



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Ecole Nationale Supérieure de Géologie de Nancy

Laboratoire Environnement, Géomécanique et Ouvrages

Ecole Doctorale RP2E

THESE

Présentée en vue de l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'I.N.P.L.

Spécialité:

Génie civil - Hydrosystèmes - Géotechnique

par

Tatiana ILINA

Modèles pseudo-diphasiques de transport facilité des colloïdes en milieux faiblement perméables

Composition du jury:

Azita AHMADI	Rapporteur
Renaud DELANNAY	Rapporteur
HuaQing WANG	Rapporteur
Christian MOYNE	
Mikhail PANFILOV	Directeur de thèse
Michel BUES	Co-directeur de thèse
Yury STEPANYANTS	
Irina PANFILOVA	

Date de soutenance: le 08 janvier 2007

AVANT PROPOS

Je voudrais tout d'abord adresser mes remerciements à Monsieur Mikhail Panfilov, directeur de ma thèse, pour ses connaissances scientifique, pour sa direction et pour m'avoir inspiré l'idée de venir faire mes études de troisième cycle en France.

Je remercie aussi Monsieur Michel Buès, co-directeur de ma thèse, pour m'avoir donné la possibilité de commencer ma fin de cursus à l'ENSG (INPL) et pour ses conseils.

Je suis reconnaissant à Madame Azita Ahmadi et à Messieurs Renaud Delannay et HuaQiung Wang pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire ainsi qu'à Madame Irina Panfilova et à Messieurs Christian Moyne et Yury Stepanyants pour avoir accepté de participer au jury.

Je tiens aussi à remercier tout le personnel du LAEGO qui m'a apporté un accueil amical.

Je voudrais exprimer mes remerciements à Vladimir Lobaev pour son amitié et son soutien tout le long de mon séjour à Nancy, ainsi qu'à Roman "Bendera" pour sa présence surtout pendant mon DEA.

Je n'oublie pas les deux Sergueys, Jon bruyant, Seb, Frank et tous les autres thésards et maîtres de conférences avec leurs sourires brillants et tous les autres amis que j'ai trouvé ici pour leurs amitié (je vous demande de m'excusez pour la redite), bonne humeur et aide (Hi gars !! ;)).

En particulier, je voudrais dire merci à Fabrice Golfier pour son aide 'administrative' outre pour le fait qu'il est un bon ami.

Je remercie tous mes amis qui sont resté en Russie ou sont parti à l'étranger, mais qui gardent toujours un contacte amical avec moi :).

Et aussi je n'oublie pas ma famille qui m'a apporté son soutien et son amour et qui m'apprirent à prendre mes décisions d'une façon indépendante.

Sommaire

1	Modélisation du transport des colloïdes en milieux poreux	13
1.1	Description des colloïdes	14
1.2	Mécanismes principaux d'accélération des fines	18
1.2.1	Mécanisme d'exclusion par taille	18
1.2.2	Phénomène de la chromatographie hydrodynamique	19
1.2.3	Autres mécanismes pour des particules chargées	20
1.3	Modèles de transport des colloïdes	22
1.3.1	Modèle phénoménologique d'advection-dispersion avec piègeage	22
1.3.2	Modèle probabiliste markovien de Ferrara, Marseguerra, Zio & Patelli	24
1.3.3	Modèle semi-empirique de Sharma & Yortsos	26
1.3.4	Modèle semi-empirique de Santos & Bedrikovetsky	27
1.4	Facteur d'augmentation de vitesse : données expérimentales	29
1.4.1	Expériences in situ	29
1.4.2	Essais de laboratoire (écoulement à travers une colonne)	30
2	Approche monophasique. Détermination théorique du facteur d'augmentation de vitesse	32
2.1	Modèle stochastique du milieu poreux	34
2.1.1	Structure d'un réseau capillaire	34
2.1.2	Propriétés d'un milieu aléatoire stationnaire	36
2.2	Génération d'un milieu poreux aléatoire : méthode des bandes tournantes	39
2.2.1	Principe de la méthode	39
2.2.2	Liaison entre la covariance 1D et celle 3D	41

2.2.3	Génération d'une ligne de processus	42
2.2.4	Milieux générés par les bandes tournantes	43
2.3	Génération d'un milieu poreux aléatoire : méthode de krigeage	45
2.3.1	Essence de la méthode	45
2.3.2	Exemples des milieux générés par krigeage	47
2.4	Détermination numérique du facteur d'augmentation de vitesse	49
2.4.1	Structure microscopique du champ de transport. <i>P</i> -cluster	49
2.4.2	Facteur d'augmentation de vitesse et structure du milieu poreux	51
2.4.3	Facteur d'augmentation vectoriel	51
2.4.4	Détection du <i>P</i> -cluster	52
2.4.5	Modèle de transport dans un réseau aléatoire	54
2.4.6	Facteur d'augmentation exprimé à travers le champ de pression	55
2.4.7	Viscosité effective de la suspension colloïdale	55
2.4.8	Calcul du champ de pression	56
2.4.9	Résultats de simulation du facteur d'augmentation . . .	58
3	Modèles diphasiques de transport des colloïdes	61
3.1	Modèle diphasique immiscible	63
3.1.1	Propriétés des phases	63
3.1.2	Formulation mathématique	64
3.1.3	Cas des fluides incompressibles	66
3.2	Modèle diphasique avec miscibilité	67
3.2.1	Modèle général de miscibilité	67
3.2.2	Modèle de miscibilité illimitée de l'eau	68
3.2.3	Définition de la saturation du cluster	68
3.3	Détermination des perméabilités relatives	71
3.3.1	Principe de calcul	71
3.3.2	Calcul de S , Q_s et K	72
3.3.3	Résultats des simulations des perméabilités relatives . .	72
4	Analyse du modèle diphasique immiscible	74
4.1	Solution analytique du problème-modèle de transport	75
4.1.1	Formulation du problème	75
4.1.2	Résolution du problème pour la saturation	77
4.1.3	Solution discontinue	78

4.1.4	Solution pour la concentration	80
4.1.5	Effet d'augmentation de vitesse	81
4.2	Solution numérique	83
4.2.1	Méthode	83
4.2.2	Comparaison avec le modèle classique	84
5	Analyse du modèle diphasique miscible	87
5.1	Solution analytique du problème modèle	88
5.1.1	Formulation du problème	88
5.1.2	Effet d'augmentation de vitesse	89
5.1.3	Solution du problème de transport	91
5.2	Comparaison avec le modèle classique et le modèle diphasique immiscible	92

Liste des figures

1	<i>Représentation schématique d'un écoulement de contaminants couplés avec des particules colloïdales dans un milieu poreux</i>	10
1.1	<i>Limites de variation de la taille des colloïdes en milieu souterrain. La dimension des autres substances est montrée en comparaison.</i>	15
1.2	<i>Phases mobile et immobile des produits chimiques transportés en présence de colloïdes. Les flèches unilatérales dénotent les processus cinétiques, les flèches bilatérales dénotent les processus d'équilibre. k_s, k_{cs}, et k_p sont les taux de transformation biochimique. K_{P_s} et $K_{P_{cs}}$ sont les coefficients de répartition à l'équilibre entre la phase liquide et la phase adsorbée de chimiques.</i>	16
1.3	<i>Phases mobile et immobile des particules colloïdales au cours de leur transport souterrain.</i>	17
2.1	<i>Squelette du réseau capillaire rectangulaire 2D.</i>	34
2.2	<i>Un pore du réseau capillaire</i>	35
2.3	<i>Croisement des capillaires dans un nœud, 2D et 3D cases</i>	35
2.4	<i>Représentation schématique de la construction du champ aléatoire et de la i-ème ligne de la méthode des bandes tournantes</i>	40
2.5	<i>Rayon r d'un capillaire est la valeur d'un champ aléatoire ξ stationnaire d'ordre 2 associée au centre géométrique de ce capillaire.</i>	43
2.6	<i>Exemple d'un milieu aléatoire généré par les bandes tournantes</i>	44
2.7	<i>Exemple d'un VER aléatoire généré par krigeage (logiciel GO-CAD)</i>	47
2.8	<i>Deux clusters de pores</i>	49

2.9	<i>P</i> -clusters pour les valeurs de $R/ < r_p >$ différentes : en haut : à gauche $R/ < r_p > = 0.795$, à droite $R/ < r_p > = 0.973$, en bas : à gauche $R/ < r_p > = 0.983$, à droite $R/ < r_p > = 0.993$ (il n'y a plus de cluster connecté)	53
2.10	Paramètre A en fonction du rapport entre les demi-axes d'une particule ξ/η . Les points représentent les données d'après [Landau & Lifshitz, 1988] ; la ligne solide représente la meilleure approximation.	56
2.11	Facteur d'augmentation de vitesse en fonction du rayon relatif des particules pour différentes concentrations locales. Milieu poreux faiblement corrélé.	59
2.12	Facteur d'augmentation de vitesse en fonction du rayon relatif des particules pour différentes concentrations locales. Milieu poreux corrélé.	60
3.1	Saturation du <i>P</i> -cluster en fonction du rayon relatif des particules	70
3.2	Courbes de perméabilité relative de la suspension colloïdale ($k_s(S)$) et de l'eau ($k_w(S)$). Modèle diphasique immiscible. . .	73
3.3	Courbes de perméabilités relatives de la suspension colloïdale ($k_s(S)$) et de l'eau ($k_w(S)$). Modèle diphasique à la miscibilité illimitée.	73
4.1	Représentation schématique du problème résolu numériquement.	76
4.2	Graphique typique de la fonction fractional flow, $F(S)$	77
4.3	Saturation discontinue S de la suspension colloïdale pour les particules de petite taille	79
4.4	Saturation discontinue S de la suspension colloïdale pour les grandes particules	79
4.5	Définition graphique du facteur d'augmentation de vitesse . . .	82
4.6	Concentration de la suspension colloïdale, C : solution analytique (4.14) (ligne en pointillées) et solution numérique (4.16) (ligne solide). A gauche : $s_0 > S_f$ (particules fines) ; à droite : $s_0 < S_f$ (particules grandes).	84
4.7	Solution numérique du problème de transport directe (ligne en pointillées) et la solution avec un contrôle analytique des chocs (ligne solide)	84

4.8	<i>Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillé). Cas $c^0 = 0.05$ et $s_0 > S_f$.</i>	85
4.9	<i>Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillé). Cas $c^0 = 0.05$ et $s_0 < S_f$.</i>	86
5.1	<i>Fonction "fractional flow" modifiée $F^*(S)$.</i>	89
5.2	<i>Définition graphique du facteur d'augmentation de vitesse.</i>	90
5.3	<i>Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique miscible (ligne ponctuelle), selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillés). Cas $c^0 = 0.05$ et $S = 1$.</i>	92
5.4	<i>Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique miscible (ligne ponctuelle), selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillés). Cas $c^0 = 0.05$ et $S = s_0 = .4$.</i>	93
5.5	<i>Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique miscible (ligne ponctuelle), selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillées). Cas $c^0 = 0.05$ et $S = s_0 = .5$.</i>	94

Résumé

Le but de cette thèse consiste à créer et développer un modèle de transport de suspension colloïdale en milieu poreux saturé qui sera capable de détecter et de prédire l'apparition de vitesses différentes entre l'eau et la suspension ; de distinguer les cas de l'accélération et de retard des particules colloïdales ainsi que de calculer les deux vitesses en utilisant l'information initiale des propriétés du milieu poreux et des particules.

On a procédé de deux manières différentes. Premièrement, on a proposé une méthode analytique de calcul de facteur d'augmentation de la vitesse qu'on peut introduire dans le modèle monophasique classique du transport colloïdal. Deuxièmement, on a proposé une nouvelle approche mathématique phénoménologique pour décrire un transport colloïdal.

Pour développer cette approche, on a utilisé le fait que les deux vitesses apparaissent automatiquement dans le modèle diphasique d'écoulement. Ainsi notre modèle doit être proche de celui diphasique. En conséquence, pour notre modèle mathématique, on a écarté l'approche traditionnelle qui suppose un transport d'un liquide monophasique.

Abstract

The aim of this PhD thesis is to create and to develop a colloid suspension transport model in the saturated porous media that will be able to detect and to predict the apparition of the difference between water and suspension velocity; to distinguish cases of acceleration and of deceleration of the colloidal particles and also to calculate the two velocities using the initial information on the properties of porous media and of particles.

We are proceeded by two different manners. Firstly, we are proposed an analytical method of calculation of enhancement velocity factor that can be introduced in the classic colloid transport model that is single-phase one. Secondly, we are proposed a new phenomenological mathematical approach to describe a colloid transport.

To develop this approach, we are used the fact that two velocities appear automatically in the two-phase transport model. Thus our model must be similar to two-phase one. Therefore, for our mathematical model we are refused the traditional approach that assumes a transport of a single-phase liquid.

Introduction générale

La compréhension de processus d'écoulement d'une suspension colloïdale dans un milieu poreux est essentielle pour l'écologie et les technologies industrielles telles que le traitement d'eaux polluées contre la contamination radioactive et biologique, la récupération du pétrole par l'injection d'eau, l'écoulement d'eau à travers des filtres, les procédés de séparation dans l'ingénierie chimique etc.

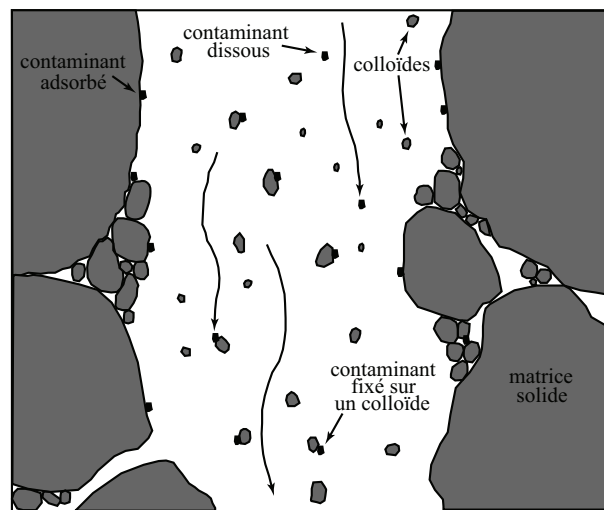


Figure 1: *Représentation schématique d'un écoulement de contaminants couplés avec des particules colloïdales dans un milieu poreux*

Le transport d'une suspension colloïdale joue un rôle important dans le transfert des contaminants. En effet, en présence de particules colloïdales en milieu aqueux souterrain (cf. figure 1), les contaminants ne sont pas qu'adsorbés sur la matrice poreuse du milieu mais ils sont également liés aux particules colloïdales (e.g. : [Kretzschmar *et al*, 1999]). Les contaminants fortement adsorbés sont habituellement retardés (dus à leur adsorption sur la matrice solide), mais les colloïdes "porteurs" peuvent, au contraire, fournir des trajets de transport rapides [Grolimund *et al*, 1996]. Les radionucléides, les métaux lourds et les formations organiques hydrophobes font partie des contaminants strictement adsorbés sur les colloïdes mobiles et sont dangereux même sous de faibles concentrations. Par exemple, Penrose [1990] affirme que les actinides comme le plutonium et l'américium sont associés avec les matériaux colloïdaux de façon irréversible.

En outre, les particules colloïdales sont toujours présentes dans les systèmes souterrains, elles paraissent omniprésentes [Ryan & Elimelech, 1996]. Essentiellement, ce sont des particules solides détachées des parois de pores. En même temps, les contaminants peuvent être des colloïdes eux-mêmes selon leur taille, ou ils peuvent former des colloïdes en se regroupant par plusieurs individus.

L'influence des colloïdes sur le transport des contaminants est double : soit une facilitation peut être apportée, soit, au contraire un retard. Les expériences de laboratoire et in situ étudiant le transport colloïdal des contaminants confirment que les particules colloïdales mobiles peuvent faciliter le transport des contaminants inorganiques et organiques en milieu poreux naturel (par exemple [Corapcioglu & Jiang, 1993], [Grolimund *et al*, 1996], [Ryan & Elimelech, 1996], [Grolimund *et al*, 1998], [Kretzschmar & Stiecher, 1998], [Benamar *et al*, 2005], etc.). Une telle facilitation est habituellement provoquée par le mécanisme d'exclusion par taille (*size-exclusion mechanism*) qui sera décrit dans la section suivante. Comme montrent ces observations, les particules ont une vitesse plus grande que le liquide porteur, et elles se déplacent sur des distances plus grandes par rapport aux prédictions des modèles traditionnels largement utilisés.

D'autre part, certains rapports dans la littérature indiquent au contraire une décélération possible des particules colloïdales par rapport à un traceur passif selon les prédictions des modèles largement utilisés comme les modèles du transport monophasique d'un soluté avec ou sans filtration (par exemple [Ryan & Elimelech, 1996]). Cet effet peut être lié au dépôt des particules sur la matrice poreuse et au blocage des pores par des particules, ainsi qu'aux

autres mécanismes de rétention des particules en milieu poreux.

Dans tous les cas, il s'agit d'un effet traduit par différence des vitesses entre le liquide porteur et les particules fines. Le problème consiste donc à définir cette différence comme fonction de la microstructure du milieu poreux et des dimensions des particules.

Pour décrire ce phénomène, l'approche classique consiste à utiliser le modèle monophasique de transport du soluté (en traitant les colloïdes comme une solution), en y introduisant un coefficient de correction empirique à la vitesse du liquide porteur. Ce coefficient est appelé le facteur d'augmentation de vitesse (ou facteur de retard, ou coefficient de retard) ([Scheibe & Wood, 2003], [Auset & Keller, 2004], etc.). Les modèles d'un tel type, avec un facteur d'augmentation constant, sont largement utilisés dans la théorie de la filtration industrielle.

La définition de ce facteur demande à son tour soit de construire un modèle supplémentaire de mouvement, piégeage et exclusion par taille des particules à l'échelle de pores, soit de le traiter de façon empirique, en utilisant certaines données expérimentales obtenues. L'incapacité du modèle classique de prédire la différence de vitesses est évidemment son grand défaut.

Le deuxième défaut des modèles classiques consiste à ce qu'ils ne tiennent pas compte de la non présence de particules dans certaines systèmes de pores (par exemple, les particules ne peuvent pas pénétrer dans les pores plus petits qu'elles mêmes). Ceci signifie que la porosité effective de transport des particules est en effet réduite. Pour tenir compte d'une telle réduction, il faut introduire un facteur correcteur à la porosité.

L'idée essentielle de notre travail est de décrire le processus du transport de particules fines dans un milieu poreux par une approche diphasique. Cette idée est basée sur l'analogie formelle entre le transport des particules et un écoulement diphasique pour lequel une différence de vitesses entre les phases est tout à fait naturelle, et la correction pour la porosité effective d'une phase est prise en considération par le concept de saturation. Dans le cadre d'une telle approche, le phénomène d'augmentation/diminution de la vitesse des colloïdes résulte naturellement du modèle de transport lui-même et ne demande pas d'introduction dans le modèle d'information empirique sur le facteur d'augmentation. En revanche, cette approche introduit le concept de perméabilités relatives qui est bien développé dans la théorie des écoulements multiphasiques.

Chapitre 1

Modélisation du transport des colloïdes en milieux poreux

1.1 Description des colloïdes

Le terme "colloïde" vient du grec et est constitué de kólla - colle et éidos - espèce.

La variété de matières existant sous forme de colloïdes et de petites particules dans l'eau souterraine est très diverse. Elle se compose des précipitations des minéraux (particulièrement des oxydes, des hydroxydes, des carbonates, des silicates et des phosphates du fer, de l'aluminium, du calcium et du magnésium; mais aussi des oxydes et hydroxydes des actinides tels l'uranium (U), le neptunium (Np), l'américium (Am)), des fragments de roche et des minéraux (y compris les silicates stratifiés, les oxydes et les autres produits d'érosion de la phase minérale), des biocolloïdes (y compris les protozoaires, les bactéries et les virus), des microémulsions de liquides en phase non aqueuse, des composantes macromoléculaires de matière organique naturelle (comme certains composants de substances humiques et autres polymères tels que les sécrétions des microorganismes).

Les colloïdes sont de très fines particules (tels les minéraux argileux, les oxydes métalliques, les virus, les bactéries, les macromolécules organiques et les autres) dont la taille est comprise entre 1 et 1000 nm (McCarthy & Zachara, 1989; Rayn & Elimelech, 1996; Kretzschmar et al., 1999). Certains chercheurs élargissent la limite supérieure de la taille des colloïdes jusqu'à 10 μm ([Khilar & Fogler, 1998], [Sen *et al*, 2004], [Sen & Khilar, 2006]). Cette plage de taille est approximativement limitée d'un côté par les molécules dissoutes et de l'autre par les grains de sable (cf. figure 1.1).

Les dispersions où la taille des particules est située dans cette gamme sont appelées aérosols colloïdaux, émulsions colloïdales, mousses colloïdales, dispersions ou **suspensions colloïdales**.

Malgré la grande variété de tailles, les particules colloïdales ont certaines propriétés communes : (1) elles ont une très grande surface spécifique ($> 10 \text{ m}^2/\text{g}$, [Kretzschmar *et al*, 1999]) dépendant de leur taille et par conséquent elles peuvent avoir une grande capacité d'adsorption pour les contaminants, (2) leur transport par advection peut être plus rapide que par sédimentation et par conséquent les particules colloïdales restent stables en suspension pendant des périodes temporelles longues.

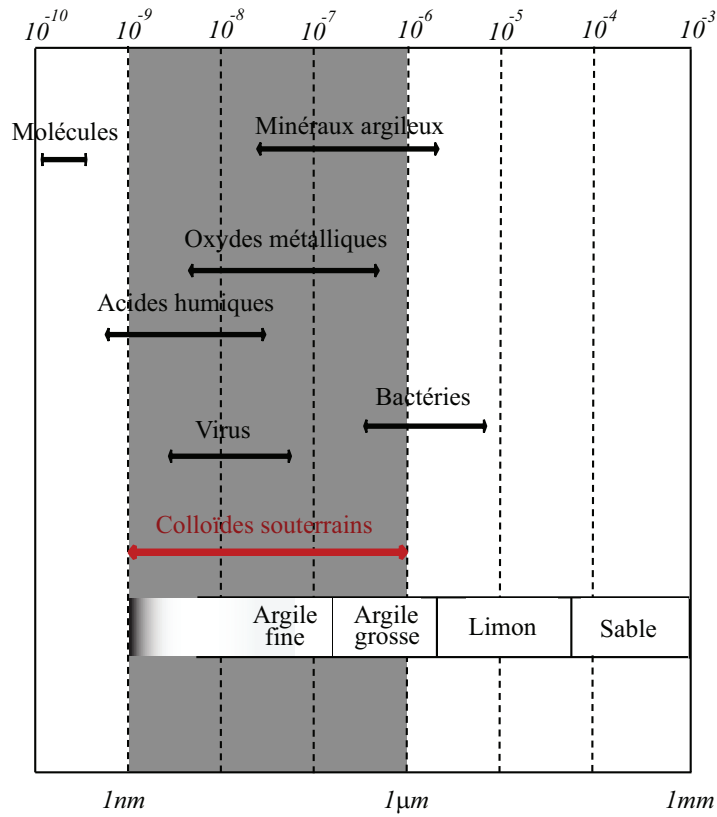


Figure 1.1: *Limites de variation de la taille des colloïdes en milieu souterrain. La dimension des autres substances est montrée en comparaison.*

Pour les particules colloïdales, l'influence des forces gravitationnelles est petite en comparaison avec l'influence du mouvement Brownien (c.-à-d., le mouvement dû à l'agitation thermique [Mills, Lui & Fong, 1991]).

Le comportement des particules colloïdales et leurs interactions avec l'environnement dépend de nombreux facteurs. Parmi eux, il y a la rugosité et la forme des particules fines, leur composition chimique, ainsi que la charge ionique des particules fines et de la matrice solide. Leur comportement chimique est dominé par les actions superficielles [Moridis *et al*, 2003] et elles peuvent avoir une grande capacité d'adsorption pour les contaminants. Lors de la présence de particules mobiles, les contaminants doivent être adsorbés strictement par ces particules et se désorber très faiblement

[Kretzschmar *et al.*, 1999].

