TRANSPORT REACTIF DANS DES MILIEUX SATURES HETEROGENES

ETUDE DE L'EFFET DE L'ADSORPTION NON LINEAIRE

A. Beaudoin, S. Oukfif, H.Q. Wang et A. Benamar

LMPG – Université du Havre 25, Rue Philippe Lebon, BP 1123 76058 Le Havre Cedex anthony.beaudoin@univ-lehavre.fr

RÉSUMÉ. Nous présentons une étude sur l'effet de l'adsorption non linéaire sur le transport de solutés dans des milieux poreux saturés homogènes et hétérogènes. Cette étude a été réalisée à l'aide des simulations de Monte Carlo. Pour chaque simulation de Monte Carlo, nous avons deux problèmes à résoudre. Pour le problème de l'écoulement, l'équation de conservation couplée à la loi de Darcy, est résolue sur une grille régulière à l'aide d'une méthode de volumes finis. Pour le problème de transport, l'équation de transport est résolue à l'aide d'une méthode particulaire. Cette méthode lagrangienne consiste à discrétiser le champ de concentration en un nuage de particules définies par une position et un poids. Le problème de transport revient alors à calculer la trajectoire et l'évolution temporelle du poids de ces particules.

ABSTRACT. The present study is devoted to the simulation of non linear sorbing plume transport in homogeneous and heterogeneous saturated porous media. This study was performed by means of Monte Carlo simulations. For each Monte Carlo simulation, two problems have to be resolved. For the flow problem, the mass conservation equation, coupled with Darcy's law, is solved on a regular grid by means of a finite volume method. For the transport problem, the advection – dispersion equation is solved by means of a particle method. This langrangian method is based on a discretization of concentration field with particles defined by a position and a weight. At each time step, the transport problem is then resolved by evaluating the new position and the new weight of particles.

MOTS-CLÉS : sorption non linéaire, milieux poreux saturés hétérogènes, méthode particulaire, méthode de vitesse de diffusion.

KEYWORDS: non linear sorption, heterogeneous saturated porous media, particle method, diffusion velocity method.

