, and M. Matyka, “Hydraulic tortuosity in arbitrary porous media flow,” *Physical Review E*, 2011.
- [177] M. Espinoza-Andaluz, V. Velasco-Galarza, and A. Romero-Vera, “On hydraulic tortuosity variations due to morphological considerations in 2d porous media by using the lattice boltzmann method,” *Mathematics and Computers in Simulation*, 2020.
- [178] M. Espinoza-Andaluz, J. Pagalo, J. Ávila, and J. Barzola-Monteses, “An alternative methodology to compute the geometric tortuosity in 2d porous media using the a-star pathfinding algorithm,” *Computation*, 2022.
- [179] R. I. Al-Raoush and I. T. Madhoun, “Tort3d : A matlab code to compute geometric tortuosity from 3d images of unconsolidated porous media,” *Powder Technology*, 2017.

-
- [180] K. Bourbatache, O. Millet, and A. Aît-Mokhtar, “Multi-scale periodic homogenization of ionic transfer in cementitious materials,” *Heat and Mass Transfer*, vol. 52, no. 8, pp. 1489–1499, 2016.
- [181] S. Molins, C. Soullaine, N. I. Prasianakis, A. Abbasi, P. Poncet, A. J. Ladd, V. Starchenko, S. Roman, D. Trebotich, H. A. Tchelepi, *et al.*, “Simulation of mineral dissolution at the pore scale with evolving fluid-solid interfaces : Review of approaches and benchmark problem set,” *Computational Geosciences*, 2020.
- [182] H. Davarzani, M. Marcoux, and M. Quintard, “Theoretical predictions of the effective thermodiffusion coefficients in porous media,” *International journal of heat and mass transfer*, 2010.
- [183] J. T. Gostick, Z. A. Khan, T. G. Tranter, M. D. Kok, M. Agnaou, M. Sadeghi, and R. Jervis, “Porespy : A python toolkit for quantitative analysis of porous media images,” *Journal of Open Source Software*, 2019.
- [184] W. Rasband, “Us national institutes of health,” <http://imagej.nih.gov/ij/>, 2011.
- [185] D. L. Parkhurst and C. A. J. Appelo, *Description of input and examples for PHREEQC version 3—A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations*, 2013.
- [186] S. R. Charlton and D. L. Parkhurst, “Modules based on the geochemical model phreeqc for use in scripting and programming languages,” *Computers & Geosciences*, vol. 37, pp. 1653–1663, 2011.
- [187] S. Chapman and T. G. Cowling, *The mathematical theory of non-uniform gases : an account of the kinetic theory of viscosity, thermal conduction and diffusion in gases*. Cambridge university press, 1990.

Titre : Modélisation du transport par advection diffusion couplé à une réaction de dissolution dans les milieux poreux

Mots clés : LBM ; Transport de masse ; Réaction de dissolution ; Porosité évolutive ; Perméabilité

Résumé : Dans ce travail, un code de calcul basé sur la Lattice Boltzmann Method (LBM) a été implémenté dans PArallel LAttice BOLTzman Solver (PALABOS) pour étudier les changements de géométrie induits par la dissolution d'un minéral lors du transport de masse dans différents types de milieux poreux. Pour ce faire, différentes conditions aux limites réactives ont été analysées et testées afin de construire un modèle approprié.

Ce modèle a été implémenté et validé en comparant les résultats obtenus avec les résultats de la littérature. Ainsi, on a d'abord simulé la dissolution d'une fracture simple et une inclusion circulaire. Les simulations ont été réalisées pour une large gamme de régime de transport et de réaction en variant les nombres Péclet (Pe) et Damköhler (Da).

Les résultats montrent des changements de géométrie non-uniformes dans les deux cas pendant la dissolution. Ils montrent aussi que l'évolution des propriétés macroscopiques du milieu est fortement liée au régime de dissolution. Pour l'inclusion circulaire l'anisotropie a été quantifiée par le tenseur de tortuosité. L'étude est étendue au transport réactif dans un milieu à répétition séquentielle de plusieurs cellules élémentaires puis à des milieux aléatoires et complexes. Les résultats montrent que l'évolution des propriétés du milieu, telles que la porosité, la perméabilité et la tortuosité, est liée non seulement au régime de dissolution mais aussi à sa géométrie à l'échelle des pores. On observe également les régimes de dissolution uniforme, canalisée, frontale, ramifiée selon les valeurs des nombres adimensionnels Pe et Da.

Title : Modeling of transport by advection diffusion coupled to a dissolution reaction in porous media

Keywords : LBM; mass transport; dissolution reaction; evolving porosity; permeability.

Abstract : In this work, a numerical code based on the Lattice Boltzmann Method (LBM) was implemented in PArallel LAttice BOLTzman Solver (PALABOS) to study the geometry changes induced by the dissolution of a mineral during mass transport in different types of porous media. For this purpose, different reactive boundary conditions were analysed and tested in order to build an appropriate numerical model.

This model was implemented and validated by comparing the results obtained with previous studies. We first simulated the geometries of a single fracture and an elementary cell with circular inclusion. The simulations were performed for a wide range of transport and reaction regimes with varying Péclet (Pe) and Damköhler (Da) numbers.

The results show non-uniform deformations in both cases during dissolution. They also show that the evolution of the macroscopic properties of the medium is strongly related to the dissolution regime. For the circular inclusion the anisotropy was quantified by the tortuosity tensor. We extended the medium to a sequential repetition of several elementary cells and then to random and complex media. The results show that the evolution of the macroscopic properties of the medium is related not only to the dissolution regime but also to its geometry at the pore scale. We observe also the dissolution regimes uniform, channelled, frontal, ramified dissolution according to Pe and Da numbers.