Mills *et al.* (1991) ont aussi donné l'exemple des diagrammes de distribution d'états mobile et immobile des produits chimiques et des particules colloïdales transportés ensemble en milieu poreux (cf. figures 1.2 et 1.3). Les encadrements et les flèches interrompus désignent les interactions avec

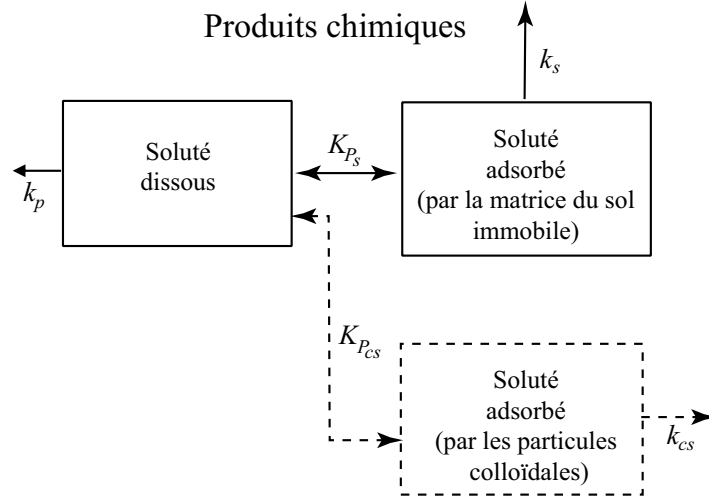


Figure 1.2: *Phases mobile et immobile des produits chimiques transportés en présence de colloïdes. Les flèches unilatérales dénotent les processus cinétiques, les flèches bilatérales dénotent les processus d'équilibre. k_s , k_{cs} , et k_p sont les taux de transformation biochimique. K_{P_s} et $K_{P_{cs}}$ sont les coefficients de répartition à l'équilibre entre la phase liquide et la phase adsorbée de chimiques.*

des colloïdes. Le mécanisme d'interaction entre les colloïdes et les produits chimiques représente des phénomènes d'adsorption à l'équilibre.

En outre, tous les paramètres de transport des particules colloïdales en suspension peuvent varier en fonction du débit d'injection ou de la vitesse d'écoulement ([Wang *et al.*, 2000], [Kretzschmar *et al.*, 1999]), ainsi qu'en fonction des conditions chimiques notamment du pH.

De cette façon, la moindre perturbation provoque une libération supplémentaire de particules colloïdales même si avant leur présence était faible. De telles perturbations apparaissent lors d'activités humaines y compris le dépôt des déchets, le pompage ou la recharge artificielle des nappes.

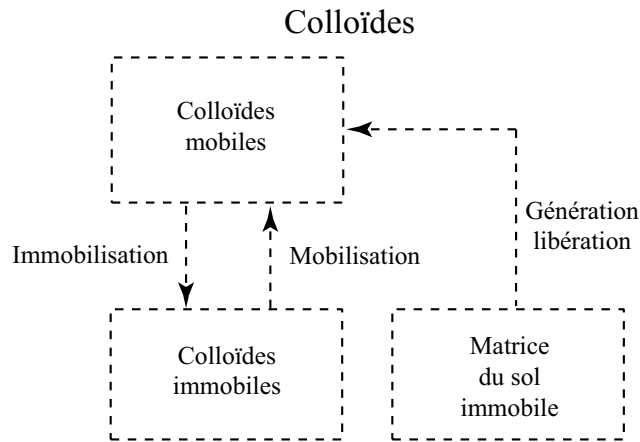


Figure 1.3: *Phases mobile et immobile des particules colloïdales au cours de leur transport souterrain.*

Les perturbations chimiques favorisant également la libération des colloïdes peuvent apparaître en milieu souterrain lors de fortes précipitations atmosphériques, de l'irrigation avec de l'eau riche en Na^+ de force ionique faible ou de la lixiviation des sols affectés par des sels par l'eau fraîche ([Kretzschmar *et al*, 1999], [Ryan & Elimelech, 1996]).

Dans ce travail, nous considérerons les milieux poreux homogènes saturés. Les particules solides examinées ont une forme sphérique à des fins de simplification.

1.2 Mécanismes principaux d'accélération des fines

L'accélération du transfert des particules colloïdales en milieu poreux est attribuée à la vitesse locale des particules qui est plus grande que celle de l'eau souterraine.

Dans cette section, on décrira les deux mécanismes principaux qui sont à l'origine de l'accélération des fines : l'un concerne l'exclusion par taille et l'autre, la chromatographie hydrodynamique. Ces deux mécanismes se manifestent à l'échelle microscopique.

1.2.1 Mécanisme d'exclusion par taille

Le mécanisme d'exclusion par taille (ou par volume) est nommé aussi l'accélération géométrique. Ce mécanisme est basé sur le principe que les petits pores dans les agrégats du sol ne sont pas accessibles aux particules colloïdales dont la taille est plus grande que celle des pores. Dans les systèmes souterrains, les particules fines prennent donc des chemins se composant des plus grands pores. A cause de leur résistance hydraulique plus faible, à l'intérieure de ces pores la vitesse locale microscopique de l'eau souterraine est plus grande que dans le reste du milieu poreux, entraînant ainsi le phénomène d'augmentation de la vitesse des colloïdes. Ce comportement signifie aussi que cette inaccessibilité des pores étroits ne change pas avec des variations de vitesse d'eau interstitielle des pores.

Le mécanisme d'exclusion par taille est essentiel et il semble être une des causes principales de l'augmentation de la vitesse des particules colloïdales transportées dans les systèmes souterrains.

Par exemple, Massei et al. (2002) ont observé que les grosses particules colloïdales ont été transportées plus rapidement que les particules fines. Ce fait confirme un rôle très important et significatif du mécanisme d'exclusion par taille dans le transport colloïdal.

Schiffer et al. (2004) ont expliqué l'accélération des anions chlorures observée par le fait que les anions étaient exclus des pores les plus étroits. Bien que cela ne résulte pas de la taille des anions mais du haut niveau de pH,

on peut considérer ces expériences comme une autre confirmation du rôle important du mécanisme d'exclusion par taille dans le transport des particules en milieu poreux (si on entend par taille, la taille des pores et pas des particules).

1.2.2 Phénomène de la chromatographie hydrodynamique

La base du phénomène de la chromatographie hydrodynamique provient du fait qu'une particule colloïdale est exclue de la région la plus lente d'un pore, i.e. : près de la paroi d'un pore. Ce phénomène a été décrit pour la première fois dans [Small, 1974].

Ce mécanisme d'accélération de la migration des colloïdes mobiles par rapport au transport d'eau souterraine peut donc être expliqué de la manière suivante (Corapcioglu et Jiang, 1993). A l'échelle microscopique au sens des milieux poreux, utilisons un modèle de milieu poreux composé par des tubes capillaires. Le profil de vitesse est parabolique lors d'un écoulement de Poiseuille le long d'un tube circulaire droit avec un diamètre constant :

$$V_p = V_{max} \left(1 - \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \right)$$

où V_p est la vitesse microscopique dans un pore (tube) ; V_{max} est la vitesse maximale au centre du pore ; r est la distance radiale mesurée du centre du tube ; r_0 est le rayon du tube.

En supposant que chaque particule a la même vitesse locale que l'eau ambiante et que, lors de sa migration aléatoire à travers la section transversale, toutes les positions sont équiprobables, on en déduit que la vitesse moyenne de transport d'une particule serait la même que la vitesse moyenne d'écoulement du liquide, si elle pouvait accéder à tout le volume du pore :

$$\bar{V} = \frac{2\pi \int_0^{r_0} V_p r dr}{\pi r_0^2} = \frac{2\pi V_{max} \int_0^{r_0} \left(1 - \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \right) r dr}{\pi r_0^2} = \frac{V_{max}}{2}$$

Pourtant, due à sa taille finie, une particule colloïdale est exclue de la région la plus lente au voisinage de la paroi. Une particule colloïdale change donc sa position radiale pendant sa migration dans le tube capillaire mais

n'occupera jamais les zones pariétales. Ainsi elle migrera avec une vitesse moyenne plus grande que la vitesse moyenne de l'eau. Ce mécanisme correspond bien à de la chromatographie hydrodynamique.

Néanmoins ce mécanisme ne semble avoir qu'une faible contribution dans le phénomène d'accélération des colloïdes [Dodds, 1982].

De par la contribution négligeable de la chromatographie hydrodynamique dans l'accélération des particules fines par rapport à la contribution du mécanisme d'exclusion par taille, seul ce dernier sera pris en considération dans ce travail.

1.2.3 Autres mécanismes pour des particules chargées

Complémentairement aux mécanismes mécaniques, des mécanismes électrochimiques agissent sur les particules fines chargées dues aux forces d'interactions interparticulaires. Toutes les forces d'interaction dépendent de la distance et sont décrites par l'énergie potentielle d'interaction (le potentiel d'interaction zêta, ζ). Le potentiel zêta dépend de la nature des particules et des ions présents, leur concentration et leur valence, des forces ioniques du soluté et du pH ([Herzig, Leclerc & LeGorf, 1970]). Il est pratiquement impossible de calculer le potentiel ζ avec une précision suffisante en se basant sur la mécanique quantique vu la vaste variation des interactions intermoléculaires existantes.

Conformément à la théorie classique de Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek (DLVO) ([Derjaguin & Landau], [Verwey & Overbeek]), l'énergie totale des interactions entre des particules ou entre une particule et une surface peut être calculée par la somme des forces de Van der Waals (ou de London-Van der Waals) et des forces de la double-couche.

Les forces de Van der Waals sont attractives, d'origine électromagnétique, elles résultent des interactions instantanées de type dipôle - dipôle entre les surfaces. [Hamaker, 1937] a proposé une approche pour décrire les forces de Van der Waals basée sur l'additivité de toutes les forces intermoléculaires. Les forces de Van der Waals dépendent de la masse volumique et de la polarisabilité des surfaces interagissantes et du milieu ainsi que des autres facteurs à prendre en compte lors de la détermination de la constante de Hamaker.

Le mécanisme des forces de la double-couche est le suivant. La surface de n'importe quel matériau solide en contact avec un électrolyte est enveloppée

par des ions chargés de signe contraire à la surface pour compenser sa charge superficielle. Cela forme une deuxième couche (connu comme couche diffuse) environnant la surface du matériau dont la charge est la même que celle des ions. Si les surfaces interagissantes ont la même charge, les forces de la double-couche sont répulsives ; si les surfaces interagissantes ont des charges opposées, les forces de la double-couche sont attractives. En milieux souterrains, la nature des particules colloïdales est la même que celle du milieu, ainsi les charges des colloïdes et du milieu coïncident. Les forces de la double-couche entre le milieu et les colloïdes sont donc répulsives. Le changement le plus commun de la chimie souterraine est la diminution des forces ioniques due à l'arrivée d'eau fraîche et, avec la diminution des forces ioniques, la répulsion de la double-couche augmente [Ryan & Elimelech, 1996].

Cependant, aux petites distances il faut aussi prendre en compte les forces répulsives de rayon d'action faible - la force de Born qui résulte du recouvrement des orbitales électroniques [Kretzschmar *et al*, 1999].

Les forces superficielles, moléculaires ou électriques, ont un rayon d'action faible par rapport au diamètre des grains. Ainsi, elles n'attirent pas de particules de la masse de la suspension vers la paroi des grains du milieu, mais agissent seulement sur les particules qui sont déjà à proximité de la surface du milieu [Herzig, Leclerc & LeGorf, 1970].

Conséquemment, l'accélération des particules chargées peut être provoquée par les forces superficielles répulsives et la décélération, par les forces superficielles attractives.

Afin d'éviter l'amalgame entre les phénomènes électriques et un écoulement multiphasique dont la théorie combinée est très mal développée, nous examinerons dans ce travail uniquement le cas de particules neutres, en mettant ainsi en priorité le mécanisme d'exclusion par taille comme l'effet majeur déterminant la différence des vitesses entre les particules transportées et le liquide ambiant.

1.3 Modèles de transport des colloïdes

L'approche classique pour décrire le transport des particules fines consiste à les examiner comme un soluté en écoulement monophasique.

Même si parfois on peut voir dans la littérature des modèles de transport de contaminants nommés "diphasiques", voir "triphasique", ceux-ci restent néanmoins monophasiques. Leur côté "multiphasique" se rapporte à la matrice rocheuse qui est examinée comme une phase supplémentaire, immobile mais participant dans des interactions chimiques avec la solution transportée. En même temps le système liquide-particules est toujours examiné comme une solution monophasique.

1.3.1 Modèle phénoménologique d'advection-dispersion avec piègeage

Ainsi, selon l'approche classique, les particules colloïdales transportées par l'eau souterraine sont examinées comme étant infiniment petites et sont traitées comme un soluté dans une solution aqueuse monophasique. Soit $C(x, t)$ la concentration massique des colloïdes, mesurée en masse de colloïdes par unité de volume du fluide saturant le milieu poreux, $[C] = kg/m^3$. La conservation de la masse des particules est alors décrite, en termes de concentration colloïdale C , par une équation phénoménologique d'advection-dispersion avec piègeage :

$$\phi \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(V_p \cdot C)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right) + f \quad (1.1)$$

où D est le coefficient de diffusion/dispersion des particules ; V_p est la vitesse de Darcy associée aux particules ; ϕ est la porosité du milieu ; f est le terme-source qui exprime tout mécanisme possible de production ou de dégradation de la masse du contaminant (tels que captage, adsorption, croissance ou décroissance biologiques, etc.) ; x et t sont respectivement les coordonnées spatiale et temporelle.

Diverses versions de ce modèle peuvent être distinguées en fonction de la définition des paramètres ϕ et f .

La définition la plus générale pour les fonctions ϕ et f a été obtenue par [Iwasaki, 1937] et ensuite utilisée dans [Herzig, Leclerc & LeGorf, 1970] où ces auteurs ont pris en considération la taille finie des particules. En conséquence, tout mécanisme de capture des particules conduit à une réduction de la porosité ϕ du milieu. Comme le volume d'une particule n'est pas nul, la concentration $C(x, t)$ peut être considérée comme volumique. Le modèle mathématique correspondant, en supposant une loi linéaire pour la variation de la porosité en fonction du volume des particules retenues, est :

$$\phi = \phi_0 - \beta\sigma, \quad f = -\frac{\partial\sigma}{\partial t} = -\phi\lambda_{tr}VCf_1\left(\frac{\sigma}{\phi_0}\right)$$

où $\sigma = \sigma(x, t)$ est le volume des particules colloïdales retenues ou immobiles par unité de volume du milieu ; ϕ_0 est la porosité initiale du milieu ; β est une constante non négative appelée facteur de compactage ; λ_{tr} est le coefficient de filtration (ou de piégeage), positif, dont la dimension est en s^{-1} ; f_1 est une fonction empirique de σ/ϕ_0 , non négative et non croissante exprimant le taux de piégeage.

Souvent, la fonction f_1 est supposée être égale à 1 [Logan, 2001] et porte alors le nom de "deep bed filtration hypothesis".

Une autre manière de déterminer cette fonction est une approximation cinétique :

$$f_1\left(\frac{\sigma}{\phi_0}\right) = 1 - \beta\sigma \tag{1.2}$$

qui tient compte que la capacité de capturer des particules devient de plus en plus faible pour un pore au fur et à mesure qu'il se remplit de particules déjà capturées.

Le modèle d'attachement-détachement suppose qu'une partie des particules capturées peut se détacher et retourner dans la suspension mobile [Logan, 2001]. De cette façon, le terme de source devient :

$$f = -\phi V \left[\lambda_{tr} C f_1\left(\frac{\sigma}{\phi_0}\right) - k\sigma \right] \tag{1.3}$$

où k est le taux de détachement.

L'effet d'augmentation de la vitesse des colloïdes ne peut pas résulter de ces modèles phénoménologiques car la vitesse V du transport est examinée comme un paramètre connu a priori. Habituellement, ces modèles sont appliqués en supposant que les particules colloïdales ont la même vitesse que l'eau.

En même temps, l'effet d'augmentation de la vitesse peut être introduit dans ces modèles dans le cas où l'on dispose d'une méthode supplémentaire pour calculer correctement la vitesse d'écoulement des particules. On peut trouver un des exemples de simulation de la vitesse d'écoulement des colloïdes dans [Scheibe & Wood, 2003]. Les auteurs proposent une approche à l'échelle du pore en modélisant le phénomène d'exclusion en tronquant la distribution de la vitesse locale aux zones de vitesse la plus faible. Cela conduit à un coefficient de correction transformant la vitesse de Darcy en vitesse d'écoulement.

1.3.2 Modèle probabiliste markovien de Ferrara, Marseguerra, Zio & Patelli

Ce modèle est basé sur l'analyse d'un système de particules de différentes espèces en termes d'un ensemble stochastique. Les différents événements impliquant des particules sont traités en termes d'une chaîne markovienne. Ceci permet d'appliquer les méthodes efficaces de la théorie de Kolmogorov-Dmitriev des processus aléatoires branchés, dont l'essence est décrit ci-après [Marseguerra & Zio, 1997], [Ferrara *et al*, 1999].

En accord avec la terminologie proposée par les auteurs, on introduit deux catégories de particules de contaminant : les "solutons" qui sont les particules mobiles de contaminant dans l'eau souterraine et les "trappons" qui sont des particules piégées (adsorbées) par le milieu poreux. Dans le cas général, il y a plusieurs types de trappons dus aux types différents de mécanisme de la capture.

Le domaine d'écoulement est divisé en N_z zones discrètes. Notons par s_z le nombre des solutons dans la zone z et par t_z^i le nombre des trappons de type i dans la zone z ($z = 1, \dots, N_z$, $i = 1, \dots, N_t$). En tout on a donc $m = N_z(N_t + 1)$ types des particules.

Pendant un intervalle élémentaire de temps $d\tau$, les événements suivants peuvent concerner les différentes particules. Une soluton peut soit se déplacer dans une zone différente z' avec la densité de probabilité $b_{s,z \rightarrow z'}$, soit peut être capturée dans la zone z (i.e. transformée dans un des types des trappons) avec la densité de probabilité $b_{s,z}^i$. En ce qui concerne une trapon de type i , elle ne peut qu'être libérée (i.e. transformée en une soluton) avec la densité de probabilité d^i . En outre le contaminant peut subir une dégradation avec le taux de dégradation λ , ainsi qu'une production qui suit la loi de Poisson avec une intensité $s(\tau)$.

L'évolution temporelle des populations de solutons (S_s) et de trappons (T_s^i) est donc gérée par les équations différentielles de Kolmogorov :

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_s(z, \tau)}{\partial \tau} = & s(\tau) - \left[\sum_{j=1}^{N_t} b_{s_z}^j + \sum_{\forall z' \neq z} b_{s,z \rightarrow z'} + \lambda \right] S_s(z, \tau) + \\ & \sum_{j=1}^{N_t} d^j T_s^j(z, \tau) + \sum_{\forall z'' \neq z} b_{s,z'' \rightarrow z} S_s(z'', \tau); \end{aligned} \quad (1.4)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial T_s^i(z, \tau)}{\partial \tau} = & b_{s_z}^i S_s(z, \tau) - (d^i + \lambda) T_s^i(z, \tau), \\ & z = 1, \dots, N_z; \quad i = 1, \dots, N_t \end{aligned} \quad (1.5)$$

Dans l'équation (1.4), le deuxième terme à droite traduit tous les procédés qui font disparaître les solutons de la zone z (par transformation en trappon, par déplacement à une autre zone ou par dégradation) ; le troisième et quatrième termes décrivent la production des solutons par libération des trappons et par arrivée des solutons d'autres zones (z''). L'équation (1.5) est interprétée de façon analogique.

Le point crucial du modèle est la définition des probabilités de transition $b_{s,z \rightarrow z'}$ pour toutes les valeurs possibles de z et z' . Ceci a été effectué en utilisant l'hypothèse que l'évolution des populations représente un processus branché.

Le modèle formulé sous cette forme représente le système d'un grand nombre d'équations différentielles ordinaires qui ne peuvent être analysées que par une méthode numérique.

Les auteurs du modèle ont aussi établi les relations entre les paramètres du modèle advectif/dispersif et les probabilités de transition du modèle stochastique dans deux cas particuliers : un contaminant non réactif (i.e. sans aucun piégeage) et un contaminant réactif à l'équilibre (i.e. la disparition des particules se produit par des réactions chimiques seules).

Dans les deux cas considérés, la comparaison du modèle de Kolmogorov-Dmitriev avec celui advectif/dispersif a montré d'excellents résultats.

Bien que le modèle soit développé pour des particules quelconques de caractère très général, son application au transport des colloïdes n'a jamais été réalisée et pose certains problèmes de principe. En particulier, le processus de piégeage par filtration (qui correspond mathématiquement à une réaction chimique hors équilibre) n'a pas été étudié par [Ferrara *et al*, 1999], et la

définition de la probabilité de piégeage dans ce cas représente un problème ouvert.

Ainsi, le modèle mentionné, restant loin de son utilisation pour le transport colloïdal, est pour l'instant incapable de décrire l'effet de la différence des vitesses entre les particules et le liquide ambiant.

1.3.3 Modèle semi-empirique de Sharma & Yortsos

Un modèle stochastique formel est basé sur la formulation du bilan de masse des particules en prenant en considération les différentes interactions entre la matrice poreuse et les différents types de particules. Cependant les modèles d'interactions sont simplement postulés en termes de processus cinétiques caractérisés par des taux de transfert correspondants. La détermination des valeurs de ces taux doit être développée.

Le modèle de ce type est dérivé dans [Sharma & Yortsos, 1987]. La variation des distributions de taille des particules et des pores détermine les types différents des particules (suspendues, capturées, attachées, déposées) et des pores (entrées bloquées ou non bloquées, ...), dont les classes essentielles ont été proposées par [Khilar & Fogler, 1983].

Le point essentiel de tous les modèles stochastiques consiste à déterminer les probabilités de capture des particules et de fermeture des pores. Dans ce travail, ces probabilités sont simplement postulées être proportionnelles au flux de particules, avec un coefficient de piégeage/fermeture empirique non défini. Ce modèle ne peut donc être que semi-empirique.

L'équation typique de ce modèle est la suivante, pour des particules en suspension dont la concentration volumétrique est ρ , la distribution des tailles est f et la vitesse est q :

$$\phi \frac{\partial \rho_s f_s}{\partial t} + q \frac{\partial \rho_s f_s}{\partial x} = Q_l + Q_p + Q_c$$

où Q_l est le taux de libération ou de déposition dû aux forces superficielles ; Q_p est le taux de piégeage mécanique aux entrées des pores ; Q_c est le taux de génération ou de disparition dû à la coagulation. Les équations similaires peuvent être écrites pour les particules déposées et capturées.

Pour définir les taux de transition, les auteurs préconisent d'utiliser les diagrammes d'énergie potentielle et les valeurs exactes des paramètres constitutants comme la valeur de la barrière énergétique, de la constante de Hamaker, ...

Dans le cas d'un milieu poreux de distribution uniforme en taille de pores, le modèle se réduit au "deep bed filtration model" pour chaque taille de particules. En outre, les particules de différentes tailles se comportent comme indépendantes de toutes les autres tailles, ce qui est un défaut du modèle.

En plus, il est supposé que tout espace poreux est accessible par les particules et que les particules se déplacent avec la vitesse moyenne d'écoulement de l'eau, ce qui ne correspond pas aux données expérimentales.

1.3.4 Modèle semi-empirique de Santos & Bedrikovetsky

Dans [Santos & Bedrikovetsky, 2006], une généralisation des équations classiques du "deep bed filtration" est proposée. Elle prend en considération le fait que, si une grande particule est capturée, elle bouche le pore pour les autres particules. Il est supposé qu'une particule ne peut boucher qu'un seul pore et vice versa. De ce fait, le flux de particules diminue. Cette dépendance du flux des paramètres de piégeage est un nouvel élément de ce travail. Comme suite, le modèle contient à la fois le paramètre d'accessibilité des pores, ainsi que le paramètre de réduction du flux.

L'analyse est effectuée sur la base d'un modèle de milieu poreux simplifié, sous forme d'un faisceau de capillaires parallèles alterné par des "chambres de mélange" qui assurent un mélange complet sur des intervalles permanents. Le volume d'une chambre est négligeable par rapport au volume des capillaires.

Comme dans [Sharma & Yortsos, 1987], les probabilités de capture des particules et de fermeture des pores sont postulées être proportionnelles au flux de particules, avec un coefficient de piégeage/fermeture empirique non défini.