AUGC 2006, pages 1 à 8

1. Introduction

Le transport réactif d'un soluté dans un sol saturé est le résultat de nombreux processus dont les trois principaux sont la convection, la dispersion et l'adsorption (Bear, 1972). Des études de terrain ont montré que l'adsorption est généralement un phénomène instantané, décrit par l'isotherme de sorption non linéaire de Freundlich. Ces études de terrain ont aussi montré que le milieu poreux naturel est caractérisé par une forte hétérogénéité. Bien que cette hétérogénéité concerne de nombreux paramètres physiques du milieu poreux naturel, l'hétérogénéité de la conductivité hydraulique semble jouer le rôle le plus important dans la migration du soluté. L'hétérogénéité de la conductivité hydraulique entraîne une variabilité spatiale de la vitesse d'écoulement de l'eau, qui crée des chemins préférentiels pour le soluté. Cela entraîne un étalement du soluté qui s'additionne à celui provoqué par la dispersion locale, due à la microstructure du milieu poreux naturel. Cet étalement est appelé macrodispersion. Il existe très peu d'études sur l'effet de l'adsorption non linéaire sur le transport d'un soluté dans un milieu poreux saturé hétérogène (Abulaban et al., 1998 et 2000). Nous proposons de réaliser ce type d'études à l'aide d'une approche stochastique consistant à générer plusieurs réalisations pour lesquelles on résout un problème d'écoulement et un problème de transport. Les résultats finaux sont obtenus à partir de moyennes sur les expériences ainsi réalisées. C'est ce qu'on appelle les simulations de Monte Carlo (Rubin, 1990). Pour le problème d'écoulement, on suppose que le régime d'écoulement est permanent. Ce problème revient alors à résoudre l'équation de conservation couplée à la loi de Darcy. Ces deux équations sont discrétisées à l'aide d'une méthode de volumes finis sur une grille régulière. Sur cette grille, on impose des conditions aux limites : deux charges hydrauliques sur ses côtes gauche et droit, et deux conditions de flux nul sur ses côtés haut et bas. La méthode de volumes finis permet de respecter le critère de conservation de la masse sur chaque élément de la grille. Le champ aléatoire de perméabilité K est supposé caractériser par une distribution logarithmique Y = ln (K)définie par une moyenne m_v et une fonction de covariance C_v. Le champ aléatoire de perméabilité est généré avec une simulation spectrale appelée Fourier Integral Method (Yao, 2004). L'hétérogénéité du milieu concerne également le coefficient de sorption K_f. Des études ont montré que la variabilité de ce coefficient est reliée à celle de la perméabilité. Le champ de coefficient de sorption Kf est donc caractérisé par une distribution logarithmique W = ln (K_f) = β ln K = β Y avec β une constante (Abulaban et al., 1998 et 2000). Pour le problème de transport, l'équation de transport est résolue à l'aide d'une méthode lagrangienne, appelée méthode particulaire. Cette méthode consiste à discrétiser le champ de concentration en un nuage de particules définies par une position et un poids et à suivre l'évolution temporelle de la position et du poids de ces particules. L'avantage de cette méthode lagrangienne est de ne pas introduire de diffusion numérique pour un problème convectif pure (Cottet et al., 2000). Pour traiter le terme de dispersion de l'équation du transport, nous avons choisi la méthode dite vitesse de dispersion. Cette méthode permet de transformer l'équation de convection dispersion en une pure équation de convection. On retrouve ainsi le principal avantage des méthodes lagrangiennes : pas de diffusion numérique pour des problèmes de convection pure (Zimmermann *et al.*, 2001 et Beaudoin *et al.*, 2003). La deuxième raison est que l'extension 3D de cette méthode est directe. L'étude de l'effet de l'adsorption non linéaire sur le transport de soluté dans des milieux poreux saturés hétérogènes en 3D est donc facilement faisable avec cette méthode. Le couplage entre l'écoulement et le transport est obtenu en déterminant la vitesse d'écoulement d'une particule à partir du champ d'écoulement calculé sur la grille avec une fonction d'interpolation. Dans ce papier, nous présenterons uniquement la résolution du problème de transport. Seuls, les résultats obtenus pour des milieux poreux saturés homogènes seront présentés dans ce papier. L'étude dans des milieux poreux hétérogènes est en cours.

2. Problème de transport

2.1. Equation de convection - dispersion

La migration d'un soluté adsorbant dans un milieu poreux saturé peut être décrite par l'équation de transport suivante :

$$\frac{\partial C(\mathbf{x},t)}{\partial t} + \nabla \left[(C(\mathbf{x},t)U(\mathbf{x},t) - \nabla (D(\mathbf{x},t)\nabla U(\mathbf{x},t)) + \frac{\rho}{\Phi} \frac{\partial S}{\partial t} = 0 \right]$$
[1]

où U(x, t) et C(x, t) représentent la vitesse d'écoulement et la concentration du soluté dans l'eau. S désigne la concentration du soluté adsorbée par les grains du sol, définie comme étant le rapport entre la masse du soluté par unité de masse solide. ρ est la densité sèche du milieu poreux et Φ la porosité effective. D est le tenseur de dispersion dynamique, donné par le modèle de Scheidegger :

$$\stackrel{=}{D} = \begin{pmatrix} D_{xx} & D_{xy} \\ D_{xy} & D_{yy} \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} D_{xx} = (\alpha_T | U | + D_m) + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{U_x^2}{|U|} \\ D_{xy} = (\alpha_L - \alpha_T) \frac{U_x U_y}{|U|} \\ D_{yy} = (\alpha_T | U | + D_m) + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{U_y^2}{|U|} \end{cases}$$

$$[2]$$

où α_L et α_T représentent respectivement la dispersivité longitudinale et transversale. U_x et U_y sont les composantes du vecteur vitesse locale. La concentration S est reliée à la concentration C par l'isotherme non linéaire de Freundlich :