Le système de deux équations couplées est obtenu par rapport aux deux concentrations : des particules en suspension et des pores vacants. Il a la forme suivante :

$$\begin{aligned}\phi \frac{\partial(\gamma C)}{\partial t} + U \frac{\partial(\alpha C)}{\partial x} &= -UC\lambda_{\Sigma}(H), \\ \frac{\partial H}{\partial t} &= -UH\lambda_H(H, C)\end{aligned}\tag{1.6}$$

où ϕ est la porosité ; U est la vitesse de Darcy ; λ_{Σ} et λ_H sont des coefficients cinétiques de capture des particules et de fermeture des pores définis, à leur tour, à travers le coefficient empirique de filtration ci-mentionné. Le facteur

d'accessibilité $\gamma(H)$ est défini comme le volume de tous les pores vacants divisé sur le volume de tous les pores. Le facteur de réduction du flux $\alpha(H)$ est défini comme la conductivité hydraulique de tous les pores vacants divisée par la conductivité hydraulique de tous les pores.

On voit clairement que le flux dépend des paramètres de capture (à travers $\alpha(H)$).

La vitesse individuelle des particules est évidemment différente de la vitesse d'eau U à cause de l'apparition du facteur de réduction α . Pourtant, α est toujours inférieur à 1, ce qui signifie une décélération des particules, contrairement aux données expérimentales. Une telle décélération est provoquée par la réduction du cluster des pores accessibles pour les particules. En réalité, une telle réduction n'est possible que dans une situation très particulière.

Un cas particulier est analysé, celui d'un milieu de petite variation de taille des pores ($r_{p\max} - r_{p\min} \ll r_{p\min}$) avec une distribution uniforme. Dans ce cas, les petites particules passent sans piégeage, tandis que les grandes particules sont piégées en section d'entrée. Pour les particules intermédiaires ($r_{p\min} < r_s < r_{p\max}$) l'effet de capture progressive ("deep bed filtration term") apparaît. Malgré le fait que les grandes particules soient plus rapides, l'effet d'accélération n'apparaît pas en termes de vitesse moyenne, à cause de la capture qui est toujours plus intense.

Le point positif de ce travail est l'apparition du facteur d'accessibilité γ qui est le prototype de la saturation du cluster des particules qui sera introduite dans notre contribution (chapitre 3).

1.4 Facteur d'augmentation de vitesse : données expérimentales

Pour prendre en compte l'accélération ou la décélération des particules colloïdales par rapport à l'eau dans le cadre de l'approche monophasique classique, on introduit un facteur d'augmentation de vitesse ω dans le modèle d'advection-dispersion (1.1) :

$$V_c = \omega V \quad (1.7)$$

où V est la vitesse d'eau.

En absence de modèles théoriques bien développés sur ω , pour le calculer on utilise en pratique les données expérimentales que l'on peut trouver dans la littérature ([Corapcioglu & Jiang, 1993], [Ryan & Elimelech, 1996], [Wang *et al*, 2000], [Auset & Keller, 2004], [Schiffer *et al*, 2004]).

1.4.1 Expériences in situ

Dans plusieurs travaux sur le transport de particules colloïdales, la propagation in situ des déchets nucléaires de haute activité a été étudiée.

Par exemple, Moridis et al. (2003) ont effectué leur étude à Yucca Mountain, Nevada, USA. Dans le cadre de cette étude, les auteurs ont trouvé que les colloïdes radioactifs provenant du dépôt potentiel se déplacent plus rapidement et atteignent la nappe d'eau souterraine plus tôt et sur une plus grande surface dans la partie sud que dans la partie restante du dépôt potentiel. Ils donnent quelques raisons à cet effet : les distributions différentes d'infiltration et de percolation ; la présence de couches de conductibilité élevée dans la partie sud du dépôt potentiel ; la présence de zones de perméabilité faible dans la partie nord du dépôt potentiel. Les auteurs ont trouvé aussi que plus la taille des particules colloïdales est grande, plus rapide est leur mouvement. Par exemple, les particules colloïdales de taille 450 nm sont déplacées avec une vitesse 1,5 fois plus grande que la vitesse moyenne de l'eau.

Dans une étude sur le plutonium (Pu) à Nevada (USA), la distance mesurée parcourue par le Pu a été trouvée beaucoup plus grande que celle prédite par les modèles classiques (Kersting et al., 1999). En particulier,

Kersting et al. (1999) ont montré que le Pu soluble (ionique) est pratiquement immobile dans le sous-sol du champ d'expérimentation de Nevada dû à sa sorption forte sur la matrice poreuse et sa solubilité limitée. Par contre, il peut être transporté sur des distances significatives (1.3 km pendant une période de 30 ans) sous sa forme colloïdale.

Une autre étude sur le plutonium et l'américium a été effectuée par Penrose et al. (1990) dans le canyon Mortandad, au sein du site du Laboratoire National de Los Alamos (New Mexico). Les auteurs ont observé du plutonium et de l'américium dans les puits du monitoring éloignés de 3390 m en aval de la décharge, tandis que les analyses de laboratoire ont prédit que leur mouvement dans l'environnement souterrain aurait dû être limité à quelques mètres. La vitesse prédite du transfert du Pu est 4.2 cm/an. La vitesse du Pu mesurée en 1995 a été de l'ordre de 500 m/an ce qui est presque 1200 fois plus grand que ce qui avait été prédit [Ryan & Elimelech, 1996].

1.4.2 Essais de laboratoire (écoulement à travers une colonne)

Les essais de laboratoire dans lesquels le transport colloïdal a été étudié confirment que les particules solides mobiles peuvent accélérer le transport des contaminants inorganiques en milieu poreux naturel : [Grolimund *et al*, 1996], [Ryan & Elimelech, 1996], [Grolimund *et al*, 1998], [Kretzschmar & Stiecher, 1998], [Wang *et al*, 2000], [Schiffer *et al*, 2004], [Benamar *et al*, 2005].

Dans les expériences de [Grolimund *et al*, 1996], l'augmentation mesurée de la vitesse des particules colloïdales était d'environ 1.45 fois en comparaison avec la vitesse d'un traceur conservatif. Ils ont expliqué cet effet par le mécanisme d'exclusion par taille : les petits pores soient inaccessibles pour les particules, conséquemment, les colloïdes sont transportés à travers un sousdomaine plus perméable par comparaison à celui occupé par l'eau (cf. section (1.2.1)). Les auteurs ont aussi observé que la dispersivité des particules colloïdales (naturelles et de latex) était plus grande que celle du traceur conservatif.

Une des dernières publications concernant le transport de la suspension colloïdale à travers une colonne est [Benamar *et al*, 2005]. Cet article examine le transport et le dépôt d'une matière sous la forme d'une suspension en milieu poreux saturé. Les auteurs ont utilisé les tests d'impulsion de courte

durée pour injecter un traceur conservatif et deux types de particules en suspension (le rilsan et le limon) dans une colonne de laboratoire. Les particules de rilsan sont artificielles calibrées entre 2 et 50 μm avec une moyenne de 25 μm . Les particules de limon sont naturelles d'une taille comprise entre 2 et 40 μm avec une moyenne de 15 μm . Les particules de rilsan sont choisies à cause de leur masse volumique qui s'approche de celle d'eau. A partir des tests effectués, il a été conclu que les paramètres de l'écoulement dépendent de la vitesse d'écoulement totale et de la nature des particules dans la suspension. Les auteurs ont noté aussi que les particules dans la suspension sont transportées plus rapidement que le traceur. Le rapport entre la vitesse des particules et la vitesse de traceur dissous est trouvé proche de 1.1.

[Schiffer *et al*, 2004] ont effectué des expériences de transport de produits chimiques. Les auteurs ont utilisé des colonnes qui se composent de matériels de sol agricole agrégés (originaires de deux horizons de Luvisol, Amperhausen, Bavière, Allemagne). Ils ont trouvé que la vitesse moyenne du transport de chlorure est plus grande que la vitesse effective moyenne de l'eau dans les pores, le facteur d'augmentation de la vitesse est 1.343 et 1.093 selon l'horizon.

Conformément à [Kim *et al*, 1992] et à [Buddemeier & Hunt, 1988], le gain en vitesse mesuré est approximativement 1.5.

Une revue plus détaillée des résultats expérimentaux et théoriques sur la facilitation du transport colloïdal peut être trouvée dans [Sen & Khilar, 2006].

Chapitre 2

Approche monophasique.
Détermination théorique du
facteur d'augmentation de
vitesse

L'objectif de ce chapitre est d'obtenir des estimations théoriques pour le facteur d'augmentation de vitesse ω défini à l'aide de (1.7).

Nous proposons une méthode numérique de calcul de ce facteur en analysant le processus de transport des particules à l'échelle de pores à travers un modèle stochastique de milieu sous forme d'un réseau capillaire aléatoire. Le mécanisme physique essentiel qui détermine la différence des vitesses est l'exclusion par taille, i.e. : les particules solides ne sont pas présentes dans des pores trop étroits. Ce phénomène d'exclusion par taille a été modélisé numériquement. Le traitement consécutif des résultats de simulations a permis d'obtenir des estimations quantitatives théoriques pour le facteur d'augmentation ainsi que de révéler son comportement qualitatif en fonction des paramètres décrivant la microstructure du milieux poreux et des propriétés des particules.

2.1 Modèle stochastique du milieu poreux

Le milieu poreux est présenté comme un réseau de capillaires cylindriques croisés, de rayons tirés au hasard. Parmi les versions différentes probables d'un réseau capillaire, nous avons utilisé celle décrite dans [Panfilova, 2003].

Pour générer le champ aléatoire, on a utilisé deux méthodes différentes : la méthode "non conditionnelle" qui utilise la valeur moyenne et la fonction de covariance comme données initiales, et la méthode "conditionnelle" qui utilise quelques valeurs d'une réalisation du champ connues dans certains endroits et la fonction de covariance.

2.1.1 Structure d'un réseau capillaire

La base du réseau est constituée d'un ensemble périodique de nœuds $\mathbf{X}^n$ (ici $n = 2$) et d'un ensemble topologique périodique de segments $\mathbf{S}^n$ associé à $\mathbf{X}^n$ de telle façon qu'ils forment un réseau polyédrique (un segment est un intervalle joignant deux nœuds voisins) (figure 2.1).

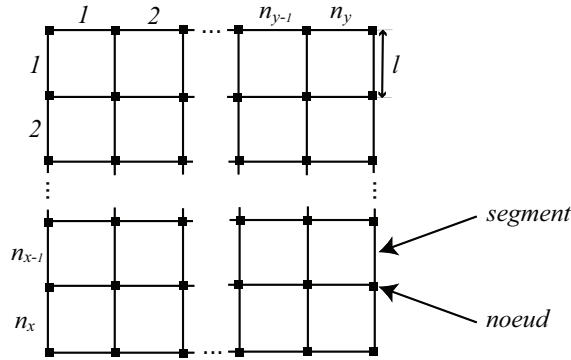


Figure 2.1: *Squelette du réseau capillaire rectangulaire 2D.*

Un capillaire cylindrique (tube) est associé à chaque segment de la base de manière à ce que le segment constitue son axe. Chaque capillaire représente un pore (Figure 2.2).

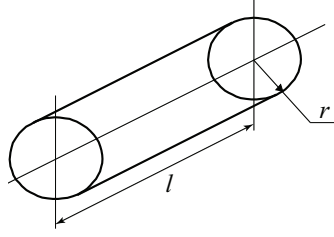


Figure 2.2: *Un pore du réseau capillaire*

Les rayons des capillaires sont aléatoires. La connexion des capillaires dans les nœuds du réseau est effectuée de façon naturelle (voir la figure 2.3 pour les cas $2D$ et $3D$). Un tel ensemble de capillaires connectés est appelé un **réseau capillaire**.

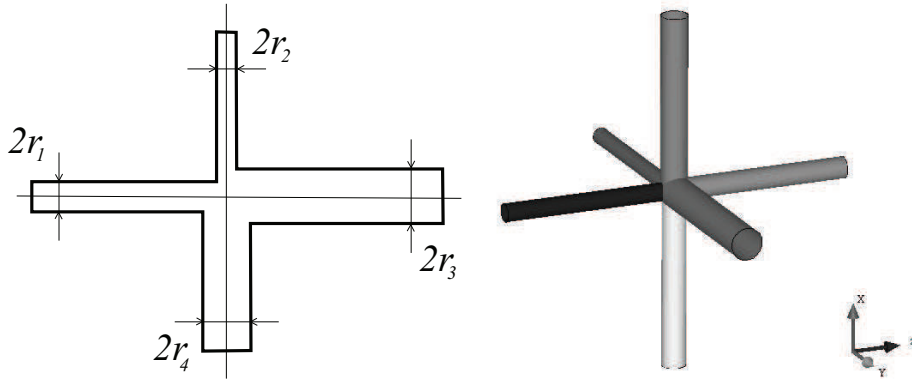


Figure 2.3: *Croisement des capillaires dans un nœud, 2D et 3D cases*

Ce réseau capillaire est caractérisé par les paramètres géométriques suivants : les longueurs de segments $\{l_i^*\}$; les nombres de coordination $\{m_i\}$ du réseau $\mathbf{X}^n$, qui est égale au nombre de capillaires connectés dans un nœud ; la fonction aléatoire de rayons des pores $\{r_i(x)\}$; les longueurs des pores $\{l_i\}$.

On admet ici que pour tous les nœuds : $m_i = m = \text{const}$ ($m = 4$ en $2D$ et $m = 8$ en $3D$).

Du fait des intersections dans les nœuds, la longueur de chaque capillaire est plus petite que la valeur l . Néanmoins, pour des milieux de faible porosité dont les pores sont suffisamment étroits, on admet que le volume

des intersections dans un nœud est négligeable. Alors les longueurs des pores coïncident presque avec l .

Soient n_x et n_{nx} le nombre de pores d'entrée et le nombre de nœuds d'entrée ($n_{nx} = n_x + 1$). Pour réduire le nombre de paramètres du système et sans perdre la généralité des résultats, on supposera que $n_x = n_y$. La troisième dimension est toujours inférieure à n_x .

On suppose également que le réseau capillaire contient suffisamment de pores pour représenter un VER du milieu poreux réel.

Les pores sont répartis en espace de telle façon que les valeurs des rayons de pores $r(x, y, z)$ représentent une réalisation de la fonction aléatoire stationnaire dont la valeur moyenne et la covariation sont données a priori.

2.1.2 Propriétés d'un milieu aléatoire stationnaire

Les réalisations d'un milieu poreux à l'aide des champs aléatoires s'effectuent par la spécification d'une ou plusieurs propriétés du milieu poreux par ces champs. La porosité ou la perméabilité peuvent être ces propriétés basiques comme également d'autres caractéristiques du milieu.

Dans ce travail, on décrit et utilise les milieux poreux stochastiquement stationnaires. Cela signifie que toutes les caractéristiques du milieu poreux sont macroscopiquement homogènes. Autrement dit, au niveau microscopique des caractéristiques peuvent avoir une grande modification d'un point à l'autre, mais au niveau macroscopique, elles sont homogènes.

Comme d'habitude, nous considérons la stationnarité en termes du moment statistique de deuxième ordre. Un processus stationnaire a donc une espérance mathématique constante en espace et une fonction de covariance entre deux points de l'espace qui ne dépend que de la distance r entre ces points. La fonction de covariance sera notée $C(r)$. Les définitions plus précises sont les suivantes.

Soit $\vec{x} = (x_1, \dots, x_n)$ un point dans l'espace à n -dimensions $\mathbb{R}^n$. Une fonction aléatoire $\xi(x_1, \dots, x_n)$ sur $\mathbb{R}^n$ représente une variable aléatoire à chaque point $\vec{x}$. Une fonction aléatoire est aussi appelée un champ aléatoire ou un processus stochastique.

La fonction moyenne d'un processus stochastique est définie comme :

$$\mu(\vec{x}) = E[\xi(\vec{x})]$$

où $E[\cdot]$ est l'espérance mathématique.

Si $E[\xi^2(\vec{x})]$ est finie pour tout $\vec{x}$, alors la fonction de covariance est définie comme :

$$C(\vec{x}_1, \vec{x}_2) = E \left[(\xi(\vec{x}_1) - \mu(\vec{x}_1)) (\xi(\vec{x}_2) - \mu(\vec{x}_2)) \right]$$

où $\vec{x}_1, \vec{x}_2 \in \mathbb{R}^n$.

Un processus stochastique est appelé stationnaire de deuxième ordre si les conditions suivantes sont satisfaites :

1. la moyenne est indépendante de la position du point $\vec{x}$ dans l'espace $\mathbb{R}^n$:

$$E[\xi(\vec{x})] = \mu(\vec{x}) = \mu = \text{const}$$

2. la fonction de covariance dépend seulement de la différence vectorielle $(\vec{x}_1 - \vec{x}_2)$, et ne dépend pas de chaque vecteur $\vec{x}_1, \vec{x}_2$ séparément :

$$C(\vec{x}_1, \vec{x}_2) = C(\vec{x}_1 - \vec{x}_2) = C(\vec{h})$$

Dans le cas où $\vec{x}$ est un paramètre spatial, le terme d'homogénéité stochastique est souvent utilisé au lieu de stationnarité.

Un processus stationnaire de deuxième ordre est appelé isotrope si la fonction de covariance ne dépend pas de la direction du vecteur de distance $\vec{h} = \vec{x}_1 - \vec{x}_2$, mais seulement de la longueur de ce vecteur $r = |\vec{h}|$. Alors nous pouvons écrire :

$$C(\vec{h}) = C(r)$$

Une fonction continue et symétrique est une covariance autorisée ou admissible d'un champ aléatoire stationnaire si et seulement si elle est non négative, i.e. :

$$\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \lambda_i \lambda_j C(\vec{x}_i - \vec{x}_j) \geq 0$$

pour tout entier $n > 0$ et pour n'importe quel nombre λ_i .

La fonction de densité spectrale $S(\vec{\omega})$ est définie comme la transformation inverse de Fourier de la fonction de covariance $C(\vec{h})$:

$$C(\vec{h}) = \int_{\mathbb{R}^n} S(\vec{\omega}) e^{i\vec{\omega} \cdot \vec{h}} d\vec{\omega}, \quad S(\vec{\omega}) = \frac{1}{(2\pi)^n} \int_{\mathbb{R}^n} C(\vec{h}) e^{-i\vec{\omega} \cdot \vec{h}} d\vec{h}$$

Ci-dessous quelques exemples de fonctions de covariance isotrope à deux dimensions sont présentés [Mantoglou & Wilson, 1982] :

- * fonction exponentielle $C(r) = \sigma^2 \exp(-br)$
- * fonction double exponentielle $C(r) = \sigma^2 \exp(-b^2 r^2)$
- * fonction de Bessel 1 $C(r) = \sigma^2 K_1(br)$
- * fonction de Bessel 2 $C(r) = \sigma^2 \exp(-b^2 r^2) J_0(ar)$

Les fonctions exponentielle, double exponentielle et sphérique peuvent être utilisées dans une, deux ou trois dimensions ($n = 1, 2$ ou 3). Les fonctions de Bessel sont utilisées seulement pour deux dimensions ($\mathbb{R}^2$).

2.2 Génération d'un milieu poreux aléatoire : méthode des bandes tournantes

La description détaillée des méthodes non conditionnelles se trouvent dans [Mantoglou & Wilson, 1982].

Comme mentionné ci-dessus, la méthode "non conditionnelle" utilise la valeur moyenne et la fonction de covariance comme données initiales.

Parmi les diverses méthodes pour produire la réalisation non conditionnelle pour un champ aléatoire, il y a la méthode des bandes tournantes et la technique de décomposition matricielle.

La méthode des bandes tournantes est devenue tout à fait populaire pour la génération des champs aléatoires de synthèse dans les sciences hydrologiques [Mantoglou & Wilson, 1982] , [Glimm & Sharp, 1991], [Mantoglou, 1987]. L'idée de la méthode des bandes tournantes consiste à produire des réalisations unidimensionnelles au lieu de produire des réalisations multidimensionnelles directement.

La technique de la matrice triangulaire inférieure-supérieure est basée sur le fait que la matrice de covariance peut être décomposée en un produit d'une matrice triangulaire inférieure et d'une matrice triangulaire supérieure.

Dans ce travail la méthode des bandes tournantes a été utilisée.

2.2.1 Principe de la méthode

La méthode a été développée par [Matheron, 1973].

Supposons que le champ à simuler soit stationnaire de deuxième ordre et isotrope et qu'en chaque point :

- 1) les valeurs du champ soient normalement distribuées,
- 2) la moyenne du champ égale à zéro,
- 3) la fonction de covariance $C(r)$ du champ est connue.

Une simple soustraction de la moyenne permet de vérifier la condition (2).

Au lieu de simuler le champ bi ou tridimensionnel directement, dans la méthode des bandes tournantes nous exécutons les simulations d'un champ unidimensionnel le long de plusieurs lignes. Pour cela, on utilise une fonction de covariance unidimensionnelle $C_1(r)$ qui peut être recalculée à partir de celle donnée à deux ou à trois dimensions. Si les champs unidimensionnels le long de chaque lignes sont construits, alors le champ bi ou tridimensionnel est calculé en chaque point comme une somme pondérée des valeurs unidimensionnelles.

Plus précisément l'algorithme est le suivant.

Soit Ω le domaine tridimensionnel sur lequel nous voulons générer une réalisation du champ aléatoire en engendrant des valeurs du champ aux points discrets du domaine.

Choisissons une origine arbitraire 0 dans Ω et engendrons des lignes passant par l'origine telles que les vecteurs direction correspondant soient uniformément distribués sur la sphère unitaire.

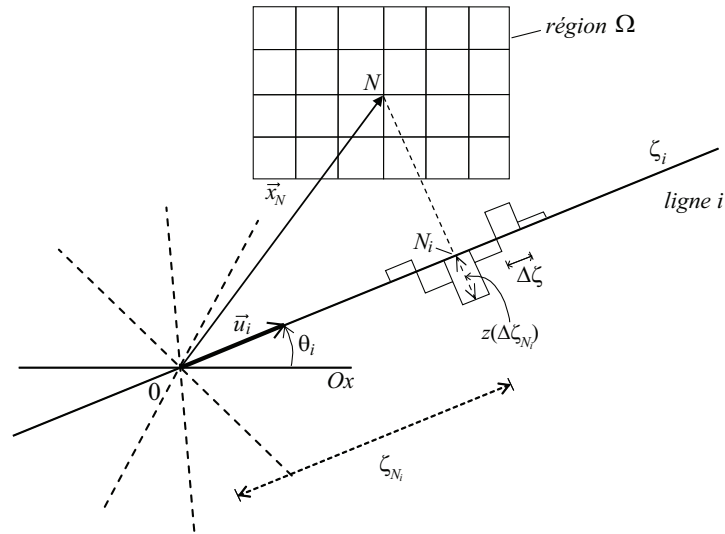


Figure 2.4: Représentation schématique de la construction du champ aléatoire et de la i -ème ligne de la méthode des bandes tournantes

Supposons qu'un champ unidimensionnel $z_i(\zeta)$ discret stationnaire est construit le long de chaque ligne i , ayant chacun une moyenne nulle et une

fonction de covariance $C_1(\zeta_i)$, où ζ_i est la coordonnée le long de la ligne i (fig.2.4).

Prenons un point M dans le domaine où nous voulons engendrer des valeurs du champ stochastique 3D. Ce point est caractérisé par son vecteur de position $\vec{x}_M$. Soit ζ_{Mi} la projection du vecteur $\vec{x}_M$ sur la ligne i . A chaque point ζ_{Mi} on aura donc les valeurs z_{Mi} des champs unidimensionnels. Alors la valeur du champ aléatoire 3D assignée au point N sera la moyenne arithmétique entre les valeurs z_{Mi} :

$$z(\vec{x}_M) = \frac{1}{\sqrt{L}} \sum_{i=1}^L z_i(\zeta_{Mi})$$

où L est le nombre de lignes.

Le champ aléatoire construit de telle façon a une moyenne égale à zéro.

2.2.2 Liaison entre la covariance 1D et celle 3D

Déterminons maintenant la fonction de covariance unidimensionnelle $C_1(\zeta_i)$.

Prenons deux points $\vec{x}_1$ et $\vec{x}_2$. La fonction de covariance du champ simulé est :

$$C(\vec{x}_1, \vec{x}_2) = E[z(\vec{x}_1) z(\vec{x}_2)] = \frac{1}{L} \sum_{i=1}^L \sum_{j=1}^L E[z_i(\zeta_{1i}), z_j(\zeta_{2j})]$$

Puisque les réalisations unidimensionnelles le long des deux lignes différentes sont indépendantes, la valeur $E[z_i(\zeta_{1i}), z_j(\zeta_{2j})]$ est égale à zéro partout sauf si $i \equiv j$. Par conséquent cette expression se réduit à :

$$C(\vec{x}_1, \vec{x}_2) = \frac{1}{L} \sum_{i=1}^L E[z_i(\zeta_{1i}), z_i(\zeta_{2i})] = \frac{1}{L} \sum_{i=1}^L C_1(|h_i|)$$

où $|h_i| = |\zeta_{2i} - \zeta_{1i}|$.

Pour $L \rightarrow \infty$, en utilisant la loi des grands nombres, cela devient :

$$C(r) = E[C_1(|h|)] = \oint C_1(\vec{h} \cdot \vec{u}) f(\vec{u}) d\vec{u}$$

où $\vec{h} = \vec{x}_2 - \vec{x}_1$; $\vec{u}_i$ est le vecteur directeur unitaire le long de la ligne i ; $\oint$ représente l'intégrale sur la sphère unitaire; $f(u)$ est la fonction de densité de probabilité du vecteur $\vec{u}$ qui est égale à $\frac{1}{4\pi}$ en 3D ($\frac{1}{2\pi}$ en 2D).

En 3D : $\vec{h} \cdot \vec{u} = r \cos \phi$ et $d\vec{u} = \sin \phi d\phi d\theta$ où $r \equiv |\vec{h}|$ et ϕ, θ sont des angles sphériques. Conséquent, on obtient [Glimm & Sharp, 1991] :

$$C(r) = \frac{1}{r} \int_0^r C_1(\zeta) d\zeta, \quad \zeta = r \cos \phi$$

La résolution de cette équation par rapport à C_1 conduit à l'expression suivante :

$$C_1(r) = \frac{d}{dr}(rC(r))$$

Ainsi la relation exprimant la fonction $C_1(r)$ à l'aide de la fonction $C(r)$ est très facile à appliquer.

Par exemple, pour la covariance exponentielle 3D $C(r) = \sigma^2 \exp(-br)$, la fonction $C_1(r)$ 1D correspondante est $C_1(r) = \sigma^2(1 - br) \exp(-br)$.

Bien que les formules définitives correspondent à la limite $L \rightarrow \infty$, en pratique le nombre de lignes peut être bien limité. Journal et Huijbregts [1978] ont montré qu'un groupe de 15 lignes, reliant les points médians des bords opposés d'un icosaèdre régulier, est adéquat pour des applications classiques. Pour des domaines bidimensionnels, l'expérience montre que 16 lignes devraient être suffisantes selon le degré d'exactitude désirée [Mantoglou & Wilson, 1982].

2.2.3 Génération d'une ligne de processus

Un des procédés pour produire les réalisations unidimensionnelles est la méthode spectrale (développée dans [Shinozuka & Jan, 1972]).

Notons que la fonction spectrale $S(\omega)$ est connue a priori si la fonction de covariance est donnée.

Soient (θ_i, φ_i) les angles directeurs des $\vec{u}_i$ de la ligne i . La densité spectrale unidimensionnelle $S_1^i(\omega)$ le long de la ligne i s'exprime par la relation suivante pour un champ isotrope :

$$S_1^i(\omega) = 2\pi\omega^2 S(\omega)$$

où $S(\omega)$ est la densité spectrale 3D.

Suivant [Rice, 1954] et [Shinozuka & Jan, 1972], si $C_1(\zeta)$ et $S_1(\omega)$ sont la fonction de covariance et la densité spectrale 1D, alors le champ 1D sur la

ligne i peut être généré comme suit :

$$z_i(\zeta) = 2 \sum_{k=1}^M [S_1(\omega_k) \Delta\omega]^{1/2} \cos(\omega'_k \zeta + \phi_k) \quad (2.1)$$

où ϕ_k sont des angles aléatoires indépendants uniformément distribués entre 0 et 2π , $\omega_k = (k - \frac{1}{2})\Delta\omega$, $\omega'_k = \omega_k + \delta\omega$ pour $k = 1, \dots, M$. La fréquence de discrétisation $\Delta\omega$ est définie comme $\Delta\omega = \Omega/M$, où M est le nombre d'harmoniques utilisés. Le paramètre $\delta\omega$ est une petite fréquence aléatoire supplémentaire introduite afin d'éviter une périodicité et uniformément distribuée entre $-\Delta\omega'/2$ et $\Delta\omega'/2$, où $\Delta\omega'$ est une fréquence telle que $\Delta\omega' \ll \Delta\omega$. [Shinozuka & Jan, 1972] ont prouvé que, quand $M \rightarrow \infty$, $\Omega \rightarrow \infty$ et $\Delta\omega \rightarrow 0$, le processus donné par (2.1) a une moyenne nulle et une fonction de covariance $C_1(\zeta)$.

2.2.4 Milieux générés par les bandes tournantes

L'algorithme des bandes tournantes a été réalisé sous la forme d'un code numérique développé par nos soins.

Plusieurs exemples de milieux poreux aléatoires ont été construits numériquement sous forme de réseaux capillaires.

Tous les réseaux capillaires construits sont composés de 150 capillaires de chaque côté x et y . En plus, on a ajouté des capillaires "entrants" (ou "sortants") pour tous les nœuds des bords ce qui a fait 152 capillaires le long de chaque axe.

Les rayons des capillaires ont été générés comme un champ aléatoire stationnaire de deuxième ordre dont les valeurs sont localisées aux centres géométriques des tubes (figure 2.5).

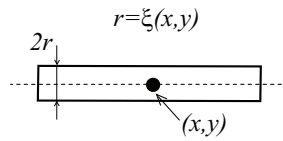


Figure 2.5: Rayon r d'un capillaire est la valeur d'un champ aléatoire ξ stationnaire d'ordre 2 associée au centre géométrique de ce capillaire.

Sur les graphiques des réseaux capillaires présentés ci-dessous, les valeurs des rayons des tubes r sont adimensionnées en divisant par le rayon maximal r_{max} .

Un exemple du VER d'un milieu poreux généré par les bandes tournantes est montré sur la Fig. 2.6.

La loi de distribution des rayons de pores est normale. La fonction de covariance $C(r)$ est exponentielle avec $\sigma = 1$ et $b = 1$, $C(r) = \exp(-r)$.

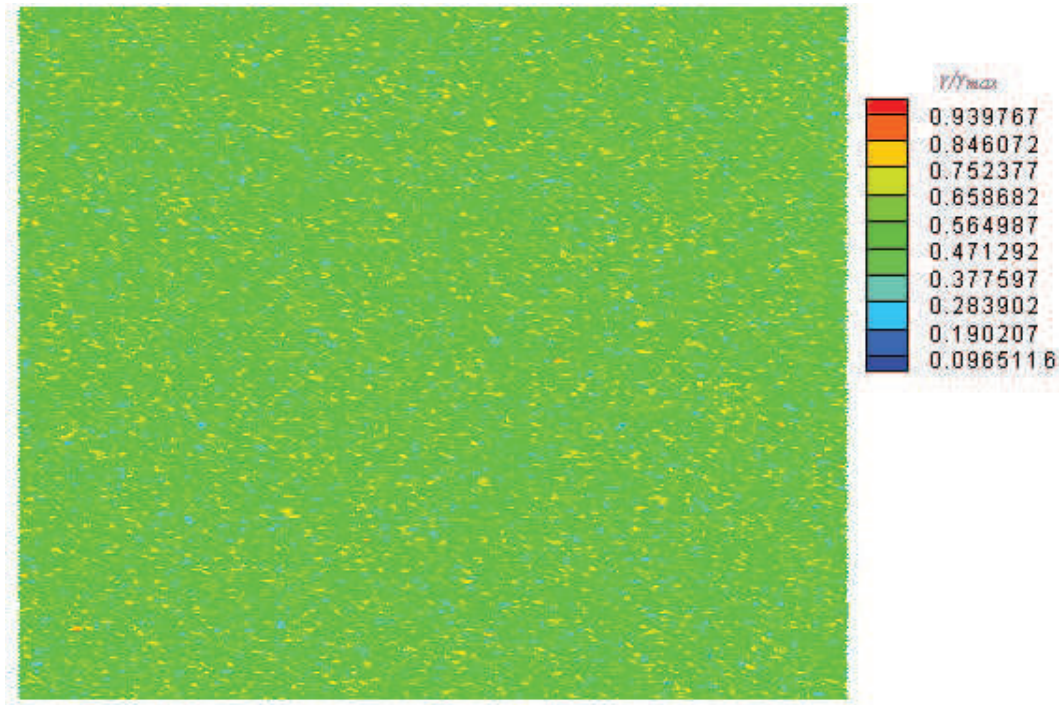


Figure 2.6: *Exemple d'un milieu aléatoire généré par les bandes tournantes*

2.3 Génération d'un milieu poreux aléatoire : méthode de krigeage

La méthode conditionnelle est décrite dans [Oh, 2003].

Cette méthode utilise quelques valeurs d'une réalisation du champ connues dans certains endroits (par exemple, les valeurs déjà mesurées sur le terrain). Elle peut aussi utiliser la fonction de covariance ou les autres fonctions statistiques des données. En d'autres termes, la simulation conditionnelle signifie la reconstruction d'un manque des données et a donc un certain rapport avec l'interpolation.

Dans ce travail on discutera la méthode d'interpolation spatiale connue sous le nom de "krigeage" (porte le nom du géologue sud-africain D.G. Krige).

Contrairement à toutes les autres méthodes, le krigeage nous permet de calculer l'erreur d'estimation. Si la précision des résultats doit être importante, le krigeage demeure la meilleure méthode à appliquer.

2.3.1 Essence de la méthode

Considérons une fonction aléatoire $\xi(\mathbf{x})$, où $\mathbf{x} = (x, y, z)$ en $\mathbb{R}^3$, et associons la au rayon des pores du champ généré. La moyenne μ du champ est constante dans l'espace mais inconnue :

$$\mu = E[\xi(\mathbf{x}_i)], \quad i = \overline{0, n}$$

Par contre la covariance spatiale est connue :

$$C(h) = Cov[\xi(\mathbf{x}), \xi(\mathbf{x} + h)]$$

Alors notre but est d'estimer la fonction $\xi(\mathbf{x})$ en un point $\mathbf{x}_0$ de l'espace à partir de valeurs connues de ξ en un certain nombre, n , de points environnants $\mathbf{x}_i$.

Recherchons l'estimateur de $\xi(\mathbf{x}_0)$ sous la forme d'une combinaison aléatoire linéaire entre tous les autres points donnés :

$$\xi^*(\mathbf{x}_0) = \alpha_0 + \sum_{i=1}^n \alpha_i \xi(\mathbf{x}_i)$$

Le problème consiste donc à déterminer les coefficients de pondération α_i de chacun des points environnants. Le krigeage choisit les poids de telle façon que l'erreur moyenne entre l'estimateur et le champ réel soit nulle, et la variance d'erreur soit minimale. Autrement dit :

$$0 = E [\xi(\mathbf{x}_0) - \xi^*(\mathbf{x}_0)] = -\alpha_0 + \mu \left(1 - \sum_{i=1}^n \alpha_i \right) \quad \text{pour } \forall \mu \quad (2.2)$$

$$\sigma_E^2 \equiv Var [\xi(\mathbf{x}_0) - \xi^*(\mathbf{x}_0)] \rightarrow \min \quad (2.3)$$

Equation (2.2) n'est réalisable que dans le cas où :

$$\alpha_0 = 0, \quad \sum_{i=1}^n \alpha_i = 1$$

Par conséquent l'estimateur linéaire de $\xi(\mathbf{x}_0)$ a la forme suivante :

$$\xi^*(\mathbf{x}_0) = \sum_{i=1}^n \alpha_i \xi(\mathbf{x}_i)$$

La variance de l'erreur d'estimation devient :

$$\sigma_E^2 = \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^n a_i a_j C(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j)$$

La minimisation de la variance de l'erreur d'estimation vérifiant la contrainte $\sum_{i=1}^n \alpha_i = 1$ conduit au système linéaire suivant pour les α_i [Korn & Korn, 1978] :

$$\sum_{j=1}^n \alpha_j C(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j) + \lambda = C(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_0), \quad i = \overline{1, n}$$

où λ est le multiplicateur de Lagrange introduit pour assurer la contrainte sur les paramètres α_i .

Ce système de n équations par rapport à n variables ($n - 1$ coefficients indépendants α_i et λ) est fermé.

2.3.2 Exemples des milieux générés par krigeage

L'algorithme de krigeage, réalisé à l'aide du software GOCAD, a été utilisé dans les simulations afin de les comparer avec les résultats générés par notre propre code numérique basé sur la méthode des bandes tournantes.

Rappelons que le rayon des capillaires r est adimensionnée par rapport à sa valeur maximale r_{max} .

Pour toutes les constructions d'un réseau capillaire par le logiciel GOCAD la loi de distribution des rayons de pores est Gaussienne.

Un exemple du VER d'un milieu poreux construit sous la forme d'un réseau capillaire par krigeage est présenté sur la fig. 2.7.

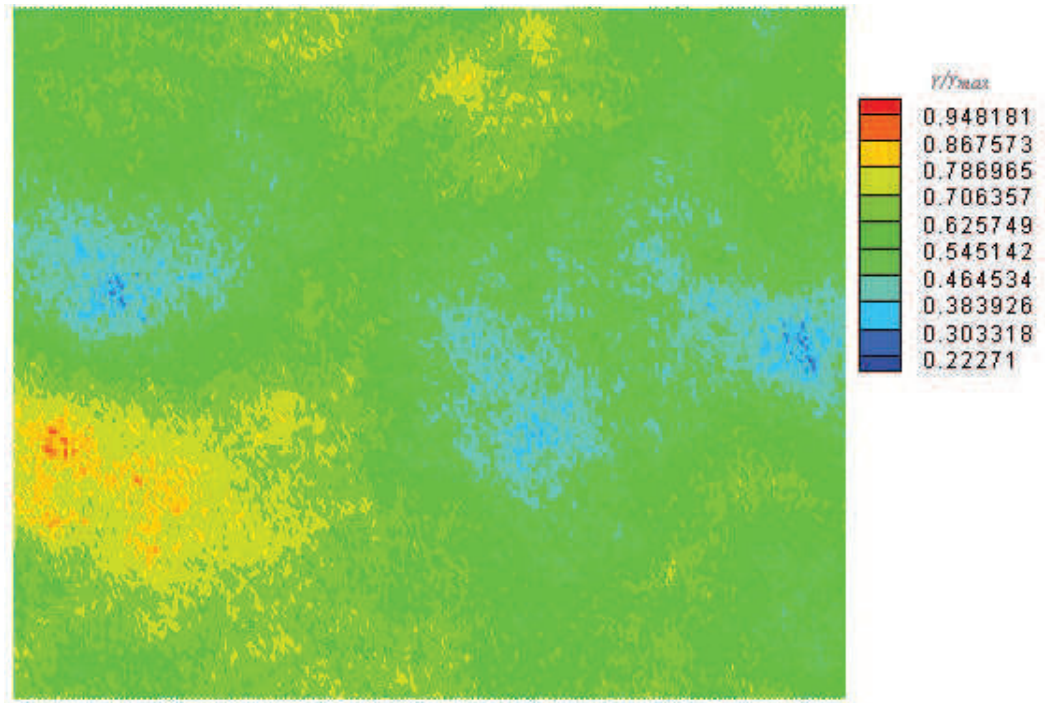


Figure 2.7: *Exemple d'un VER aléatoire généré par krigeage (logiciel GOCAD)*

On peut remarquer que le krigeage, étant une procédure d'interpolation, i.e. : de lissage des données, conduit à des champs ayant une longueur de corrélation (covariance) suffisamment grande. Les champs faiblement corrélés

sont préférentiellement générés par la méthode des bandes tournantes.

2.4 Détermination numérique du facteur d'augmentation de vitesse

Les modèles de milieux générés suivant les algorithmes décrits auparavant ont été utilisés dans la modélisation du transport des particules effectuée à l'échelle de chaque pore et nous a permis d'obtenir les résultats quantitatifs pour le facteur d'augmentation de vitesse, ainsi que d'analyser son comportement qualitatif.

2.4.1 Structure microscopique du champ de transport. *P-cluster*

Soit Ω l'ensemble total de pores. Tout l'ensemble de pores peut être divisé en deux sous-ensembles qui seront appelés les *clusters* : i) le *W-cluster* (Ω_w) qui correspond aux pores les plus étroits ($r < R$) où seule l'eau pure circule ; et ii) le *P-cluster* (Ω_p) constitué de pores larges ($r > R$) connectés dans lequel les particules colloïdales sont présentes et peuvent se mouvoir (fig. 2.8).

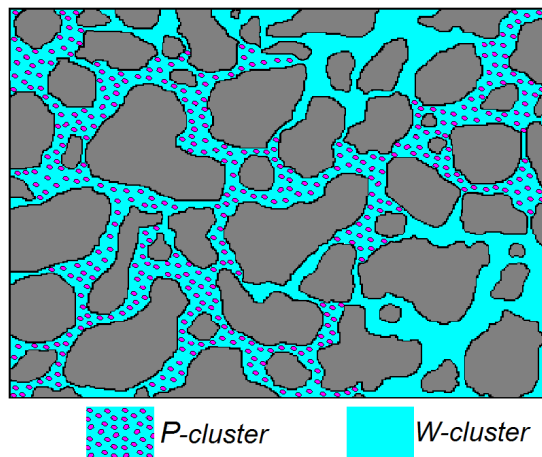


Figure 2.8: *Deux clusters de pores*

Il apparaît, de ce dessin schématisé, qu'une partie significative des pores

larges ne peut pas être occupée par des particules, car ces pores sont bloqués par des pores-voisins étroits. Cet effet est typique dans la théorie de percolation. Grâce à cet effet, l'augmentation de la vitesse des particules sera réduite.

L'ensemble total de particules dans le milieu entier est appelé $\mathcal{P}$, l'ensemble des particules dans le pore i est $\mathcal{P}_i$. Le volume d'un pore et d'une particule est noté par v et v_p respectivement. Soit u la vitesse locale réelle dans un pore donné et u_p est la vitesse locale de transport d'une particule donnée.

Soit c la concentration locale des particules dans un pore qui est définie comme le volume de toutes les particules présentes dans ce pore divisé par le volume de ce pore : $c_i = \sum_{j \in \mathcal{P}_i} v_{pj} / v_i$.

Admettons les hypothèses suivantes :

- i) toutes les particules sont identiques, sphériques et ont le même rayon R ; cette supposition est admissible lorsque la distribution des rayons de pores est beaucoup plus grande que celle des particules ;
- ii) la vitesse de transport d'une particule est égale à la vitesse moyenne du liquide portant dans le pore, ainsi dans un pore donné toutes les particules ont la même vitesse ;
- iii) la concentration locale c des particules est identique dans chaque pore où elles sont présentes ;
- iv) les particules peuvent réduire la vitesse de l'eau à cause d'une augmentation de la viscosité effective - une telle décélération concernera donc aussi bien l'eau que les particules elles-mêmes.

En pratique, on ne peut mesurer que la concentration totale des particules C qui est définie comme le rapport du volume des particules au volume total de tous les pores. La concentration totale et locale sont reliées par une formule qui suit des hypothèses ci-dessus :

$$c = C \sum_{i \in \Omega} v_i / \sum_{j \in \Omega_p} v_j \quad (2.4)$$

2.4.2 Facteur d'augmentation de vitesse et structure du milieu poreux

La définition générale du facteur d'augmentation ω est donnée à travers le rapport de la vitesse réelle macroscopique des particules U_p et de la vitesse réelle macroscopique de l'eau U :

$$\omega \equiv \frac{U_p}{U} \quad (2.5)$$

Les vitesses macroscopiques entrent dans les équations macroscopiques de conservation de la masse des particules et de l'eau (1.1) et sont donc celles homogénéisées à travers le volume (d'un VER).

La vitesse totale homogénéisée et la vitesse homogénéisée des particules (homogénéisée sur le volume) sont :

$$U = \frac{\sum_{\Omega} u_i v_i}{\sum_{\Omega} v_i}, \quad U_p = \frac{\sum_{\mathcal{P}} u_{pj} v_{pj}}{\sum_{\mathcal{P}} v_{pj}}$$

Dans le cadre de l'hypothèse admise précédemment, on obtient :

$$\sum_{j \in \mathcal{P}} u_{pj} v_{pj} = \sum_{i \in \Omega_p} u_i \sum_{j \in \mathcal{P}_i} v_{pj} = \sum_{i \in \Omega_p} u_i v_i$$

Alors, pour le facteur d'augmentation, on a :

$$\omega = \frac{\sum_{i \in \Omega_p} u_i v_i \sum_{j \in \Omega} v_j}{\sum_{j \in \Omega} u_j v_j \sum_{i \in \Omega_p} v_i} \quad (2.6)$$

2.4.3 Facteur d'augmentation vectoriel

Dans le cas 3D, la définition (2.5) doit être précisée en prenant en compte le fait que la vitesse macroscopique est un vecteur. Il semble donc nécessaire d'introduire un facteur d'augmentation vectoriel :

$$\omega = \{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}, \quad \omega_i = \frac{U_{pi}}{U_i} \quad (2.7)$$

(sans sommation sur des indices répétés), où U_i est la $i^{\text{ème}}$ composante du vecteur vitesse $\mathbf{U}$ homogénéisée sur l'ensemble de tous les pores ; U_{pi} est

la $i^{\text{ème}}$ composante du vecteur vitesse des particules $\mathbf{U}_p$ homogénéisée sur l'ensemble des pores occupés par les particules.

Suivant les conditions aux limites formulées dans la section 2.4.5, l'écoulement macroscopique est unidirectionnel (selon l'axe x_1), alors dans ce cas il est suffisant de déterminer une seule composante ω_1 du facteur d'augmentation. Pour calculer deux vitesses U_1 et U_{p1} il est suffisant d'homogénéiser les composantes correspondantes de la vitesse locale à travers un sous-ensemble de pores orientés selon x_1 .

Soit Ω_1 l'ensemble de tous les pores orientés selon x_1 et Ω_{p1} l'ensemble de pores occupés par des particules et orientés selon x_1 .

Alors le facteur d'augmentation est défini de façon similaire à (2.6) :

$$\omega_1 = \frac{\sum_{i \in \Omega_{p1}} u_i v_i \sum_{j \in \Omega_1} v_j}{\sum_{j \in \Omega_1} u_j v_j \sum_{i \in \Omega_{p1}} v_i} \quad (2.8)$$

Ces formules peuvent être utilisées si on sait calculer le champ des vitesses locales associées à chaque pore et détecter le P -cluster des pores dans lesquels les particules sont présentes.

2.4.4 Détection du P -cluster

Pour une valeur donnée du rayon des particules R et pour un champ de rayons de pores donné, la détection du P -cluster peut être effectuée numériquement, utilisant la procédure suggérée par [Entov *et al*, 1975] et développée par [Panfilova, 2003] dans le cas de plusieurs types de particules. L'algorithme est le suivant :

i) Un identificateur $c1$ est assigné à chaque pore où $r > R$ (c signifie "colloïde").

ii) Détection de tous les pores $c1$ connectés et attribution d'un identificateur $c2$. Un pore $c1$ est appelé connecté s'il a au moins un pore voisin de type $c1$.

iii) Détection de tous les pores $c2$ dans la section d'entrée du milieu et attribution de l'identificateur " $c2_{inl}$ ".

iv) Détection de tous les pores $c2$ connectés avec $c2_{inl}$ et attribution de l'identificateur $c3$.

v) Détection de tous les pores $c3$ dans la section de sortie du milieu et attribution de l'identificateur $c3_{out}$.

vi) Détection de tous les pores $c2$ connectés avec $c3_{out}$ et attribution de l'identificateur c .

Le système obtenu de pores c représente un P -cluster continu entre l'entrée et la sortie du milieu.

L'algorithme de ce type est purement géométrique et ne dépend pas du problème d'écoulement en milieu.