 $S = K_f C^n$ ^[3]

où K_f et n désignent la capacité de sorption et le coefficient de Freundlich. En remplaçant [3] dans [1], on obtient :

$$\frac{\partial C_{\mathrm{T}}(\mathbf{x},t)}{\partial t} + \nabla \left(\frac{C_{\mathrm{T}}(\mathbf{x},t)}{R(C,x)} U(\mathbf{x},t) - \nabla \left(\frac{D(\mathbf{x},t)}{R(C,x)} \right) \nabla U(\mathbf{x},t) \right) = 0 \text{ avec } C_{\mathrm{T}}(\mathbf{x},t) = R(C,x)C(\mathbf{x},t) \quad [4]$$

où C_T(x, t) est la concentration totale. R(C,x) désigne le coefficient de retard :

$$R(C,x) = 1 + \frac{\rho}{\Phi} K_f C^{n-1}$$
^[5]

2.2 Méthodes particulaires

La méthode particulaire est une méthode lagrangienne qui consiste à discrétiser le champ de concentration C(x, t) en un nuage de particules P_i définies par une position $X_i(t)$ et un poids $\Omega_i(t)$. A partir de ce nuage de particules, une approximation du champ de concentration C_{num} peut être donnée :

$$C_{\text{num}}(x,t) = \sum_{i} \Omega_{i}(t) \zeta_{\varepsilon}(x-X_{i}) \text{ avec } \Omega_{i}(t) = \int_{P_{i}} C(x,t) ds \approx C(X_{i},t) dx dy$$
[6]

La forme générale de la fonction ζ_{ϵ} est donnée par :

$$\zeta_{\varepsilon}(\mathbf{x}) = \frac{1}{\varepsilon^2} \zeta \left(\frac{\mathbf{x}}{\varepsilon} \right)$$
[7]

où ε est un paramètre de régularisation, proportionnel à la taille des particules. La partie dispersive de l'équation de transport [4] est traitée avec la méthode de vitesse de dispersion qui permet de transformer cette équation en une équation de convection pure :

$$\frac{\partial C_{\mathrm{T}}(\mathbf{x},t)}{\partial t} + \nabla \left[\left(U_{\mathrm{R}}(\mathbf{x},t) + U_{\mathrm{Rd}}(\mathbf{x},t) \right) C_{\mathrm{T}}(\mathbf{x},t) \right] = 0$$
[8]

 $U_R(x, t)$ est la vitesse d'écoulement affectée du coefficient de retard. L'expression de la vitesse de dispersion $U_{Rd}(x, t)$ est obtenue en identifiant l'équation [8] avec l'équation [4] :

$$U_{Rd}(x,t) = -D_R(x,t) \frac{\nabla C_T(x,t)}{C_T(x,t)} \text{ avec } \nabla C_T(x,t) = \sum_i \Omega_i(t) \nabla \zeta_{\varepsilon}(x-X_i)$$
[9]

Le terme $\nabla \zeta_{\varepsilon}$ est obtenu par une dérivation directe de la fonction ζ_{ε} . En représentation lagrangienne, la résolution de l'équation de transport [8] revient à résolute un système de deux équations :

$$\begin{cases} \frac{dx_{i}(t)}{dt} = U_{R}(x_{i},t) + U_{Rd}(x_{i},t) \\ \frac{d\Omega_{i}(t)}{dt} = 0 \end{cases}$$
[11]

L'équation de trajectoire du système d'équations précédent a été résolue à l'aide d'un schéma en temps de Runge Kutta d'ordre 4.