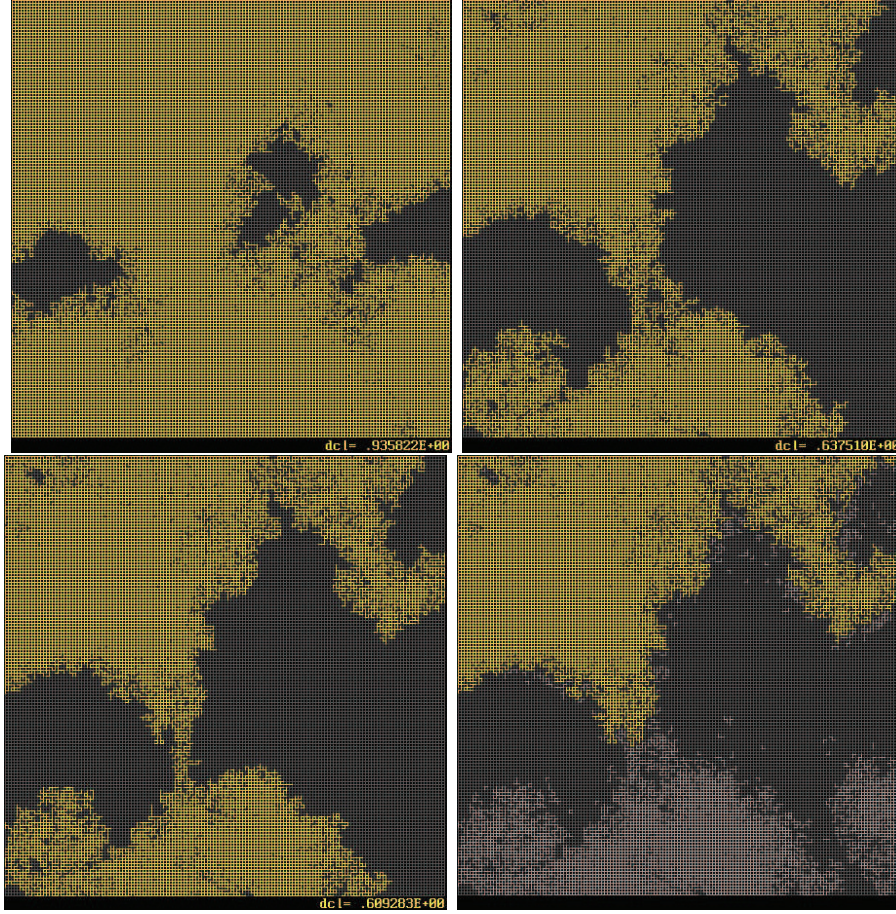


Figure 2.9: P -clusters pour les valeurs de $R / \langle r_p \rangle$ différentes : en haut : à gauche $R / \langle r_p \rangle = 0.795$, à droite $R / \langle r_p \rangle = 0.973$, en bas : à gauche $R / \langle r_p \rangle = 0.983$, à droite $R / \langle r_p \rangle = 0.993$ (il n'y a plus de cluster connecté)

2.4.5 Modèle de transport dans un réseau aléatoire

Pour modéliser le transport des particules à l'échelle du pore dans le réseau capillaire construit, on a utilisé l'algorithme numérique développé par [Panfilova, 2003].

Dans un réseau généré tel que décrit dans la section 2.3, on a analysé une modification de l'écoulement monophasique stationnaire incompressible en admettant que la viscosité du fluide puisse être différente dans les différents pores. Dans les pores occupés par l'eau, la viscosité du fluide est celle de l'eau pure ($\mu(0)$), tandis qu'elle est égale à la viscosité effective d'une suspension colloïdale ($\mu(C)$) dans les pores du P -cluster où les particules sont présentes et se déplacent. C est la concentration totale des particules. Ainsi la valeur de la viscosité est un indicateur de la présence ou non des particules dans chaque pore.

L'écoulement du fluide doit être défini dans chaque pore-cylindre et dans chaque nœud de croisement des pores.

A l'intérieur de chaque pore (tube), la vitesse d'écoulement peut s'exprimer par la loi de Poiseuille :

$$u = \frac{\Delta P}{l_p} \frac{\gamma r^2}{\mu}$$

où u est la vitesse moyenne dans la section transversale du pore ; ΔP est la chute de pression entre les extrémités du tube ; l_p est la longueur du tube ; r est son rayon ; γ est un paramètre de forme du tube (pour les capillaires de section transversale circulaire $\gamma = 1/8$) ; μ est la viscosité dynamique du fluide dans le pore.

La conservation de l'écoulement dans chaque nœud donne la loi de Kirchhoff qui implique que la somme des flux entrants dans le nœud est égale à la somme des flux sortants :

$$\sum_i r_i^2 u_i = 0$$

avec l'addition sur tous les capillaires croisés dans le nœud. En substituant la vitesse u_i par son expression dérivée de la loi de Poiseuille, on obtient :

$$\sum_i a_i \Delta P_i = 0; \quad a_i = \frac{\gamma r_i^4}{l_p \mu} \quad (2.9)$$

où $a(r)$ est le coefficient de résistance hydraulique tel que : $a_i = a(r_i)$.

Le domaine a la forme d'un parallélogramme 3D et représente un VER du milieu poreux. Ainsi les conditions aux limites doivent présenter la symétrie de certaines limites typiques pour un problème cellulaire.

Les conditions aux limites spécifient donc l'entrée du fluide à travers une face à la pression constante P_a , sa sortie à travers la face opposée à la pression constante P_b , et l'imperméabilité (la symétrie) des faces latérales. Ces conditions déterminent un écoulement macroscopique monodimensionnel.

2.4.6 Facteur d'augmentation exprimé à travers le champ de pression

En utilisant la formule de Poiseuille pour un pore, on obtient pour le facteur d'augmentation à partir de (2.8) :

$$\omega_1 = \frac{1}{\mu(C)} \frac{\sum_{i \in \Omega_{p1}} r_i^4 \Delta P_i \sum_{j \in \Omega_1} r_j^2}{\sum_{j \in \Omega_1} \frac{r_j^4}{\mu_j} \Delta P_j \sum_{i \in \Omega_{p1}} r_i^2} \quad (2.10)$$

où μ_j est soit $\mu(0)$ en W -pores, soit $\mu(C)$ en P -pores.

Pour utiliser cette formule, il faut savoir calculer le champ de pression dans les nœuds du réseaux et la viscosité effective de la suspension colloïdale.

2.4.7 Viscosité effective de la suspension colloïdale

La viscosité effective du liquide augmente lorsque le liquide entraîne des particules solides suspendues. Pour le cas où toutes les particules sont des ellipsoïdes identiques dont les demi-axes sont ξ and $\eta = \zeta$, la viscosité effective est calculée à partir de la formule d'Einstein [Landau & Lifshitz, 1988] :

$$\mu = \mu_0 (1 + Ac), \quad c \equiv \frac{4}{3} \pi \xi \eta^2 n \quad (2.11)$$

où μ_0 est la viscosité du liquide pur ; n est le nombre de particules dans un volume unitaire ; pour des particules sphériques, c est la concentration volumique locale des particules dans un pore ; le paramètre semi-empirique A dépend du rapport ξ/η comme le montre la figure 2.10.

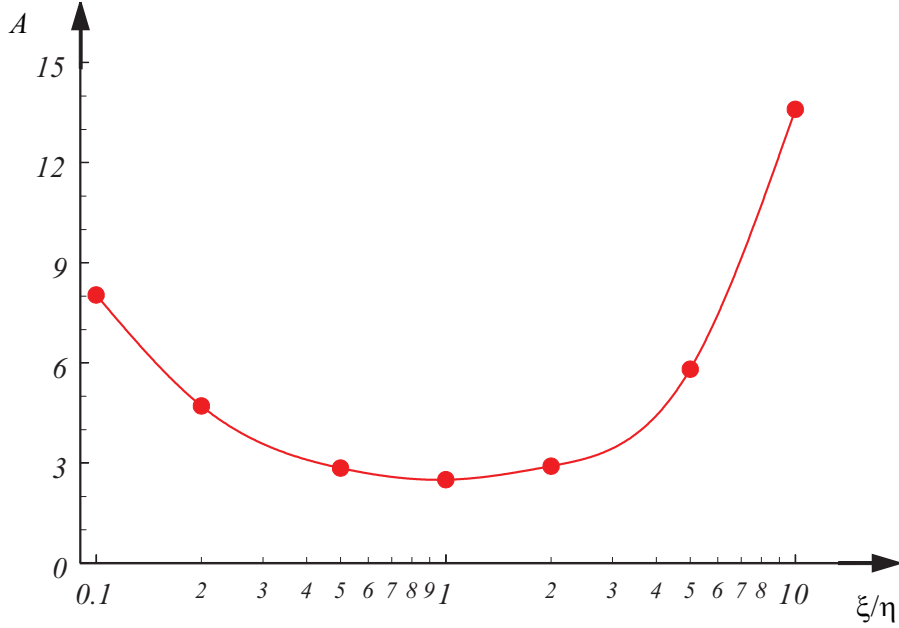


Figure 2.10: Paramètre A en fonction du rapport entre les demi-axes d'une particule ξ/η . Les points représentent les données d'après [Landau & Lifshitz, 1988] ; la ligne solide représente la meilleure approximation.

2.4.8 Calcul du champ de pression

On peut réécrire pour le nœud (i, j) la relation suivante :

$$a_{i-\frac{1}{2},j}(p_{i-1,j} - p_{i,j}) + a_{i,j-\frac{1}{2}}(p_{i,j-1} - p_{i,j}) + \quad (2.12)$$

$$a_{i+\frac{1}{2},j}(p_{i+1,j} - p_{i,j}) + a_{i,j+\frac{1}{2}}(p_{i,j+1} - p_{i,j}) = 0 \quad (2.13)$$

où $a_{i-\frac{1}{2},j}$ est la valeur du coefficient a affecter au pore dont le centre est $\{(i - 1/2)\Delta h, j\Delta h\}$, avec $\Delta h = l_p$; analoguement pour $a_{i+\frac{1}{2},j}$ etc.

Cette équation peut être considérée comme un schéma centré de la discrétisation en différences finies de l'équation différentielle de Laplace avec un coefficient variable $a(\vec{x})$:

$$\text{div}(a(\vec{x})\text{grad}P) = 0$$

L'ordre de cette approximation est $O(\Delta h^2)$.

Ainsi, l'analyse de l'écoulement du fluide est réduite à la solution numérique de l'équation de Laplace.

La solution numérique de cette équation avec des conditions aux limites formulées dans la section 2.4.5 peut être obtenue par des méthodes standards. En particulier, dans notre travail, on a utilisé une des méthodes itératives de changement des directions, plus précisément "le schéma longitudinal-transversal de Peaceman-Rachford" ([Samarskii, 1971], [Samarskii, 1987]).

Dans ce schéma, on examine l'équation de Laplace comme la limite d'une équation parabolique :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \text{div} (a(\vec{x}) \text{grad} P)$$

(où t est un temps fictif) dont l'équivalent discret est :

$$(\Lambda_1 + \Lambda_2) P^{j+1/2} = \frac{P^{j+1} - P^j}{\Delta t}, \quad P^{j+1/2} = \frac{1}{2} (P^j + P^{j+1})$$

où l'indice supérieur j correspond à la discrétisation dans le temps fictif ; Λ_i est l'approximation différentielle de l'opérateur $\frac{\partial}{\partial x_i} \left(a \frac{\partial}{\partial x_i} \right)$.

Le temps discret t joue le rôle d'un compteur des iterations.

Le dernier schéma peut être présenté sous la forme équivalente :

$$\frac{1}{2} (\Lambda_1 P^{j+1/2} + \Lambda_2 P^j + \Lambda_1 P^{j+1/2} + \Lambda_2 P^{j+1}) = \frac{P^{j+1} - P^{j+1/2} + P^{j+1/2} - P^j}{\Delta t}$$

et peut être décomposé :

$$\begin{aligned} \Lambda_1 P^{j+1/2} + \Lambda_2 P^j &= \frac{P^{j+1/2} - P^j}{\Delta t/2}, \\ \Lambda_1 P^{j+1/2} + \Lambda_2 P^{j+1} &= \frac{P^{j+1} - P^{j+1/2}}{\Delta t/2}, \end{aligned}$$

ou

$$\left(\Lambda_1 - \frac{2}{\Delta t} \right) P^{j+1/2} = -\Lambda_2 P^j - \frac{P^j}{\Delta t/2}, \quad (2.14)$$

$$\left(\Lambda_2 - \frac{2}{\Delta t} \right) P^{j+1} = -\Lambda_1 P^{j+1/2} - \frac{P^{j+1/2}}{\Delta t/2} \quad (2.15)$$

Chacune de ces deux équations représente une équation récurrente dans le temps, dont (2.14) détermine les valeurs de pression selon les "lignes" parallèles à l'axe x_1 , tandis que (2.15) détermine les pressions selon les "colonnes" parallèles à l'axe x_2 . On applique donc ces deux schémas consécutivement l'un après l'autre.

Le schéma construit est stable pour tous les Δt et Δx et il a une précision $O(\Delta t^2 + \Delta x^2)$.

Comme résultat de ces simulations, on obtient le champ de pression déterminé dans chaque nœud du réseau.

2.4.9 Résultats de simulation du facteur d'augmentation

Sur les figures 2.11 et 2.12, on a présenté deux exemples de calcul du facteur d'augmentation de vitesse en fonction du rapport entre le rayon des particules colloïdales et le rayon moyen des pores du réseau ($\rho = R / \langle r \rangle$). En outre, ils varient en fonction de la concentration locale des particules colloïdales (c).

Les calculs, effectués sur deux réseaux capillaires différents, sont montrés sur les figures 2.6 et 2.7 respectivement.

Suivant ces résultats, on déduit que deux rayons critiques de particules existent : ρ_{cr1} et ρ_{cr2} . A partir de ρ_{cr1} l'accélération est remplacée par la décélération des particules, due à l'augmentation de la viscosité effective de la suspension. A partir de ρ_{cr2} le mouvement de particules devient impossible à cause de la rupture du P -cluster. Ainsi, ρ_{cr2} marque le seuil de percolation de la suspension. On voit que le second rayon critique des particules est proche du rayon moyen des pores.

La plus grande accélération est atteinte au voisinage du seuil de percolation.

En ce qui concerne la concentration des particules, le facteur d'augmentation de vitesse baisse pour les suspensions concentrées à cause de l'augmentation de leur viscosité effective.

L'inaccessibilité de certains pores réduit le volume accessible de pores, et donc leur connectivité. Ainsi, l'exclusion par taille peut conduire à une réduction brusque de la vitesse des particules, si le cluster accessible perd sa connectivité.

Les résultats quantitatifs sont du même ordre de grandeur que les données mesurées.

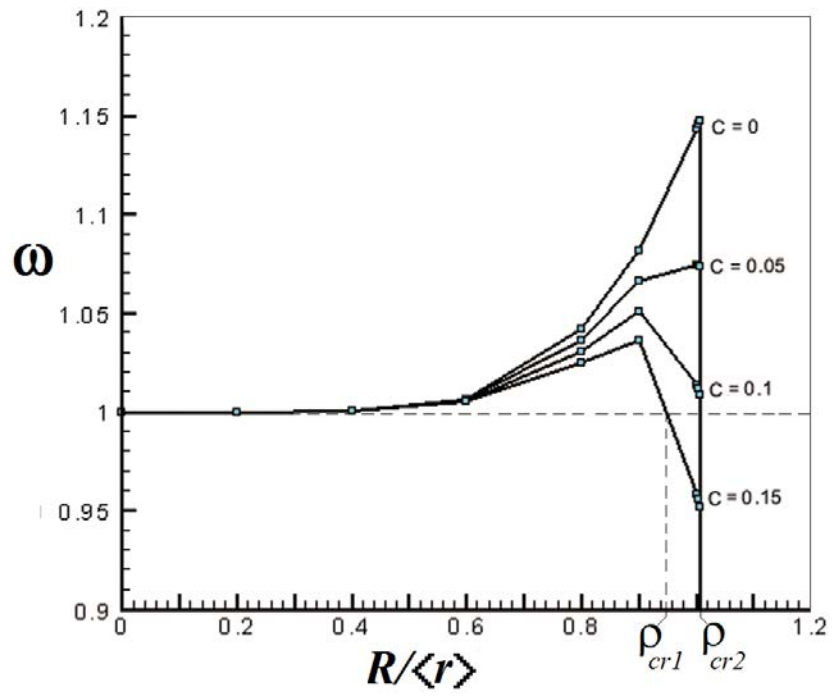


Figure 2.11: *Facteur d'augmentation de vitesse en fonction du rayon relatif des particules pour différentes concentrations locales. Milieu poreux faiblement corrélé.*

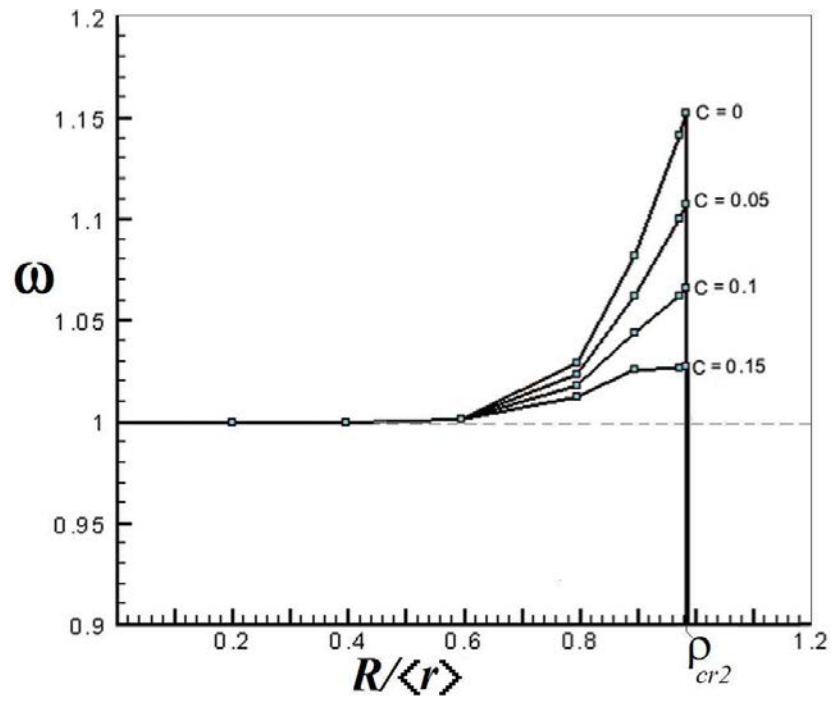


Figure 2.12: *Facteur d'augmentation de vitesse en fonction du rayon relatif des particules pour différentes concentrations locales. Milieu poreux corrélé.*

Chapitre 3

Modèles diphasiques de transport des colloïdes

Nous proposons une nouvelle approche phénoménologique pour décrire le transport des particules colloïdales en milieu poreux dont l'essence est de considérer la suspension colloïdale comme une phase hydrodynamique et donc de traiter le transport en termes d'un écoulement diphasique.

De cette façon, nous considérons l'eau pure et la suspension colloïdale comme étant deux phases thermodynamiques différentes. Cette idée vient du fait que le comportement de la suspension est proche de celui d'une phase qui a sa propre vitesse d'écoulement et qui occupe son propre sous-domaine (*P-cluster*). Ces propriétés ne sont pas satisfaites dans une solution monophasique.

Cependant le transport des particules colloïdales en milieu poreux n'est pas un processus complètement diphasique, car l'eau s'écoule assez librement à travers la 'suspension' sans respecter les interfaces entre les phases. Il s'agit donc d'un processus *pseudo-diphasique*, qui possède certaines propriétés d'une solution monophasique (une absence de vraies interfaces) et certaines propriétés d'un système diphasique (deux vitesses, clusters propres pour chaque substance).

La possibilité de pénétration de l'eau dans la suspension peut être interprétée en termes de miscibilité des composantes de chaque phase. Dans ce travail, on propose deux modèles limites de ce processus :

- (1) modèle diphasique immiscible : on suppose que l'eau est fortement gênée par la présence de la suspension colloïdale, comme si une interface impénétrable existait entre les deux clusters ;
- (2) modèle diphasique miscible en eau : on suppose que l'écoulement d'eau pure n'est pas du tout gêné par la présence de la suspension, comme si elle était infiniment soluble dans la suspension.

Ces deux cas sont évidemment extrêmes, car en réalité, l'eau a une liberté de pénétrer dans la suspension, mais cette liberté n'est pas infinie car les particules piégées bloquent son mouvement.

3.1 Modèle diphasique immiscible

3.1.1 Propriétés des phases

Rappelons, tout d'abord, certaines hypothèses de la section 2.4.1 :

i) la vitesse de transport d'une particule est égale à la vitesse moyenne du liquide portant dans le pore. Ainsi dans un pore donné, toutes les particules ont la même vitesse ;

ii) les particules peuvent réduire la vitesse de l'eau due à une augmentation de la viscosité effective - une telle décélération concernera donc aussi bien l'eau que les particules elles-mêmes.

En même temps, nous examinerons le cas général où les dimensions des particules peuvent être différentes. Par conséquent, le P -cluster devient variable en espace et dans le temps. En outre, la concentration locale des particules n'est plus supposée constante car elle peut diminuer sous l'effet de piégeage des particules par le milieu poreux.

Représentons maintenant notre système comme un système diphasique dont les phases sont constituées globalement de deux composantes chimiques. La première phase est appelée "l'eau pure" et contient une seule composante - H_2O . La seconde phase, appelée "la suspension", est composée de H_2O et des particules colloïdales considérées comme un soluté.

Chaque phase remplit son propre domaine (cluster). La phase eau pure occupe le W -cluster qui est un cluster de pores étroits, alors que la phase suspension occupe le P -cluster qui est constitué de pores plus larges que la dimension d'une particule.

La phase suspension est caractérisée par sa viscosité effective qui est calculée à partir de la théorie rhéologique des suspensions. Dans ce travail, nous adopterons la formule d'Einstein (section 2.4.7).

La condition d'immiscibilité signifie que l'interface entre les phases est impénétrable pour les composantes qui ne sortent jamais en dehors des limites de leur propre phase.

Le comportement des composantes peut être différent de celui de la phase correspondante, à cause du processus de diffusion et de différents mécanismes

de rétention des composantes dans les pores. Parmi ces mécanismes, seul le piégeage par filtration sera pris en considération dans ce travail.

On suppose que le piégeage peut être décrit par le modèle cinétique correspondant au *deep bed filtration hypothesis* [Logan, 2001], qui signifie que la vitesse de disparition des particules est proportionnelle à leur concentration dans la phase suspension. Le coefficient de proportionnalité est, à son tour, proportionnel à la vitesse de transport des particules.

La diffusion (dispersion) des particules sera ignorée, ce qui correspond aux cas où le nombre de Péclet caractéristique est grand.

3.1.2 Formulation mathématique

Les équations de conservation de la masse de chaque phase ainsi que de la composantes "particules" dans la phase "suspension" peuvent être formulées dans le cadre d'une approche phénoménologique basée sur la représentation du système comme une superposition de trois continus correspondant aux deux phases fluides et à une phase solide immobile :

$$\frac{\partial (\phi \rho_w (1 - S))}{\partial t} + \text{div} (\rho_w \vec{V}_w) = 0, \quad (3.1a)$$

$$\frac{\partial (\phi \rho_p c S)}{\partial t} + \text{div} (\phi \rho_p c S \vec{U}_p) = -\phi \rho_p \lambda_{tr} U_p c S, \quad (3.1b)$$

$$\frac{\partial (\phi \rho_s S)}{\partial t} + \text{div} (\rho_s \vec{V}_s) = -\phi \rho_p \lambda_{tr} U_p c S \quad (3.1c)$$

$$\vec{V}_s = -\frac{K k_s(S)}{\mu_s(c)} \text{grad}(P + \rho_s g z) \quad (3.1d)$$

$$\vec{V}_w = -\frac{K k_w(S)}{\mu_w} \text{grad}(P + \rho_w g z) \quad (3.1e)$$

où la première équation dans (3.1) est le bilan de masse de la phase "eau", la deuxième est le bilan de masse des particules colloïdales dans la phase "suspension", la troisième est le bilan de masse de toute la phase "suspension" dont la masse décroît due à la disparition de sa composante "particules". Les équations (3.1d) et (3.1e) sont les deux équations de conservation de moment (lois de Darcy) pour chaque phase.

Les indices w , s et p dénotent respectivement l'eau pure, la suspension colloïdale et les particules ; $S(x, t)$ est la saturation de la suspension colloïdale ; $c(x, t)$ est la concentration volumique locale des particules dans la suspension, mesurée en volume des particules colloïdales par volume de la suspension ; ρ et μ sont la masse volumique et la viscosité dynamique des phases ; $\vec{V}_w$ et $\vec{V}_s$ sont les vitesses de Darcy de l'eau pure et de la suspension ; $\vec{U}_p$ est la vitesse réelle des particules dans la suspension ; P est la pression ; z est la coordonnée le long de l'axe orientant la verticale ascendante ; ϕ est la porosité du milieu ; K est la perméabilité absolue du milieu poreux ; $k_w(S)$ et $k_s(S)$ sont respectivement les perméabilités relatives de l'eau pure et de la suspension colloïdale ; λ_{tr} est le coefficient de piégeage représentant la création ou la disparition des particules. La notation U_p signifie la valeur absolue du vecteur vitesse des particules.

Ainsi, le modèle diphasique introduit impérativement le concept de la perméabilité relative qui est nouveau dans la théorie du transport colloïdal. La détermination de ces fonctions représente un problème de recherche indépendant qui sera exposé dans la section 3.3.

Dans le cas où la diffusion/dispersion des particules est négligée, la vitesse des particules doit être égale à celle de la phase "suspension". Tenant compte que U_p est la vitesse réelle, tandis que V_s est la vitesse de Darcy, on obtient la formule de liaison entre elles :

$$V_s \equiv U_p S \phi \quad (3.2)$$

Si la diffusion est prise en considération, la différence entre V_p et V_s peut être définie à l'aide de la loi de Fick appliquée aux particules.

La masse volumique de la suspension ρ_s n'est que la moyenne arithmétique entre celle de l'eau et celle des particules :

$$\rho_s(c) = \rho_p c + \rho_w(1 - c) \quad (3.3)$$

La viscosité effective de la suspension est déterminée par la formule d'Einstein [Landau & Lifshitz, 1988], section 2.4.7, éq. (2.11).

Nous allons étudier le cas des faibles concentrations c . Dans ce cas, le dernier terme de (3.1b) est négligeable, alors cette équation peut être formulée de la manière suivante :

$$\frac{\partial (\phi \rho_s S)}{\partial t} + \text{div} \left(\rho_s \vec{V}_s \right) = 0 \quad (3.4)$$

3.1.3 Cas des fluides incompressibles

Négligeons la compressibilité très faible de l'eau, du milieu poreux et des particules, ainsi que la variation probable de la porosité à cause de la fermeture de certaines pores par des particules piégées. Supposons aussi que la masse volumique effective de la suspension soit pratiquement constante, ce qui correspond au cas de concentrations faibles en particules suivant (3.3). Alors on obtient un modèle simplifié de transport à partir de (3.1a), (3.1b) et (3.1c) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi \frac{\partial S}{\partial t} + \text{div} \vec{V}_s = 0 \\ -\phi \frac{\partial S}{\partial t} + \text{div} \vec{V}_w = 0 \\ \phi \frac{\partial (cS)}{\partial t} + \text{div} (\phi c S \vec{U}_p) = -\phi \lambda_{tr} U_p c S, \quad \vec{U}_p = \vec{V}_s / (S\phi) \end{array} \right. \quad (3.5)$$

En développant la dernière équation, on peut l'écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{U}_p \cdot \text{grad} c = -\lambda_{tr} U_p c \quad (3.6)$$

3.2 Modèle diphasique avec miscibilité

3.2.1 Modèle général de miscibilité

Le fait que l'eau peut pénétrer assez librement dans la domaine occupé par la suspension peut être reflété par les échanges entre les phases ou par la miscibilité de la composante H_2O dans les deux phases. Dans ce cas, le bilan de masse doit être satisfait pour chaque espèce chimique : " H_2O " et "particules" :

$$\begin{cases} \frac{\partial [\phi (\rho_w S(1-c) + \rho_w(1-S))]}{\partial t} + \text{div} (\rho_w \vec{V}_s^{H_2O}(1-c) + \rho_w \vec{V}_w) = 0 \\ \frac{\partial (\phi \rho_p c S)}{\partial t} + \text{div} (\phi \rho_p c S \vec{U}_p) = -\phi \rho_p \lambda_{tr} U_p c S, \quad \vec{U}_p = \vec{V}_s / (S\phi) \end{cases} \quad (3.7)$$

$$\vec{V}_s = -\frac{Kk_s(S)}{\mu_s(c)} \text{grad}(P + \rho_s g z) \quad (3.8)$$

$$\vec{V}_w = -\frac{Kk_w(S)}{\mu_w} \text{grad}(P + \rho_w g z)$$

où on a pris en considération le fait que les particules ne sont présentes que dans la phase "suspension".

La valeur $\vec{V}_s^{H_2O}$ est la vitesse (de Darcy) de l'écoulement de la composante H_2O dans la phase "suspension". Dans le cadre des hypothèses émises dans la section 3.1.1, elle est égale à la vitesse de la phase : $\vec{V}_s^{H_2O} = \vec{V}_s$. Cependant dans le cas le plus général, la vitesse $\vec{V}_s^{H_2O}$ peut être différente de $\vec{V}_s$.

Supposons que les perméabilités relatives soient définies.

Alors après l'élimination des vitesses (par substitution de (3.8) dans (3.7)), on obtient le système de deux équations avec 3 variables inconnues : c , S et P . Le système n'est pas fermé.

Pour la fermeture, il faut définir la loi de "miscibilité" de l'eau avec la suspension, où "la miscibilité" signifie le degré de liberté avec laquelle l'eau pure pénètre à travers l'interface entre le W -cluster et le P -cluster.

3.2.2 Modèle de miscibilité illimitée de l'eau

Dans le cas limite, on peut supposer que la pénétration de l'eau à travers l'interface avec la suspension est absolue, de telle façon que l'eau ne sente pas la présence de particules. Dans les équations (3.7) cette limite correspond aux petites concentrations c .

Notons qu'un tel système est caractérisé par l'indépendance de deux phases qui coexistent sans que l'une gêne l'autre.

Dans ce cas, la perméabilité relative de l'eau doit être égale à 1, et la vitesse $\vec{U}_s^{H_2O}$ doit être égale à la vitesse de l'eau pure :

$$\vec{U}_s^{H_2O} = \vec{U}_w, \quad k_w(S) \equiv 1$$

En examinant la limite $c \rightarrow 0$, on obtient donc des équations (3.7) et (3.8) :

$$\frac{\partial (\phi \rho_w)}{\partial t} + \text{div} (\rho_w \vec{V}_w) = 0, \quad (3.9)$$

$$\frac{\partial (\phi \rho_p c S)}{\partial t} + \text{div} (\phi \rho_p c S \vec{U}_p) = -\phi \rho_p \lambda_{tr} U_p c S, \quad \vec{U}_p = \vec{V}_s / (S \phi), \quad (3.10)$$

$$\vec{V}_w = -\frac{K}{\mu_w} \text{grad}(P + \rho_w g z), \quad (3.11)$$

$$\vec{V}_s = -\frac{K k_s(S)}{\mu_s(c)} \text{grad}(P + \rho_s g z) \quad (3.12)$$

Pour des phases incompressibles et un milieu non déformable, on obtient :

$$\text{div} \vec{V}_w = 0, \quad (3.13a)$$

$$\frac{\partial (c S)}{\partial t} + \text{div} (c S \vec{U}_p) = -\lambda_{tr} U_p c S \quad (3.13b)$$

Le modèle reste non fermé, car coexistence indépendante des deux phases détermine la non unicité de la saturation de la suspension.

3.2.3 Définition de la saturation du cluster

Dans le cas de transport des particules, la saturation du P -cluster est limitée par des conditions purement géométriques à l'échelle de pores qui ressortent de la définition du P -cluster.

Supposons que $f(r)$ et $\varphi(R)$ sont la densité de distribution des rayons des pores et des rayons des particules respectivement. Examinons les divers cas possibles. Supposons que le milieu soit macroscopiquement homogène.

Dans le cas le plus simple où les particules sont uniformes, la saturation du P -cluster est évidemment constante dans tout le domaine où les particules sont présentes. Elle dépend strictement du rapport entre le rayon unique des particules R et la distribution des rayons des pores. En particulier, dans le cas d'un faisceau de capillaires parallèles, la saturation est :

$$S = \frac{\int_R^\infty r^2 f(r) dr}{\int_0^\infty r^2 f(r) dr}$$

où $f(r)$ est la densité de distribution des rayons de pore.

Si les pores sont intersectés comme dans un réseau, alors la formule pour s doit tenir compte du fait qu'une partie des grands pores est bloquée par des pores étroits :

$$S = \frac{\int_R^\infty Y(r) r^2 f(r) dr}{\int_0^\infty r^2 f(r) dr} \quad (3.14)$$

où $Y(r)$ est la "densité de blocage" des pores larges, définie de telle façon que $Y(r)dr$ est la partie bloquée des pores dont les rayons sont compris entre r et $r + dr$.

La détermination de la fonction $Y(r)$ à partir de la microstructure du milieu poreux représente un problème de la théorie de percolation. La solution de ce problème a été obtenue en [Panfilov, 1991] par un processus de type "chaîne de Markov", où elle était définie à travers la porosité et le paramètre de branchement des pores (le nombre de pores qui se croisent dans un noeud).

Si les rayons des particules sont différents, alors pour chaque rayon R on a son propre seuil de pénétration. Ainsi, pour un faisceau de capillaires on obtient :

$$S = \frac{\int_0^\infty \varphi(R) \left(\int_R^\infty r^2 f(r) dr \right) dR}{\int_0^\infty r^2 f(r) dr}$$

Pour un réseau de capillaires, la définition de la fonction de blocage Y pour les deux ensembles statistiques superposés devient un problème plus compliqué, ce qui sort des objectifs du présent travail.

Dans tous les cas mentionnés, l'homogénéité du milieu signifie l'indépendance de la distribution $f(r)$ des coordonnées spatiales. Ceci détermine, dans les cas $R=const$, la saturation S constante dans l'espace. Pourtant, si les particules ne sont pas uniformes, le piégeage peut les filtrer en modifiant la distribution $\varphi(R)$. En particulier, on s'attend à ce que le nombre de grandes particules va diminuer, car elles sont plus faciles à piéger. Ainsi, la distribution $\varphi(R)$ dépend de x . Suite aux formules obtenues, la saturation ne sera pas constante non plus.

Dans le cadre de cette thèse, où on examine le cas de particules uniformes ou presque uniformes, nous supposons donc la relation de fermeture du type (3.14) qui détermine la saturation constante en espace et dans le temps.

Pour le cas de particules uniformes, la relation typique entre la saturation du P -cluster et le rayon relatif de la particule est présentée sur la figure 3.1. Cette courbe a été calculée numériquement sur la base de modèle statistique du milieu décrit dans le chapitre 2.

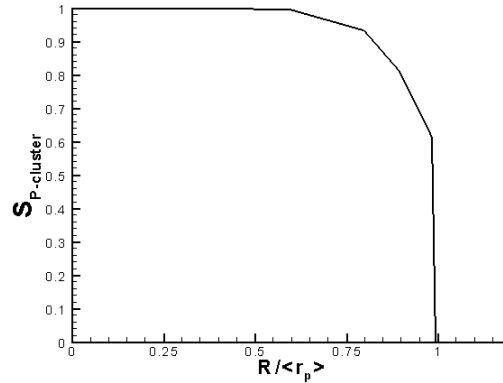


Figure 3.1: *Saturation du P -cluster en fonction du rayon relatif des particules*

3.3 Détermination des perméabilités relatives

3.3.1 Principe de calcul

Les perméabilités relatives de la suspension et de l'eau pure ont été calculées sur la base de l'analyse du processus de transport à l'échelle de pores, similaire au modèle présenté dans la section 2.4.5. On examine donc un VER du milieu poreux sous forme d'un réseau capillaire aléatoire,

Dans ce réseau on détermine le P -cluster et le W -cluster, en appliquant l'algorithme exposé dans la section 2.4.4. Ensuite on calcule l'écoulement monophasique mais avec un coefficient de viscosité différent dans les deux clusters, suivant l'algorithme de la section 2.4.5, en obtenant le champ de pression par la méthode décrite en 2.4.8.

Une fois que la pression est obtenue, il est possible de calculer les perméabilités relatives de chaque phase en homogénéisant les résultats de calcul à travers chaque cluster. Nous examinons toujours notre milieu comme un VER, ainsi la procédure de l'homogénéisation appliquée à tout le domaine assure de produire une perméabilité intrinsèque du milieu.

La formule basique que l'on utilise pour la perméabilité relative est celle de la loi de Darcy. Pour la phase "suspension" occupant le P -cluster, on obtient :

$$k_s(S) = \frac{V_s \mu_s L}{\Delta P K}, \quad V_s = \frac{Q_s}{A}$$

où ΔP est la différence de pressions entre les sections d'entrée et de sortie du milieu ; L est la longueur du milieu ; μ_s est la viscosité effective de la suspension ; K est la perméabilité absolue ; A est l'aire totale de la section transversale du milieu ; Q_s est le flux (débit volumique) de la suspension.

Les paramètres ΔP , L et A sont imposés comme les données d'entrée. La viscosité μ_c est calculée dans la section 2.4.7. Le débit Q_s , la perméabilité K et la saturation S à laquelle la perméabilité relative calculée sera associée, doivent être calculés.

3.3.2 Calcul de S , Q_s et K

La saturation S est calculée comme le rapport entre le volume de tous les pores appartenant au P -cluster et le volume de tous les pores du milieu. Une fois que le P -cluster est détecté, la saturation est donc calculée automatiquement.

Le calcul du débit Q_s est effectué dans une section transversale arbitraire A du milieu. On choisit tous les pores dans A appartenant au P -cluster et orientés dans le sens de l'écoulement macroscopique. Soit $\mathcal{D}$ l'ensemble de ces pores. Soit δP_i la différence de pression aux bouts d'un pore appartenant à $\mathcal{D}$. Alors, Q_s est calculé à l'aide de la loi de Poiseuille :

$$Q_s = \frac{8\pi}{\mu_s l} \sum_{i \in \mathcal{D}} r_i^4 \delta P_i \quad (3.15)$$

où l est la longueur d'un pore, r est son rayon.

La perméabilité absolue résulte d'une simulation numérique supplémentaire que l'on est obligé d'effectuer. Il s'agit de la simulation d'un écoulement parfaitement monophasique, lorsque la viscosité est identique dans tout le milieu. Une fois cette simulation effectuée et le champ de pression monophasique P^m obtenu, la perméabilité absolue est calculée en utilisant toujours la loi de Darcy :

$$K = \frac{Q^m \mu L}{\Delta P^m A}$$

où le débit monophasique Q^m est calculé à l'aide d'une formule similaire à l'équation (3.15) mais à travers tous les pores longitudinaux de la section A .

3.3.3 Résultats des simulations des perméabilités relatives

Le calcul des perméabilités relatives de la suspension colloïdale $k_s(S)$ et de l'eau $k_w(S)$ a été effectué sur la base du milieu poreux reconstitué montré sur la figure 2.7.

Les fonctions $k_s(S)$ et $k_w(S)$ sont présentées sur la figure 3.2 pour le modèle diphasique immiscible.

Pour le modèle diphasique à miscibilité illimitée, les résultats sont montrés sur la figure 3.3.

Dans tous nos calculs, nous avons pris $\phi = 0.2$. En outre, nous avons considéré que : $V(t) = \text{const} = .000005$.

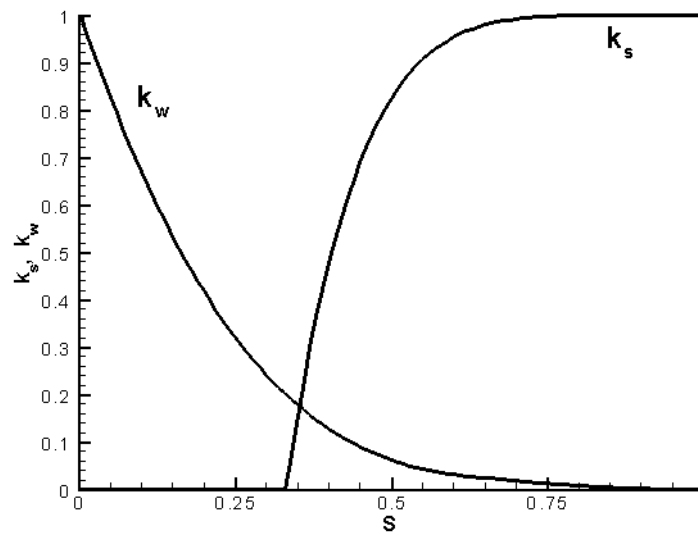


Figure 3.2: *Courbes de perméabilité relative de la suspension colloïdale ($k_s(S)$) et de l'eau ($k_w(S)$). Modèle diphasique immiscible.*

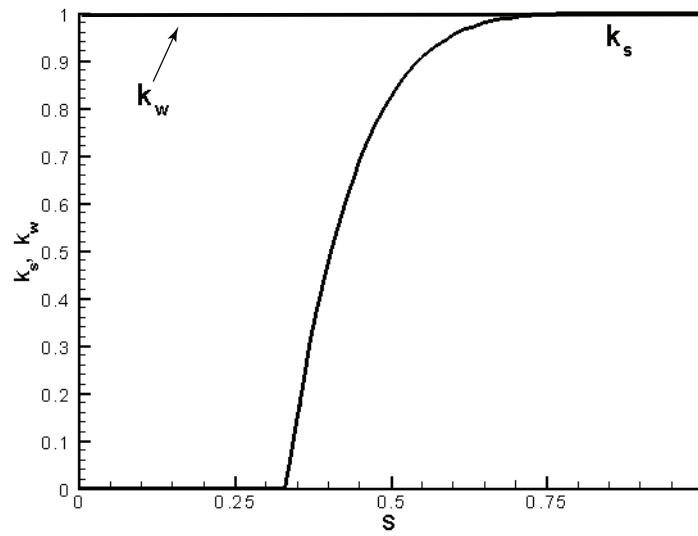


Figure 3.3: *Courbes de perméabilités relatives de la suspension colloïdale ($k_s(S)$) et de l'eau ($k_w(S)$). Modèle diphasique à la miscibilité illimitée.*

Chapitre 4

Analyse du modèle diphasique immiscible

4.1 Solution analytique du problème-modèle de transport

Dans ce chapitre, on analyse les propriétés de la solution du modèle diphasique immiscible proposé dans cette thèse (cf. 3.1) sur la base d'un problème concret de transport.

4.1.1 Formulation du problème

Considérons un écoulement 1D dans un domaine infini avec l'objectif d'obtenir des solutions analytiques qui peuvent servir de cas test pour la comparaison. Examinons le processus d'invasion d'une suspension colloïdale dans un milieu poreux saturé initialement en eau pure. Ce problème décrit les situations pratiques suivantes :

- i) test de laboratoire, lorsqu'on étudie le transport de particules dans un échantillon de milieu poreux ;
- ii) production d'un liquide avec du sable par un puits dans un réservoir souterrain constitué de roches instables ;
- iii) invasion du liquide de forage, comportant de la boue de forage, à partir d'un puits dans les roches environnantes ;
- iv) injection des solutions micellaires dans un puits de pétrole (les micelles sont considérées comme des colloïdes) ;
- v) transport de l'eau à travers des roches argileuses avec détachement des particules des parois des pores.

En $x = 0$, imposons le débit d'injection de la suspension colloïdale, la concentration totale en colloïdes dans le liquide, la saturation du P -cluster (figure 4.1).

Pour un milieu non déformable et un fluide incompressible, nous utiliserons le modèle diphasique immiscible (3.5) - (3.6) :

$$\begin{aligned}\phi \frac{\partial S}{\partial t} + \frac{\partial V_s}{\partial x} &= 0, & \phi \frac{\partial(1-S)}{\partial t} + \frac{\partial V_w}{\partial x} &= 0 \\ \frac{\partial c}{\partial t} + U_p \frac{\partial c}{\partial x} &= -\lambda_{tr} U_p c, & U_p &= V_s / (S\phi)\end{aligned}$$

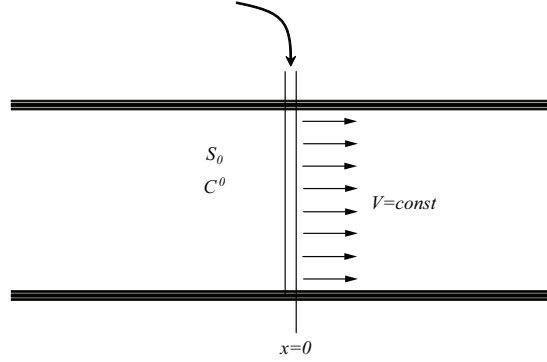


Figure 4.1: *Représentation schématique du problème résolu numériquement.*

$$V_s = -\frac{Kk_s(S)}{\mu_s(c)} \frac{\partial P}{\partial x}, \quad V_w = -\frac{Kk_w(S)}{\mu_w} \frac{\partial P}{\partial x}$$

où λ_{tr} est le coefficient phénoménologique de piégeage.

Le système peut être réduit à trois équations :

$$\frac{\partial S}{\partial t} + U \frac{\partial F(S)}{\partial x} = 0 \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + U \frac{F(S)}{S} \frac{\partial c}{\partial x} = -\lambda_{tr} U c \frac{F(S)}{S} \quad (4.2)$$

$$\frac{\partial V}{\partial x} = 0, \quad \Rightarrow \quad V = V(t) \quad (4.3)$$

où

$$V = V_w + V_s, \quad U = V/\phi, \quad F(S) = \frac{k_s/\mu_s}{k_s/\mu_s + k_w/\mu_w}$$

La fonction de *fractional flow* $F(S)$ est présentée sur la figure 4.2.

Strictement dit, cette fonction dépend de la saturation S et de la concentration c , car la viscosité de la suspension μ_s dépend de c . Néanmoins, pour les faibles concentrations c étudiées, on peut négliger la variation de μ_s dans la relation pour F . Ainsi dans ce travail, la fonction "fractional flow" ne dépend que de la saturation : $F = F(S)$.

Nous supposons également que la vitesse totale U est connue a priori, de façon que le système se réduit à deux équations (4.1) et (4.2) par rapport à la

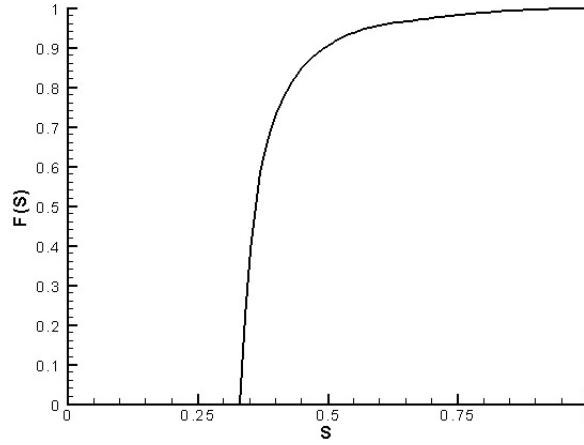


Figure 4.2: *Graphique typique de la fonction fractional flow, $F(S)$*

saturation de la suspension S et la concentration des colloïdes en suspension c .

Le modèle sera complété par une condition initiale et une condition à la limite qui expriment le processus d'invasion de la suspension dans un milieu poreux "vierge" initialement.

$$t = 0 : \quad S = S_0(x) \quad (4.4)$$

$$x = 0 : \quad c = C^0(t) \quad (4.5)$$

4.1.2 Résolution du problème pour la saturation

On peut remarquer que l'équation (4.1) pour la saturation de la suspension colloïdale $S(x, t)$ ne dépend pas de la concentration colloïdale $c(x, t)$. Par conséquent, la solution $S(x, t)$ peut être trouvée indépendamment de la fonction $c(x, t)$ et donc de l'équation (4.2).

L'équation d'ondes non linéaire (4.1) avec la condition initiale (4.4) définit complètement le problème de Cauchy. Ce problème peut être résolu analytiquement par la méthode des caractéristiques (Whitham, 1974 ; Tihonov & Samarskii (1977) ; Arnold (1999)).