3. Simulations numériques

3.1. Procédure

On considère une injection, ponctuelle et instantanée, dans un domaine supposé infini en 2D. Deux cas sont considérés : milieux homogènes ou hétérogènes. Pour le problème de transport, la masse injectée de soluté est de 200 g dans les deux cas. Dans le cas homogène, la capacité de sorption est fixée à $K_f = 0.2 (l/g)^n$. Dans le cas hétérogène, la constante β est fixée à -0.5. Dans les deux cas, les dispersivités longitudinale et transversale sont $\alpha_L = 0.1$ m et $\alpha_T = 0.02$ m. Pour le coefficient de Freundlich, 4 valeurs ont été retenues n = 0.7; 0.8 ; 0.9 et 1. La densité du sol est $\rho = 1.75$ g/ml. Pour le problème d'écoulement, dans le cas homogène, la vitesse d'écoulement est $U_x = 1$ m/jour. Dans le cas hétérogène, le champ de perméabilité est généré pour des valeurs de variance $\sigma_{\ln k} = 0.25$; 0.5 ; 0.75 et 1 et des valeurs de longueur de corrélation $\lambda_{\ln k} = 5$ et 10. Le gradient hydraulique est fixé à 0.035. Dans les deux cas, la porosité effective est $\phi = 0.35$. L'interprétation des simulations est obtenue à partir des courbes temporelles de certaines grandeurs physiques :

Masse :

$$M(t) = \oint \int \int C(x,t) dS \approx \Phi \sum_{i} C(x_{i},t) dx dy \qquad [11]$$

Variance spatiale longitudinale :

$$\sigma_{\bar{x}}^{2}(t) = \frac{\phi}{M(t)} \int C(x,t) \left(x - X_{m}(t)\right)^{2} dS \approx \frac{\Phi}{M(t)} \sum_{i} C(x_{i},t) \left(x_{i} - X_{m}(t)\right)^{2} dx dy$$
[14]

Coefficient d'asymétrie :

$$F_{x}(t) = \frac{\phi}{M(t)} \frac{1}{\sigma_{x}^{3/2}(t)} \int C(x,t) (x - X_{m}(t))^{\beta} dS$$

$$\approx \frac{\phi}{M(t)} \frac{1}{\sigma_{x}^{3/2}(t)} \sum_{i} C(x_{i},t) (x_{i} - X_{m}(t))^{\beta} dxdy$$
[16]

Ce coefficient d'asymétrie permet de caractériser la forme du panache. Si $F_x(t) = 0$, le panache est à répartition symétrique autour du centre de masse. Si $F_x(t) < 0$, le panache est à répartition dissymétrique et penchée vers la gauche. Si $F_x(t) > 0$, alors elle est penchée vers la droite.

3.2. Résultats

Les résultats obtenus ne sont pas tous présentés. Seuls, les résultats concernant le cas d'un milieu homogène sont présentés. Sur la fig. 1-A, sont représentées les courbes de restitution pour différentes valeurs du coefficient de Freundlich. Le cas de l'isotherme linéaire (n = 1) donne une plus forte concentration de soluté dans l'eau ou une plus faible concentration de soluté présent sur les grains du sol. On observe également un temps d'arrivée sur le point d'observation plus faible pour n = 1. Cela s'explique par un coefficient de retard plus faible pour n = 1. On constate aussi que la courbe de restitution est symétrique pour n = 1. Par contre pour les autres valeurs de n, la dissymétrie de la courbe de restitution augmente avec la diminution du coefficient de Freundlich. Dans les cas $n \neq 1$, le coefficient de retard n'est pas constant. Les particules dissoutes dans l'eau vont donc avancer avec une vitesse d'écoulement réduite différente. Sur la fig. 1-B, on observe que la masse de soluté dans l'eau est constante pour n = 1. Cela implique que le coefficient de retard ne dépend pas de la concentration du soluté dans l'eau. Dans les cas d'une isotherme non linéaire (n = 0,7; 0,8 et 0,9), la masse de soluté présent dans l'eau diminue avec le coefficient de Freundlich. On constate également que cette masse de soluté présent dans l'eau diminue avec le temps. Cela est dû au fait que le coefficient de retard est inversement proportionnel à la concentration du soluté dans l'eau. Sous l'effet de la dispersion, le panache de soluté s'étale. La première conséquence est une diminution de la concentration du soluté dans l'eau. Cette conséquence induit une augmentation du coefficient de retard qui provoque une augmentation de la masse de soluté adsorbé sur les grains du sol. Sur la fig. 2-A, est représentée la variance spatiale longitudinale en fonction du temps pour différentes valeurs du coefficient de Freundlich. On remarque que l'évolution temporelle de la variance spatiale longitudinale suit une loi linéaire dans le cas d'une isotherme linéaire (n = 1). Pour les autres cas, nous obtenons une loi non linéaire. Cette non linéarité est d'autant plus importante que le coefficient de Freundlich est faible. Sur la fig. 2-B, le coefficient d'asymétrie est tracé en fonction du temps pour différentes valeurs du coefficient de Freundlich. On observe que pour une isotherme linéaire (n = 1) ce