On peut réécrire les équations (4.1) et (4.4) comme suit :

$$\frac{\partial S}{\partial \tau} + F'_s(S) \frac{\partial S}{\partial x} = 0, \quad S|_{\tau=0} = S_0(x) \quad (4.6)$$

où $F'_s(S) \equiv dF(S)/dS$, $\tau = \int_0^t u(t')dt'$.

Le long de chaque ligne caractéristique $x(\tau)$ le problème peut être écrit de la manière suivante :

$$\begin{cases} \frac{dx}{d\tau} = F'(S) \\ \frac{dS}{d\tau} = 0 \quad \Rightarrow \quad S = \text{const} \end{cases} \quad (4.7)$$

ainsi, la saturation est invariante le long des lignes caractéristiques. L'angle d'inclinaison $F'(S)$ d'une ligne caractéristique vers l'axe τ dans le plan (x, τ) est donc constant, i.e. : ces lignes sont des droites.

Considérons une ligne caractéristique qui croise l'axe x au point $x = \xi$ lorsque $\tau = 0$. Il vient de la condition initiale (4.4) que la valeur de la fonction S en ce point est $S_0(\xi)$. Alors la solution peut être représentée de la façon paramétrique :

$$S = S_0(\xi), \quad x = \xi + F'_s(S_0(\xi))\tau \quad (4.8)$$

Pour chaque valeur du paramètre ξ , on obtient les valeurs correspondantes de S et x à chaque instant τ .

4.1.3 Solution discontinue

Il est bien connu que la solution du problème (4.6) est souvent discontinue. On doit alors ajouter les conditions de conservation (Hugoniot) et de stabilité (Lax) à la discontinuité. Examinons le cas particulier des conditions initiales :

$$S_0 \equiv \begin{cases} 0, & x > 0 \\ s_0, & x \leq 0 \end{cases} \quad (4.9)$$

Pour ce cas particulier, les conditions à la discontinuité sont :

$$W_f = U \frac{F(S_f)}{S_f}, \quad W_f = U F'_s(S_f) \quad (4.10)$$

où S_f est la valeur de la saturation en aval de la discontinuité (figure 4.3), W_f est la vraie vitesse de déplacement de la discontinuité.

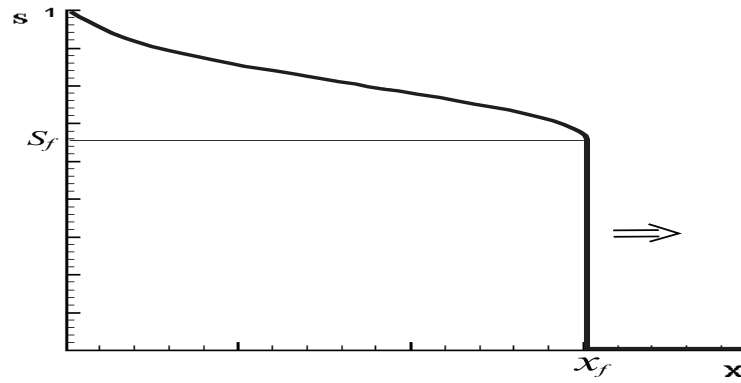


Figure 4.3: *Saturation discontinue S de la suspension colloïdale pour les particules de petite taille*

Ces deux relations déterminent deux variables : S_f and W_f . Une fois que la vitesse W_f est définie, la coordonnée de la discontinuité se détermine facilement : $x_f = \int_0^t W_f dt'$.

Il existe deux types de solutions du problème examiné, en fonction du rapport entre la saturation à l'entrée du milieu s_0 et celle en aval du choc S_f . Ce rapport est lié à la taille des particules : si les particules sont grandes, alors la saturation du P -cluster est petite, et vice versa.

Pour le cas de grandes particules ($s_0 < S_f$), nous obtenons la solution constante par morceaux, comme ceci est montré sur la figure 4.4.

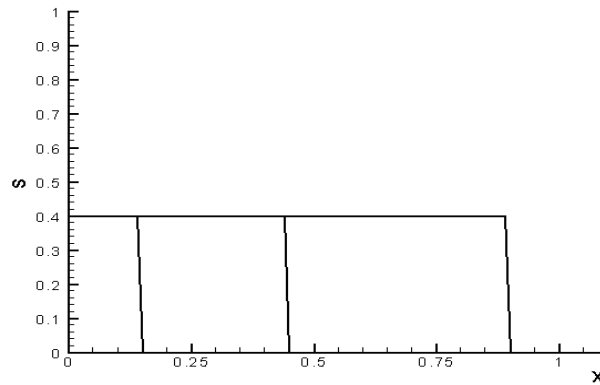


Figure 4.4: *Saturation discontinue S de la suspension colloïdale pour les grandes particules*

Ceci est conforme aux raisonnements exposés dans la section 3.2.3 selon lesquelles la saturation doit être constante si les particules sont uniformes.

Pour le cas de petites particules ($s_0 > S_f$), nous obtenons la solution montrée sur la figure 4.3, avec une première partie lisse décroissante.

La saturation n'est donc pas constante. Ceci peut être expliqué par le fait que la formation du P -cluster n'est pas instantanée. Le P -cluster à l'entrée du milieu contient tous les pores larges, tandis que le nombre de ces pores diminue au fur et à mesure que les particules avancent à l'intérieur du milieu, à cause du blocage croissant des particules larges par des petites.

4.1.4 Solution pour la concentration

Une fois que la saturation $S(x, t)$ est obtenue, on peut trouver la solution pour la concentration colloïdale $c(x, t)$.

Examinons maintenant l'équation (4.2) en utilisant la variable τ :

$$\frac{\partial c}{\partial \tau} + \frac{F(S)}{S} \frac{\partial c}{\partial x} + \lambda_{tr} c \frac{F(S)}{S} = 0 \quad (4.11)$$

la fonction $S(x, t)$ est déjà obtenue.

Approchons la fonction $S(x, t)$ par une valeur constante en amont du choc :

$$S(x, t) = \begin{cases} 0, & x > x_f(\tau) \\ \bar{S}, & x \leq x_f(\tau) \end{cases} \quad (4.12)$$

L'équation (4.11) avec la condition à la limite (4.5) peut être transformée de la façon suivante :

$$\frac{\partial Y}{\partial \tau} + \frac{F(S)}{S} \frac{\partial Y}{\partial x} = 0, \quad Y|_{x=0} = C^0(\tau)$$

where $c = Y e^{-\gamma x}$, $\gamma = \lambda_{tr} > 0$.

Ce système peut être résolu par la méthode des caractéristiques par analogie avec la solution en saturation S . L'équation déterminant les caractéristiques est la suivante :

$$\frac{dx}{d\tau} = \frac{F(S)}{S}. \quad (4.13)$$

Comme la dérivée totale de la fonction Y le long d'une ligne caractéristique est nulle :

$$\frac{dY}{d\tau} = 0$$

on obtient alors la solution pour Y avec la condition à la limite (4.5) :

$$Y = \begin{cases} C^0 \left(x - \frac{F(S)}{S} \tau \right), & x \leq x_f \\ 0, & x > x_f \end{cases}$$

Et à partir de cette équation on peut obtenir la solution pour la concentration des colloïdes $c(x, t)$ en suspension :

$$c = \begin{cases} C^0 \left(x - \frac{F(S)}{S} \tau \right) \cdot \exp(-\lambda_{tr} x), & x \leq x_f \\ 0, & x > x_f \end{cases} \quad (4.14)$$

C'est une solution analytique exacte pour le cas des grandes particules ($s_0 < S_f$) et approximative pour le cas des petites particules ($s_0 > S_f$), car $S(x, t)$ ne représente pas dans ce cas une valeur exacte mais une valeur homogénéisée de la saturation.

En particulier, pour une fonction initiale C^0 constante, on obtient une distribution exponentielle de la concentration derrière le choc.

4.1.5 Effet d'augmentation de vitesse

La vitesse de transport de la suspension est définie à travers la fonction "fractional flow" :

$$U_p = U \frac{F(S)}{S}$$

En même temps la vitesse de transport moyenne de l'écoulement de l'eau est U . Ainsi, le facteur d'augmentation de vitesse ω est :

$$\omega = \frac{F(S)}{S}$$

Suivant la figure 4.5, ce rapport est toujours supérieur à 1 pour des grandes saturation (petites particules), et peut être inférieur à 1 pour des petites saturations (grandes particules).

On peut donc conclure que le modèle prédit correctement l'effet d'accélération des particules fines, et la décélération des grandes particules.

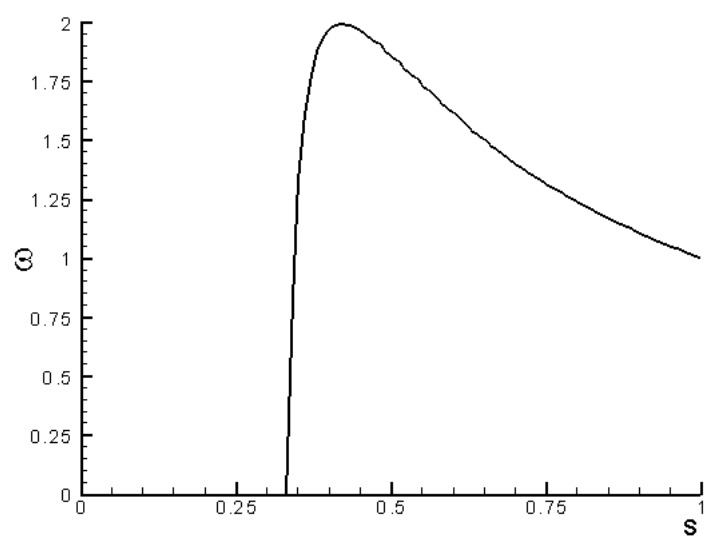


Figure 4.5: *Définition graphique du facteur d'augmentation de vitesse*

4.2 Solution numérique

4.2.1 Méthode

Pour obtenir une solution plus exacte pour la concentration que (4.14), le même problème de transport des colloïdes a été étudié numériquement sans l'approximation du champ de saturation.

La fonction limite (4.5) pour la concentration est choisie sous la forme :

$$C^0(t) = \begin{cases} c^0, & t > 0 \\ 0, & t \leq 0 \end{cases} \quad (4.15)$$

L'algorithme numérique est basé sur le schéma de discrétisation des différences finies (explicite en temps et amont en espace) :

$$\begin{aligned} x \leq x_f : \quad & \frac{c_i^{j+1} - c_i^j}{\Delta\tau} + \frac{F(S_i^j)}{S_i^j} \frac{c_i^j - c_{i-1}^j}{\Delta x} + \lambda_{tr} c_i^j \frac{F(S_i^j)}{S_i^j} = 0 \\ x > x_f : \quad & c_i^j \equiv 0 \end{aligned} \quad (4.16)$$

Un tel schéma minimise la dispersion numérique et assure une haute précision en simulation des vitesses de propagation des chocs.

Les résultats des simulations comparés avec la solution analytique sont présentés sur la figure (4.6) pour $c^0=0.05$.

Pour minimiser la dispersion numérique au voisinage des chocs, la concentration et la saturation du front, c_f et S_f , ainsi que la coordonnée du front x_f ont été calculées analytiquement à l'aide de (4.10) et d'une relation qui résulte de (4.14) :

$$c_f = c^0 \exp(-\lambda_{tr} S_f x_f)$$

L'amélioration apportée par cette méthode de contrôle est significative, comme on le voit sur la figure 4.7, où les couleurs différentes marquent les deux instants différents. La valeur du coefficient de piégeage est $\lambda_{tr} = 1$.

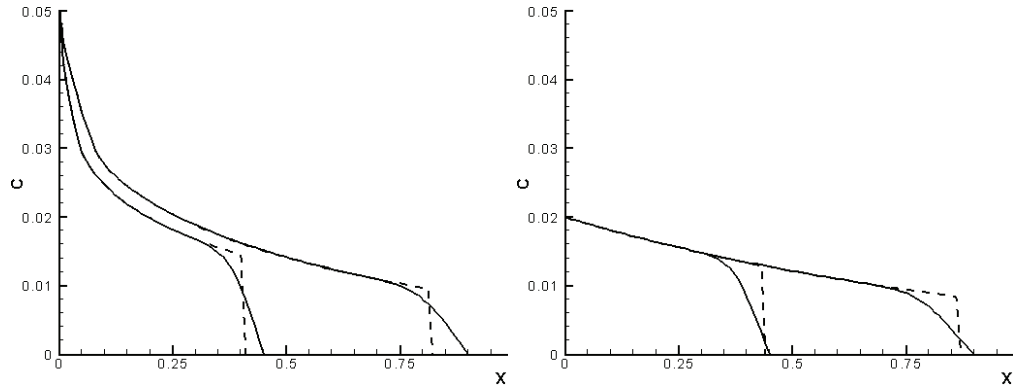


Figure 4.6: *Concentration de la suspension colloïdale, C : solution analytique (4.14) (ligne en pointillées) et solution numérique (4.16) (ligne solide). À gauche : $s_0 > S_f$ (particules fines) ; à droite : $s_0 < S_f$ (particules grandes).*

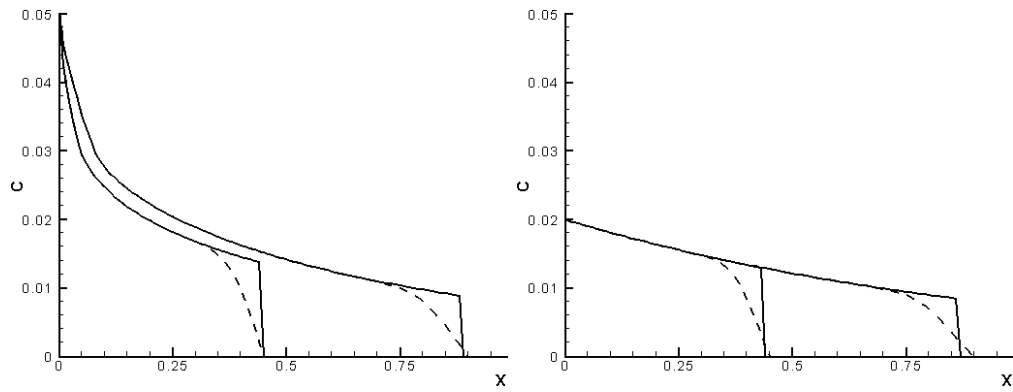


Figure 4.7: *Solution numérique du problème de transport directe (ligne en pointillées) et la solution avec un contrôle analytique des chocs (ligne solide)*

4.2.2 Comparaison avec le modèle classique

Les résultats de simulation dans le cadre du modèle diphasique immiscible ont été comparés avec le modèle classique de transport des particules (1.1) dans lequel $D = 0$ et $f = -\lambda_{tr} U \phi c$.

Le problème considéré pour (1.1) a une solution analytique exacte (c_{clas}) :

$$c_{clas} = C_{clas}^0(x - \tau) \exp(-\lambda_{tr}x) \quad (4.17)$$

avec la concentration initiale $C_{clas}^0(t)$ définie comme suit :

$$C_{clas}^0(t) = \begin{cases} c^0 \cdot s_0, & t > 0 \\ 0, & t \leq 0 \end{cases} \quad (4.18)$$

La vitesse totale U dans un écoulement diphasique joue le même rôle que la vitesse U de l'eau dans le modèle monophasique. Ainsi, pour la comparaison des cas, ces deux vitesses sont supposées identiques. Ainsi, le temps τ est le même pour les deux modèles.

Pour transformer les résultats des simulations sous une forme dimensionnelle, on a supposé que $V(t) = \text{const} = .000005$ m/s et $\phi = 0.2$.

Quelques résultats sont présentés ci-dessous pour $\lambda_{tr} = 1$ et pour des instants différents.

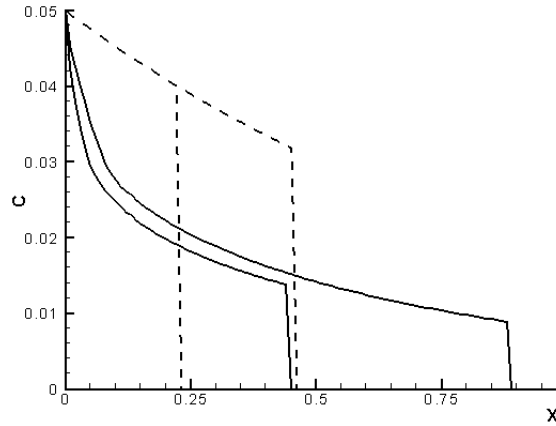


Figure 4.8: *Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillé). Cas $c^0 = 0.05$ et $s_0 > S_f$.*

Notons que pour le cas de particules larges ($s_0 \leq S_f$) (figure (4.9)), la solution pour chaque instant t représente la continuation de la courbe obtenue pour des instants précédents, sans la déformer. Le même comportement

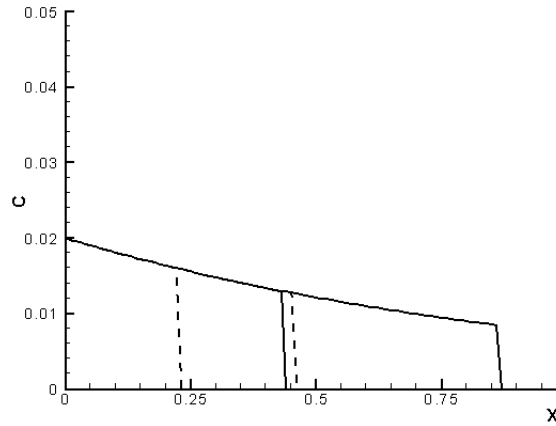


Figure 4.9: *Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillé). Cas $c^0 = 0.05$ et $s_0 < S_f$.*

invariant lorsque la courbe $c(x)$ se dilate sans déformer toute la partie précédente est typique pour les solutions classiques monophasiques.

Une telle invariance n'a plus lieu dans le modèle diphasique dans le cas de particules fines, $s_0 > S_f$, où la courbe entière change dans le temps (cf. fig.(4.8)).

On voit que, non seulement le comportement quantitatif de la suspension colloïdale traitée en termes d'un système diphasique est différent de l'approche monophasique, mais la différence qualitative est aussi importante. Premièrement, l'effet d'augmentation de vitesse est clairement mis en évidence par le modèle diphasique. En effet, puisque le modèle monophasique décrit correctement l'écoulement de l'eau, la différence entre le courbe monophasique $c(x)$ et celle diphasique traduit la différence entre les vitesses de l'eau et des particules. On voit que dans tous les cas analysés la vitesse de propagation des particules est plus grande que celle de l'eau. Deuxièmement, la concentration colloïdale derrière le front est suffisamment surestimée dans le modèle classique dans le cas de particules fines, et sous-estimée dans le cas de grosses particules.

Chapitre 5

Analyse du modèle diphasique miscible

5.1 Solution analytique du problème modèle

On analyse maintenant la deuxième version du modèle diphasique proposé dans la section 3.2.2 et qui est appelée modèle miscible.

5.1.1 Formulation du problème

Nous considérons le même problème d'un écoulement 1D dans un domaine infini accompagné d'une invasion de la suspension colloïdale dans le milieu poreux à travers la section d'entrée. Les applications pratiques de ce problème ont été décrites dans la section 4.1.1.

Pour un milieu non déformable et un fluide incompressible, nous utiliserons le modèle diphasique miscible (3.13) (section 3.2.2) :

$$\frac{\partial V_w}{\partial x} = 0, \quad \rightarrow \quad V_w = \text{const}(t) \quad (5.1)$$

$$\frac{\partial (cS)}{\partial t} + \frac{\partial (cS U_p)}{\partial x} = -\lambda_{tr} U_p c S, \quad (5.2)$$

$$U_p = \frac{V_s}{S\phi}, \quad V_s = -\frac{K k_s(S)}{\mu_s(c)} \frac{\partial P}{\partial x}, \quad (5.3)$$

$$V_w = -\frac{K}{\mu_w} \frac{\partial P}{\partial x} \quad (5.4)$$

La saturation S est constante, en accord avec la section 3.2.3.

Supposons que la vitesse de l'eau soit donnée (à travers les conditions aux limites qui imposent un débit ou une vitesse à l'entrée). Alors le modèle prend la forme :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + U \frac{F^*(S)}{S} \frac{\partial c}{\partial x} = -\lambda_{tr} c U \frac{F^*(S)}{S}, \quad (5.5)$$

$$U_p = U \frac{F^*(S)}{S}, \quad U \equiv U_w = \frac{V_w}{\phi(1-S)}, \quad F^*(S) \equiv k_s(S) \frac{\mu_w}{\mu_s}$$

Comme dans la section 4.1.1, la fonction "fractional flow" modifiée, F^* , dépend de la saturation S et de la concentration c , car la viscosité de la suspension μ_s dépend de c . Pour les petites concentrations c que nous étudions, on négligera la variation de μ_s dans l'expression de F^* , ainsi $F^* = F^*(S)$.

La fonction $F^*(S)$ a une forme similaire à celle de la perméabilité relative $k_s(S)$ et est obtenue de cette dernière par une légère compression, puisque $\mu_w/\mu_s \leq 1$. La courbe $k_s(S)$ a été obtenue dans la section 3.3.3 (figure 3.2). La forme typique de la courbe $F^*(S)$ est présentée sur la figure 5.1.

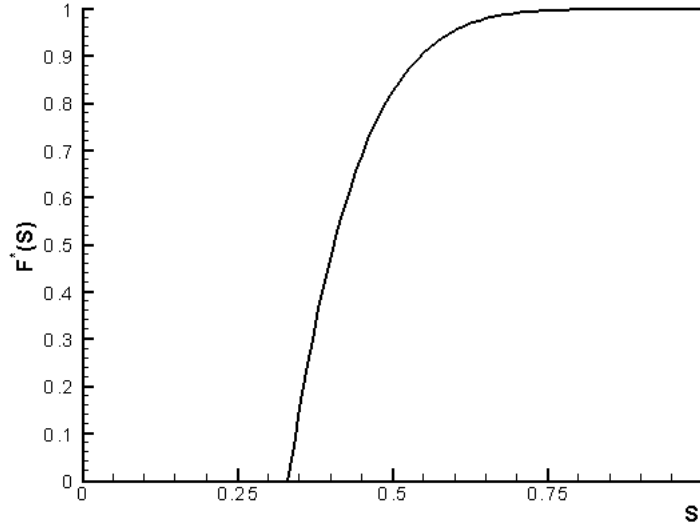


Figure 5.1: *Fonction "fractional flow" modifiée $F^*(S)$.*

La condition initiale ou à la limite détermine la concentration des particules à l'entrée du milieu comme dans la section 4.2.1 (4.15) :

$$C^0(t) = \begin{cases} c^0, & t > 0 \\ 0, & t \leq 0 \end{cases} \quad (5.6)$$

5.1.2 Effet d'augmentation de vitesse

La vitesse de transport de la suspension est définie en (5.5) à travers la fonction "fractional flow" modifiée :

$$U_p = U \frac{F^*(S)}{S}$$

où U est la vitesse de transport de l'eau. Ainsi, le facteur d'augmentation de vitesse ω est :

$$\omega = \frac{F^*(S)}{S}$$

Suivant la figure 5.2, ce rapport est toujours supérieur à 1 pour des grandes saturations (petites particules), et peut être inférieur à 1 pour des petites saturations (grandes particules), résultats similaires à ceux qui ont été obtenus en section 4.1.5 pour le modèle diphasique immiscible.

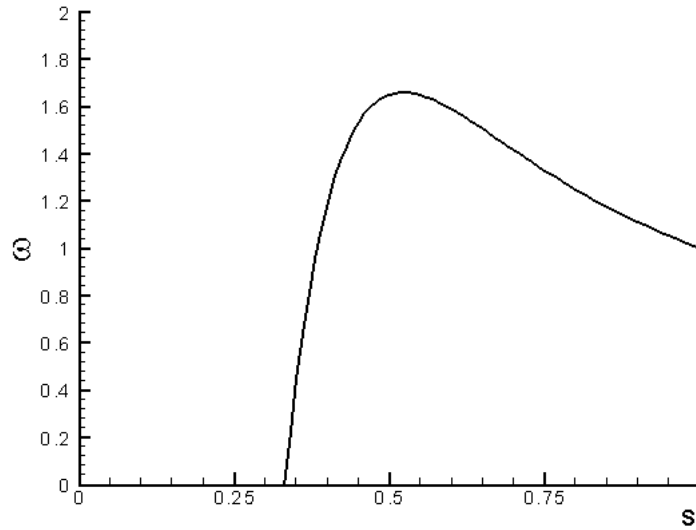


Figure 5.2: Définition graphique du facteur d'augmentation de vitesse.