coefficient d'asymétrie est proche de zéro. La distribution spatiale du panache est donc symétrique, d'où la forme symétrique de la courbe de restitution. Dans les cas d'une isotherme non linéaire (n=0,7; 0,8 et 0,9), le coefficient d'asymétrie est négatif. On perd donc la symétrie de la distribution spatiale du panache. On sait également que cette distribution penche vers la gauche. On note également que ce coefficient d'asymétrie est d'autant plus élevé que le coefficient de Freundlich est faible. Cependant, on observe que le coefficient d'asymétrie tend vers zéro à long terme dans les cas d'une isotherme non linéaire. Ce comportement est dû à l'atténuation des gradients de concentration provoqué par l'étalement du panache.



Figure 1. Courbe de restitution au point de coordonnées (500, 100) et courbe temporelle de la masse de soluté présent dans l'eau (B) pour différentes valeurs du coefficient de Freundlich.



Figure 2. Courbes temporelles de la variance spatiale longitudinale (A) et du coefficient d'asymétrie (B) pour différentes valeurs du coefficient de Freundlich.

4. Conclusion

Dans ce papier, nous avons présenté uniquement les résultats concernant le transport réactif de solutés dans des milieux poreux saturés homogènes en deux dimensions. Ces résultats ont été comparés avec ceux d'Abulaban *et al.*. L'étude du transport réactif de solutés dans des milieux poreux saturés hétérogènes est en cours. Cette étude devrait permettre de répondre à une question : les observations faites dans le cas de milieux homogènes sont-elles toujours valables dans le cas de milieux hétérogènes ? Une extension du modèle présenté en trois dimensions est aussi en cours de réalisation. Cette extension 3D devrait permettre de voir si les observations faites en 2D sont valables en 3D.

5. Bibliographie

Abulaban A., Nieber J.L., Misra D., «Modeling the effects of non linear equilibrium sorption on the transport of solute plumes in saturated homogeneous porous media», *Advances In Water Resources*, vol. 21, 1998, p. 487-498.

Abulaban A., Nieber J.L., «Modeling the effects of non linear equilibrium sorption on the transport of solute plumes in saturated heterogeneous porous media», *Advances In Water Resources*, vol. 23, 2000, p. 893-905.

Beaudoin A., Huberson S., Rivoalen E., «Simulation of anisotropic diffusion by means of diffusion velocity method», *Journal of Computational Physics*, vol. 186, 2003, p. 122-135.

Bear J., Dynamics of fluids in porous media, American Elsevier Publishing Company, 1972.

Cottet G.H., Koumoutsakos P., Vortex Methods Theory and Practice, Cambridge University Press, 2000.

Zimmermann S., Koumoutsakos P., Kinzelbach W., «Simulation of pollutant transport using a particle method», *Journal of Computational Physics*, vol. 173, 2001, p. 322-374.

Yao T., «Reproduction of the mean, variance and variogram model in spectral simulation», *Mathematical Geology*, vol. 36, 2004, p. 487-505.

Rubin Y., «Stochastic modeling of macro dispersion in heterogeneous porous media», *Water Resources Research*, vol. 26, 1990, p. 133-141.