Quantitativement, le facteur d'accélération atteint les valeurs de 1.66 (pour les petites concentrations), ce qui est conforme aux données expérimentales.

Ainsi le modèle prédit correctement l'effet d'accélération des particules fines, et la décélération des grandes particules.

De plus, le modèle diphasique miscible prédit l'effet d'accélération de la même façon que le modèle immiscible. Autrement dit, la miscibilité ou immiscibilité ne concerne que les paramètres d'écoulement de l'eau, mais décrit de façon presque équivalente le transport des particules. Le terme "presque" est utilisé par ce que dans le modèle immiscible la saturation peut être variable en espace et dans le temps, tandis que dans le cas diphasique miscible la saturation est constante a priori.

5.1.3 Solution du problème de transport

Examinons le problème (5.5) et (5.6), utilisant la variable $\tau = \int_0^t U(t')dt'$:

$$\frac{\partial c}{\partial \tau} + \frac{F^*(S)}{S} \frac{\partial c}{\partial x} = -\lambda_{tr} c \frac{F^*(S)}{S}, \quad (5.7)$$

$$C^0(t) = \begin{cases} c^0, & t > 0 \\ 0, & t \leq 0 \end{cases}$$

Puisque S est constante, il semblerait normal de supprimer le facteur constant $F^*(S)/S$ en l'introduisant dans la définition du temps τ . Nous avons pourtant conservé la même définition du temps τ que dans le chapitre précédent (section 4.1.2, l'éq. (4.6)) afin d'avoir une possibilité de comparer les résultats fournis par les deux modèles.

Le problème (5.7) est presque équivalent au problème (4.11). La seule différence est dans la structure des facteurs $F(S)$ et $F^*(S)$.

En utilisant le même changement de variables que dans la section 4.1.4 :

$$c = Y e^{-\gamma x}, \quad \gamma = \lambda_{tr}$$

on obtient de la même manière la solution du problème (5.7) :

$$c = \begin{cases} C^0 \left(x - \frac{F^*(S)}{S} \tau \right) \exp(-\lambda_{tr} x), & x \leq x_f(\tau) \\ 0, & x > x_f(\tau) \end{cases} \quad (5.8)$$

dans le cas de la condition à la limite générale.

La coordonnée du front de propagation $x_f(\tau)$ est définie par :

$$x_f(\tau) = \frac{F^*(S)}{S} \tau = U \frac{F^*(S)}{S} t$$

Dans le cas de la condition (5.7), la solution devient simplement une fonction exponentielle :

$$c = \begin{cases} c^0 \exp(-\lambda_{tr} x), & x \leq x_f(\tau) = \frac{F^*(S)}{S} \tau \\ 0, & x > x_f(t) \end{cases} \quad (5.9)$$

Cette solution est exacte dans tous les cas. Ce n'est pas le cas de la solution similaire obtenue dans le cadre du modèle immiscible, qui est approximative dans le cas des petites particules.

5.2 Comparaison avec le modèle classique et le modèle diphasique immiscible

Les résultats des simulations dans le cadre du modèle diphasique miscible ont été comparés avec le modèle classique de transport des particules (1.1) dans lequel $D = 0$ et $f = -\lambda_{tr} U \phi c$ dont la solution analytique (c_{clas}) est donnée par (4.17). En outre, ils ont été comparés avec les résultats des simulations dans le cadre du modèle diphasique immiscible.

Les paramètres d'écoulement sont identiques à ceux utilisés dans la section 4.2.2. La saturation du modèle diphasique miscible est prise égale à la saturation initiale du modèle diphasique immiscible, $S = s_0$.

Quelques résultats sont présentés ci-dessous pour $\lambda_{tr} = 1$ et pour des instants différents.

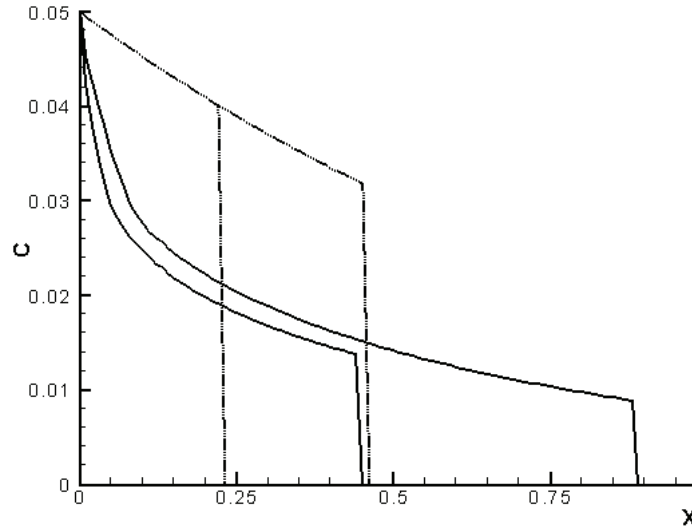


Figure 5.3: *Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique miscible (ligne ponctuelle), selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillés). Cas $c^0 = 0.05$ et $S = 1$.*

Notons que dans le cas où $S = 1$ (cas de particules très fines) (figure 5.3), la solution du modèle diphasique miscible coïncide avec celle du modèle classique.

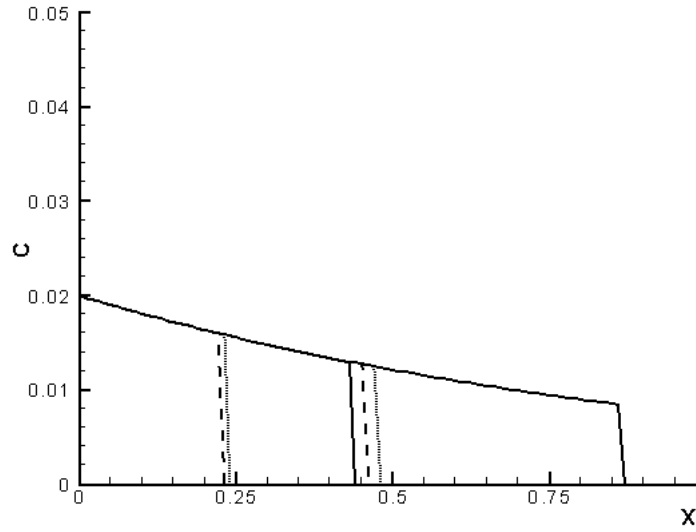


Figure 5.4: *Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique miscible (ligne ponctuelle), selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillés). Cas $c^0 = 0.05$ et $S = s_0 = .4$.*

Sur la figure 5.4, le cas où $s_0 < S_f$ dans le cadre du modèle diphasique immiscible est présenté, $s_0 = 0.4$. On peut voir que dans ce cas les deux modèles diphasique prédisent l'accélération des particules colloïdales par rapport à l'eau.

Dans le cas de grosses particules ($s_0 \leq S_f$), les solutions des trois modèles pour chaque instant t représentent les continuations des courbes obtenues pour des instants précédents, sans les déformer. Cependant, dans les cas considérés, les modèles diphasiques donnent un déplacement plus rapide de $c(x)$.

Sur la figure 5.5, on montre le cas des particules moyennes dont la taille est proche de celle où la facteur d'accélération de vitesse atteint son maximum (figure 5.2), $s_0 = S = 0.5$.

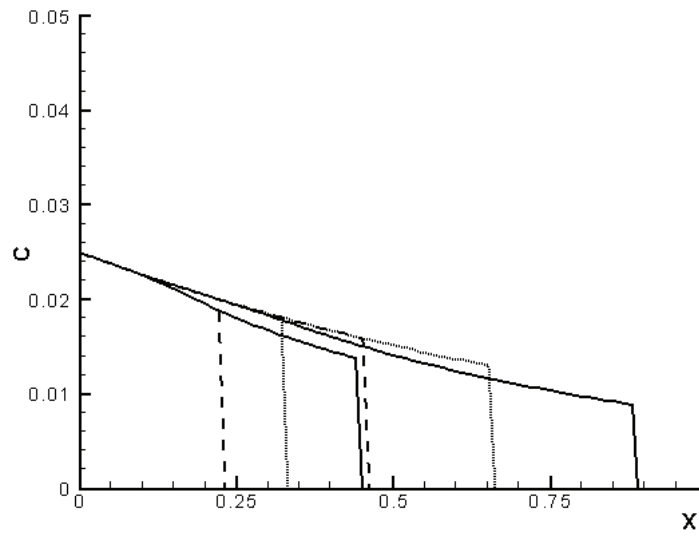


Figure 5.5: *Evolution de la concentration des colloïdes C selon le modèle diphasique miscible (ligne ponctuelle), selon le modèle diphasique immiscible (ligne solide) et selon le modèle classique monophasique (ligne en pointillées). Cas $c^0 = 0.05$ et $S = s_0 = .5$.*

Conclusions

Dans cette thèse, on a développé trois méthodes nouvelles pour décrire le transport des particules colloïdales à travers les milieux poreux : un modèle pour déterminer le facteur d'accélération dans le modèle de transport classique, un modèle d'écoulement diphasique immiscible et un modèle d'écoulement diphasique miscible.

Le premier modèle est constitué par une équation de transport des colloïdes considérés comme un soluté dans un écoulement monophasique. Cependant, la vitesse de transport de ce soluté est différente de la vitesse d'eau due à l'effet d'exclusion par taille : les particules ne passent qu'à travers les pores suffisamment larges. Le rapport de ces deux vitesses est le facteur d'accélération. Grâce à la modélisation stochastique à l'échelle du pore, on a obtenu des résultats quantitatifs pour le facteur d'accélération qui montrent trois effets physiques différents : i) une accélération des particules pour des faibles concentrations, ii) une décélération pour des grandes concentrations due à l'augmentation de la viscosité effective, iii) une chute brutale jusqu'à zéro au voisinage d'une concentration critique qui détermine la rupture du cluster continu accessible aux particules.

Le modèle diphasique immiscible est basé sur la représentation du processus sous forme de deux phases : la phase " suspension colloïdale " présente dans le système de pores les plus larges formant un " P-cluster ", et la phase " eau pure " présente dans les pores les plus petits. Le modèle phénoménologique correspondant est proposé. Il introduit le concept des perméabilités relatives pour la suspension et l'eau pure. Les relations de fermeture pour les perméabilités relatives ont été obtenues par la modélisation à l'échelle de pore. Le modèle prédit automatiquement une augmentation de la vitesse de la suspension pour des particules fines à de faibles concentrations. En outre, le modèle détermine la saturation de la phase suspension, qui n'est pas présente dans les modèles existant de transport colloïdal.

Le modèle diphasique miscible est aussi basé sur la présentation des particules sous la forme d'une phase individuelle présente dans le P-cluster. Cependant, on suppose l'eau présente partout, dans chaque pore, de telle façon que la présence des particules ne la gêne pas. Cette présence est interprétée en termes de miscibilité complète de la composante H_2O avec les deux phases : suspension et eau pure. Le modèle demande une seule fonction de perméabilité relative, celle de la suspension. Le modèle prédit un effet d'accélération des particules qui est proche quantitativement de celui

résultant du modèle immiscible. Ce modèle décrit mieux le mouvement d'eau que le modèle diphasique. Il est néanmoins incapable de déterminer la saturation de la suspension. Ainsi, on postule que la saturation est constante, ce qui n'est pas toujours le cas dans la réalité.

Les trois modèles prédisent le phénomène d'accélération/décélération des particules de façon adéquate par rapport aux données expérimentales.

Les modèles proposés ont été analysés sur un problème test de transport (entrée d'un nuage des colloïdes dans un milieu poreux). Les solutions analytiques et numériques ont été obtenues pour chaque modèle. Cette analyse montre que les modèles diphasiques reflètent adéquatement l'effet d'augmentation de la vitesse. La concentration colloïdale derrière le front d'avancée prédite par cette approche est, le plus souvent, plus petite que celle prédite par le modèle classique.

Cette approche diphasique suggérée pour le transport colloïdal représente un large champ d'applications dans le cadre de la théorie des eaux contaminées en particulier pour prédire la zone possible de propagation des contaminants.

Bibliographie

- [Arnold, 1999] Arnold, V. I.: 1999, *Geometrical methods in the theory of ordinary differential equations*, MCNMO, BKN NMU, Izhevsk.
- [Auset & Keller, 2004] Auset, M., and Keller, A.A.: 2004, Pore-scale processes that control dispersion of colloids in saturated porous media, *Water Resources Research* **40**(3), W03503.
- [Benamar *et al*, 2005] Benamar, A., Wang, H., Ahfir, N., Alem, A., Masséi, N. et Dupont, J.-P.: 2005, Effets de la vitesse d'écoulement sur le transport et la cinétique de dépôt de particules en suspension en milieu poreux saturé, *Géosciences de surface (Hydrologie – Hydrogéologie). C.R. Geoscience* **337**, 497-504.
- [Buddemeier & Hunt, 1988] Buddemeier, R.W., and Hunt, J.R.: 1988, Transport of colloidal contaminants in groundwater: Radionuclide migration at the Nevada test site. *Appl. Geochem.*, 3, 1988, 535–548.
- [Corapcioglu & Jiang, 1993] Corapcioglu, M.Y. and Jiang, S.: 1993, Colloid-facilitated groundwater contaminant transport, *Water Resources Research* **29**(7), 2215-2226.
- [Corapcioglu *et al*, 1999] Corapcioglu, M.Y., Jiang, S., and Kim, S.-H.: 1999, Comparison of kinetic and hybrid-equilibrium models simulating colloid-facilitated contaminant transport in porous media, *Transport in Porous Media* **36**, 373-390.
- [Derjaguin & Landau] Derjaguin, B.V., and Landau, L.D.: 1941, Theory of the stability of strongly charged lyophobic sols and the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes, *Acta Physicochem.*, URSS, **14** 633(1941).

- [Dodds, 1982] Dodds, J.: 1982, La chromatographie hydrodynamique, *Analysis* **10**(3), 109-119.
- [Entov *et al*, 1975] Entov, V., Feldman, Z., and Chen-Sin, E.: 1975, Simulation of the capillary imbibition in porous media. *Programmation*, 3, 67-74 (in Russian).
- [Ferrara *et al*, 1999] Ferrara, A., Marseguerra, M., and Zio, E.: 1999, A comparison between the advection-dispersion and the Kolmogorov-Dmitriev model for groundwater contaminant transport, *Annals of Nuclear Energy*, **26**, 1083-1096.
- [Glimm & Sharp, 1991] Glimm, J. and Sharp, D.H.: 1991, A random field model for anomalous diffusion in heterogeneous porous media. *J. Stat. Phys.*, **62**(1991), 415-424.
- [Grolimund *et al*, 1998] Grolimund, D., Elimelech, M., Borkovec, M., Barmettler, K., Kretzschmar, R., and Sticher H.: 1998, Transport of in situ mobilized colloidal particles in packed soil columns, *Environmental Science & Technology* **32**, 3562-3569.
- [Grolimund *et al*, 1996] Grolimund, D., Borkovec, M., Barmettler, K. and Sticher, H.: 1996, Colloid-facilitated transport of strongly sorbing contaminants in natural porous media: a laboratory column study, *Environmental Science & Technology* **30**, 3118-3123.
- [Hamaker, 1937] Hamaker, H.C.: 1937, The London-van der Waals attraction between spherical particles, *Physica* **IV**(10), 1058-1072.
- [Herzig, Leclerc & LeGorf, 1970] Herzig, R.J.P., Leclerc, D.M., and LeGorf, P.: 1970, Flow of suspension through porous media, *Ind. Eng. Chem.* **62**(5), 8-35.
- [Iwasaki, 1937] Iwasaki, T.: 1937, Some notes on sand filtration, *J. Ann. Water Works Ass.*, 1591-1602.
- [Journel & Huijbregts, 1978] Journel, A.G., and Huijbregts, C.J.: 1978, *Mining Geostatistics*, London : Academic Press, 1978.
- [Kersting *et al*, 1996] Kersting, A.B., Efur, D.W., Finnegan, D.L., Rokop, D.J., Smith, D.K. and Thompson, J.L.: 1999, Migration of plutonium in groundwater at the Nevada Test Site, *Nature* **397**, 56-59.

- [Kim *et al*, 1992] Kim, J.I., Zeh, P., and Delakowitz, B.: 1992, Chemical interactions of actinide ions with groundwater colloids in Gorleben aquifer systems. *Radiochim. Acta*, 58-59, 1992, 147-154.
- [Khilar & Fogler, 1998] Khilar, K.C., and Fogler, H.S.: 1998, *Migration of fines in porous media*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London.
- [Khilar & Fogler, 1983] Khilar, K.C., and Fogler, H.S.: 1983, Water Sensitivity of Sandstones, *SPE J.* **55**(1983).
- [Korn & Korn, 1978] Korn, G. et Korn, T.: 1978, *Guide des mathématiques*. "Nauka", Moscou (en Russe).
- [Kretzschmar *et al*, 1999] Kretzschmar, R., Borkovec, M., Grolimund, D., and Elimelech, M.: 1999, Mobile subsurface colloids and their role in contaminant transport, *Advances in Agronomy* **65**.
- [Kretzschmar & Stiecher, 1998] Kretzschmar, R. and Stiecher, H.: 1998, Colloid transport in natural porous media: influence of surface chemistry and flow velocity, *Phys. Chem. Earth* **23**(2), 133-139.
- [Landau & Lifshitz, 1988] Landau, L.D. et Lifshitz, E.M.: 1988, *Hydrodynamics*, Nauka, Moscow (in Russian). Engl. Transl.: *Fluid Mechanics*, Pergamon Press, Oxford, 1993.
- [Logan, 2001] Logan, J. D.: 2001, *Transport modeling in hydrogeochemical systems. Interdisciplinary applied mathematics*, Springer-Verlag, New-York Inc.
- [Mantoglou, 1987] Mantoglou, A.: 1987, Digital simulation of multivariate two- of three-dimensional stochastic process with a spectral turning method. *Mathematical Geology*, **19**(1987), no.2, 129-149.
- [Mantoglou & Wilson, 1982] Mantoglou, A., and Wilson, J.L.: 1982, The turning bands method for simulation of random fields using line generation by a spectral method, *Water Resources Research* **18**(5), 1379-1394.
- [Marseguerra & Zio, 1997] Marseguerra, M., and Zio, E.: 1997, Modelling the transport of contaminants in groundwater as a branching stochastic process, *Annals of Nuclear Energy*, **24**(8), 625-644.

- [Massei *et al*, 2002] Massei, N., Lacroix, M., Wang, H.Q., and Dupont, J.-P.: 2002, Transport of particulate material and dissolved tracer in a highly permeable porous medium: comparison of the transfer parameters, *Journal of Contaminant Hydrology* **57**, 21-39.
- [Matheron, 1973] Matheron, G.: 1973, The intrinsic random functions and their applications. *Advan. Appl. Prob.* **5**(1973), 439-468.
- [McCarthy & Zachara, 1989] McCarthy, J. F., and Zachara, J.M.: 1989, Subsurface transport of contaminants, *Environmental Science & Technology* **23**, 496-502.
- [Mills, Lui & Fong, 1991] Mills, W.B., Lui, S., and Fong, F.K.: 1991, Literature review and model (COMET) for colloid/metals transport in porous media, *Ground Water* **29**, 199-208.
- [Moridis *et al*, 2003] Moridis, G.J., Hu, Q., Wu, Y.-S., and Bodvarsson, G.S.: 2003, Preliminary 3-D site-scale studies of radioactive colloid transport in the unsaturated zone at Yucca Mountain, Nevada, *Journal of Contaminant Hydrology* **60**, 251-286.
- [Oh, 2003] Oh Wonho: 1998, Random field simulation and an application of kriging to image thresholding. *Dissertation, State University of New York*.
- [Panfilov, 2000] Panfilov, M.: 2000, *Macroscale Models of Flow through Highly Heterogeneous Porous Media*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht.
- [Panfilov, 1991] Panfilov, M.: 1991, Percolation Characteristics of Branching Models of Porous Media. *Fluid Dynamics*, **25**, 6, May, 1991, p. 898-903.
- [Panfilova, 2003] Panfilova, I.: 2003, Ecoulements diphasiques en milieux poreux: modèle de ménisque, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, 2003.
- [Penrose *et al*, 1990] Penrose, W.R., Polzer, W.L., Essington, E.N., Nelson, D.M., and Orlandini, K.A.: 1990, Mobility of plutonium and americium through a shallow aquifer in a semiarid region, *Environmental Science & Technology* **24**, 228-234.

- [Rice, 1954] Rice, S.O.: 1954, Mathematical analyses of random noise. *Selected Papers on Noise and Stochastic Processes*, N. Wax, Dover, New York.
- [Ryan & Elimelech, 1996] Ryan, J.N. and Elimelech, M.: 1996, Colloid mobilization and transport in groundwater. *Colloids Surfaces, A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **107**, 1-56.
- [Samarskii, 1971] Samarskii, A.A.: 1971, *Introduction dans la théorie des schémas des différences*. Nauka, Moscou (en russe).
- [Samarskii, 1987] Samarskii, A.A.: 1987, *Introduction dans les méthodes numériques*. Nauka, Moscou (en russe).
- [Santos & Bedrikovetsky, 2006] Santos, A. and Bedrikovetsky, P. : 2006, A stochastic model for particulate suspension flow in porous media, *Transport in Porous Media* **62**, 1, 23-53.
- [Scheibe & Wood, 2003] Scheibe, T.D. and Wood, B.D.: 2003, A particle-based model of size or anion exclusion with application to microbial transport in porous media, *Water Resources Research* **39**(4), WR001223.
- [Schiffer *et al*, 2004] Schiffer, B., Totsche, K.U., Jann, S., Kögel-Knabner, I., Meyer, K., and Meyer Heinrich H.D.: 2004, Mobility of the growth promoters trenbolone and melengestrol acetate in agricultural soil: column studies, *Science of the Total Environment* **326**(2004), 225237.
- [Sen & Khilar, 2006] Sen, T.K., and Khilar, K.C.: 2006, Review on sub-surface colloids and colloid-associated contaminant transport in saturated porous media, *Advances in Colloid and Interface Science* **119**(2006), 71-96.
- [Sen *et al*, 2004] Sen T.K., Shanbhang S., and Khilar K.C.: 2004, Sub-surface colloids in groundwater contamination: a mathematical model. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* **232**(2004), 29-38.
- [Small, 1974] Small H.: 1974, *Hydrodynamic chromatography - A technique for size analysis of colloidal particles*. *J. Colloid Interface Sci.*, **48**, 147-161.

- [Sharma & Yortsos, 1987] Sharma, M.M., and Yortsos, Y.C. : 1987, *Transport of particulate suspension in porous media: model formulation*, AICHE J., **33**(15), 1616.
- [Shinozuka & Jan, 1972] Shinozuka, M. and Jan, C.-M.: 1972, Digital simulation of random process and its applications, *J. Sound Vib.*, **25**(1), 111-128.
- [Tihonov & Samarskii, 1977] Tihonov, A.N., et Samarskii, A.A.: 1977, *Equations of mathematical physics*, Nauka, Moscow (in Russian).
- [Verwey & Overbeek] Verwey, E.J.W., and Overbeek, J.Th.G: 1948, *Theory of the stability of lyophobic colloids*, Elsevier, Amsterdam.
- [von Neumann, 1966] von Neumann, J.: 1966, *Theory of self-reproducing automata*, (A.W. Burks, Editor) University of Illinois Press, Urbana, IL.
- [Wang *et al*, 2000] Wang, H.Q., Lacroix, M., Masséi, N. et Dupont J.-P.: 2000, Transport des particules en milieu poreux: détermination des paramètres hydrodispersifs et du coefficient de dépôt, *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIA - Earth and Planetary Science*, Vol. **331**, Issue 2, 97-104.

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Madame Azita AHMADI, Maître de Conférences, Lab. Trefle, Ensam, Talence

Monsieur Renaud DELANNAY, Professeur, Université de Rennes1, Rennes

Monsieur HuaQing WANG, Professeur, Université du Havre, Le Havre

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Madame ILINA Tatiana

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Modèles pseudo-diphasiques de transport facilité des colloïdes en milieux faiblement perméables"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Génie civil - hydrosystèmes - géotechnique** »

Fait à Vandoeuvre, le 19 décembre 2006

Le Président de l'I.N.P.L.,

L. SCHUFFENECKER



NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX