

# Approche expérimentale et numérique des instabilités de déplacement d'un DNAPL en milieu poreux saturé à l'échelle de Darcy

K. NSIR<sup>a,b</sup>, G. SCHÄFER<sup>a,b</sup>, O. RAZAKARISOA<sup>a,b</sup>, R. TOUSSAINT<sup>c</sup>, J. SCHMITTBUHL<sup>c</sup>

a. Institut de Mécanique des Fluides et des Solides (IMFS), 2 rue Boussingault, 67000 STRASBOURG

b. Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGeS), UMR 7517, CNRS – Université de Strasbourg (UdS), 1 rue Blessig, 67084 STRASBOURG Cedex.

c. Institut de Physique du Globe de Strasbourg (IPGS), UMR 7516, CNRS – Université de Strasbourg, 5 Rue René Descartes, 67084 STRASBOURG Cedex.

## Résumé :

*L'étude porte sur une quantification des instabilités de déplacement d'un DNAPL (Dense Non Aqueous Phase Liquid) en milieu poreux homogène et saturé en eau. L'approche expérimentale repose sur la mesure des vitesses d'arrivée du DNAPL dans une colonne de laboratoire à différents points d'une section de contrôle au moyen des fibres optiques et sur la cartographie in situ des saturations locales en DNAPL. La simulation numérique du processus de drainage (eau/DNAPL) est abordée par une approche de type réseau des pores et capillaires.*

## Abstract :

*This study is focussing on the quantification of the instability of DNAPL (Dense Non Aqueous phase Liquid) displacement in homogenous and water saturated porous media. The experimental approach is based on both the measurement of the velocity of DNAPL arrival in a laboratory column at different points of a control section by means of optic fibres and on the in situ mapping of local DNAPL saturations. The drainage process is numerically simulated by a network model of bodies and throats.*

**Mots clefs:** déplacement, instabilité, DNAPL, milieu poreux, réseau discret, fibres optiques

## 1 Matériels et méthodes

Les expériences ont été conduites sur une colonne de laboratoire afin de quantifier les instabilités d'un front de déplacement gravitaire d'eau par un DNAPL. Des capteurs à fibres optiques ont été mis au point pour mesurer la vitesse d'arrivée de DNAPL à différents emplacements d'une section de contrôle du dispositif expérimental. L'approche mathématique retenue est basée sur une représentation du milieu poreux comme un ensemble de pores et de capillaires de formes géométriques simples. La résolution des équations d'écoulement permet de déterminer les saturations en DNAPL ainsi que les pressions lors du déplacement.

### 1.1 Capteurs à fibre optique

Une fibre optique est constituée de 2 couches, le cœur et la gaine, avec des indices de réfraction différents. De ce fait, il y a des réflexions totales qui retiennent la lumière dans la fibre. Lorsqu'on enlève la gaine, la propriété de conduire la lumière, dépendra de l'indice de réfraction du milieu qui entoure le cœur. Ce type d'intervention sur la fibre crée une zone sensible qui permet la détection d'un DNAPL dans un milieu poreux saturé en eau due à la différence des indices de réfraction entre l'eau ( $n_{\text{eau}} = 1.33$ ) et le DNAPL ( $n_{\text{DNAPL}} = 1.46$ ). A l'extrémité de la zone sensible, un miroir est mis en place pour réfléchir la lumière conduite dans la fibre. La quantification de l'atténuation de la lumière réfléchi renseigne sur la présence ou non du DNAPL. Chacun de huit capteurs à fibre optique utilisés comporte une fibre optique modifiée (fibre multimodes à saut d'indice, à gros cœur (diamètre 600 $\mu\text{m}$ ) et grande ouverture numérique 0,37), une photodiode, un séparateur des faisceaux lumineux et un module de mesure de la lumière réfléchi.

## 1.2 Dispositif expérimental et protocole

Le dispositif expérimental est composé de deux colonnes identiques en verre ( $\phi = 10 \text{ cm}$  ;  $L = 34 \text{ cm}$ ) raccordées par une pièce jointive en acier inoxydable pour la mise en place des fibres optiques (figure 1). Les zones sensibles des fibres ont été placées dans des crépines en Téflon de faibles diamètres pour éviter les contraintes mécaniques au sein du milieu poreux et assurer le bon fonctionnement de la zone de détection. Les dimensions des fibres et crépines utilisées peuvent être considérées peu perturbatrices de l'écoulement. L'entrée et la sortie de la colonne sont équipées de deux capteurs de pression de type PMC131 permettant la mesure de la pression relative dans une gamme de pression entre 0 et 200 mbar. Les modules de mesure branchés aux fibres ainsi que les capteurs de pression sont connectés à une centrale d'acquisition des données (Agilent 34970A). Le milieu poreux choisi est le sable H2F, fournie par la société Friedrich en Allemagne. Ce milieu a une porosité d'environ 40%, une conductivité hydraulique de l'ordre de  $0.08 \text{ cm/s}$  et une masse volumique apparente de  $1.59 \text{ g/cm}^3$ . Le DNAPL utilisé est le trichloréthylène (TCE). Il s'agit d'un composé organo-chloré moins visqueux que l'eau dont la masse volumique est de  $1.462 \text{ g/cm}^3$ . L'injection du TCE à travers l'orifice d'entrée de la colonne est assurée par une pompe péristaltique fournissant un débit maximal de  $100 \text{ ml/min}$ .

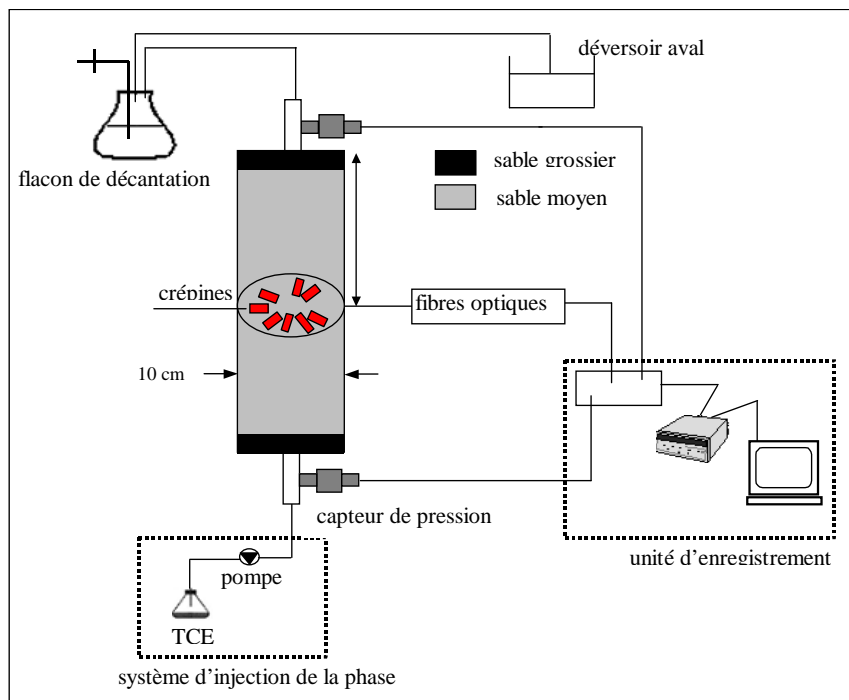


FIG. 1– Dispositif expérimental (cas d'injection de bas vers le haut)

Deux modes de déplacement de l'eau par le TCE ont été étudiés: le déplacement vertical ascendant (cas stable) et le déplacement vertical descendant (cas instable). Le volume du TCE injecté dans la colonne est de 1.5 litres ; le débit pratiqué dans les essais est de l'ordre de  $40 \text{ ml/min}$ . A la fin de chaque expérience, 3 échantillons de sable ont été prélevés tous les 5 cm à différentes positions du module supérieur du dispositif expérimental (un au centre et deux proches de la paroi). Sur la section proche de la section du contrôle, 10 prélèvements supplémentaires aux points qui coïncident éventuellement avec les emplacements des zones sensibles des fibres optiques ont été effectués. Les échantillons de sable ont été ensuite analysés par la méthode de chromatographie en phase gazeuse pour quantifier les saturations locales en TCE.

## 1.3 Modèle discret de type réseau de pores et de capillaires

### 1.3.1 Géométrie du réseau

Le milieu poreux est représenté par un réseau tridimensionnel de pores et de capillaires. Les pores sont sphériques et constituent la porosité du milieu poreux. Les capillaires sont de formes cylindriques et présentent des rayons plus faibles que les pores. La taille des rayons des pores et des capillaires est générée d'une manière aléatoire selon une loi de distribution statistique [9]

$$g(x) = \begin{cases} x/x_2^2 \exp(-x/x_2^2), & \text{si } x \leq x_3 \\ 0 & , \text{ si } x > x_3 \end{cases} \quad (1)$$

avec  $x = r - r_{\min}$ ,  $x_2 = r_{\text{moy}} - r_{\min}$  et  $x_3 = r_{\text{max}} - r_{\min}$ ,  $r$  réfère au rayon du pore ou du capillaire généré à partir de la loi de distribution,  $r_{\min}$ ,  $r_{\text{moy}}$ ,  $r_{\text{max}}$ , représentent respectivement le rayon minimum, moyen et maximum des pores ou des capillaires. La longueur  $L_{ij}$  d'un capillaire reliant deux pores adjacents de rayon  $r_i$  et  $r_j$  est  $L_{ij} = L - (r_i + r_j)$  où  $L$  est la distance séparant les centres de deux pores qui est supposée constante dans le réseau.

### 1.3.2 Algorithmes du processus de drainage eau/DNAPL

La modélisation du processus de drainage a nécessité d'implémenter des règles d'invasion [4]. Les effets de la capillarité dans les pores sont négligés et une interface unique sur la limite entre un pore et un capillaire est prise en compte [8]. De ce fait, la tension interfaciale joue un rôle uniquement lorsque les pores adjacents sont complètement remplis par deux fluides différents [6]. Considérons deux pores adjacents, l'un rempli par la phase non mouillante (DNAPL) et l'autre par la phase mouillante (eau). Lorsque la pression motrice de déplacement augmente, l'interface eau/DNAPL devient instable et une avancée rapide de l'interface a lieu une fois la pression capillaire franchie [1]. Ce mécanisme est simulé par le modèle en définissant une pression seuil nécessaire pour que l'interface se déplace dans le capillaire. Cette pression capillaire seuil  $P_c$  définie comme la différence de pression entre les deux phases à travers l'interface est donnée par la loi de Young-Laplace [3]

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

où  $\theta$  est l'angle de contact,  $\sigma$  (N/m) correspond à la tension interfaciale entre les fluides et  $r$  (m) est le rayon du capillaire.

### 1.3.3 Equations d'écoulement

Les fluides étant considérés incompressibles, l'application de la conservation de la masse pour chaque pore  $i$  du réseau conduit à l'équation suivante :

$$\sum_j Q_{ij} = 0 \quad (3)$$

où  $Q_{ij}$  ( $\text{cm}^3/\text{s}$ ) est le flux sortant du pore  $i$  vers les pores voisins  $j$ , qui est donné par la loi de Poiseuille

$$Q_{ij}^\alpha = G_{ij}^\alpha (P_i - P_j), \text{ si } z_i = z_j \quad (4a)$$

$$Q_{ij}^\alpha = G_{ij}^\alpha (P_i - P_j - \rho^\alpha L_{ij} g), \text{ si } z_i < z_j \quad (4b)$$

$$Q_{ij}^\alpha = G_{ij}^\alpha (P_i - P_j + \rho^\alpha L_{ij} g), \text{ si } z_i > z_j \quad (4c)$$

où  $z$  est la cote du pore considéré et  $G_{ij}$  est la conductance du capillaire contenant une phase fluide  $\alpha$

$$G_{ij}^\alpha = \frac{\pi r_{ij}^4}{8\mu^\alpha L_{ij}} \quad (5)$$

$P_i$  et  $P_j$  sont les pressions dans les pores  $i$  et  $j$ ,  $r_{ij}$  est le rayon du capillaire,  $\mu^\alpha$  et  $\rho^\alpha$  sont respectivement la viscosité et la masse volumique de la phase  $\alpha$ . La substitution de l'équation (4) dans (3) conduit à un système d'équations linéaires qui peut être reformulé sous forme matricielle

$$A_{ij} X_i = B_i \quad (6)$$

où  $A_{ij}$  est une matrice ayant comme termes les conductances des capillaires et  $X_i$  correspondent aux éléments inconnus du vecteur pression. Le vecteur  $B_i$  contient les termes connus issus des conditions aux limites. La résolution du système d'équations est effectuée par la méthode de gradient conjugué préconditionné. Les pressions calculées sont ensuite utilisées pour déterminer les saturations en DNAPL dans les pores. Le pas du temps  $T_{\min}$  choisi correspond au temps minimal nécessaire pour un remplissage complet d'un pore en phase non mouillante. En tenant compte du champ des saturations en DNAPL  $S^n$  au pas de temps précédant, le nouveau champ des saturations  $S^{n+1}$  est déterminé comme suit :

$$S_i^{n+1} = S_i^n + \frac{Q_i \times T_{\min}}{V_i} \quad (7)$$

où  $Q_i$  est le flux global en DNAPL entrant dans le pore  $i$  et  $V_i$  correspond au volume du pore.

## 2 Résultats

### 2.1 Distribution des vitesses du front de déplacement

Les vitesses du front de déplacement ( $V$ ) sont calculées à partir des temps d'arrivée ( $T$ ) du DNAPL mesurés au moyen des fibres optiques,  $V = \Delta L / T$  où  $\Delta L$  correspond à la distance de la section d'entrée au point d'observation. La figure 2 montre les résultats d'une analyse statistique de la distribution des vitesses d'arrivée du DNAPL pour les deux cas de déplacement. Les vitesses calculées sont étalées pour le cas de déplacement descendant et leur distribution est plutôt non uniforme. Cette forte variation des vitesses est essentiellement due aux instabilités gravitaires de déplacement.

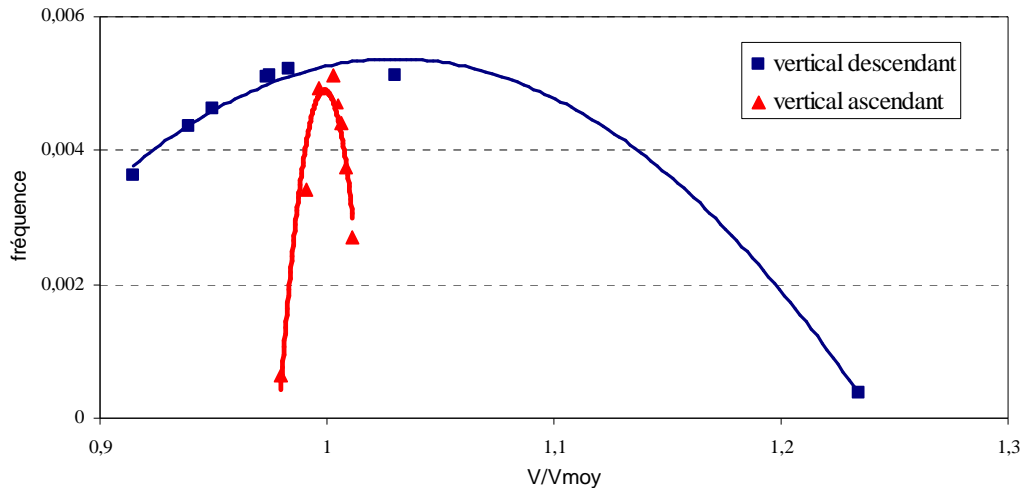


FIG. 2 – Distribution des vitesses d'arrivée du TCE normalisés par rapport à la vitesse moyenne ( $V_{moy}$ ) dans la section de contrôle pour les deux cas de déplacement

Compte tenu du contraste de densité et de viscosité entre les deux fluides, le TCE tend à emprunter des chemins où la résistance au déplacement est moins élevée [2, 5, 7]. De ce fait, le DNAPL forme des digitations bien marquées qui conduisent à une répartition non uniforme du DNAPL dans le milieu poreux saturé. Dans le cas de déplacement ascendant, la gravité joue un rôle stabilisateur dans la migration du DNAPL et compense le rapport défavorable de la viscosité entre les deux fluides. Le déplacement eau/TCE est de type piston et par conséquent les vitesses d'arrivée enregistrées sont rapprochées. Les saturations en TCE quantifiées sur la section proche des emplacements des fibres (figure 3) confirment indirectement ces observations. En effet, une saturation de l'ordre de 2 % pourrait être une zone où le front de TCE est passé tout récemment. Cependant, les saturations élevées, par exemple 12 à 17 %, marquent les zones de passage préférentiel du TCE caractérisant des temps d'arrivée précoces du DNAPL dans la section de contrôle.

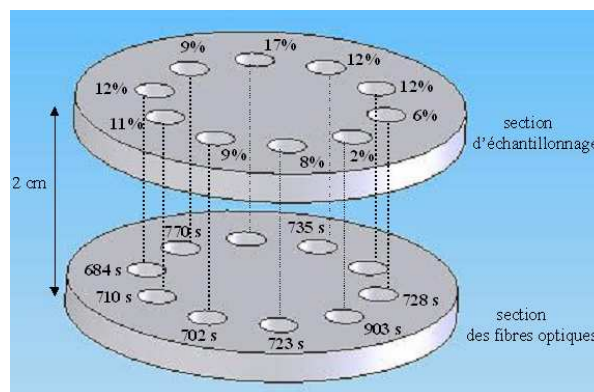


FIG. 3. – Temps d'arrivée du DNAPL dans la section de contrôle et saturations en DNAPL correspondants aux emplacements des fibres optiques (cas du déplacement descendant)

## 2.2 Répartition des saturations en TCE dans le milieu poreux saturé

Le profil des saturations en TCE obtenu à proximité de la paroi de la colonne présente un front abrupt dans le cas du déplacement ascendant cependant il est irrégulier dans le cas de déplacement descendant (figure 4). D'autre part, les valeurs des saturations enregistrées sont plus faibles dans le cas du déplacement descendant. En effet, la saturation maximale en TCE ne dépasse pas 30% pour ce cas de déplacement. Les forces de gravité présentent donc une influence importante sur les phénomènes de digitations lors de la migration verticale du DNAPL dans le milieu poreux saturé. Ces forces stabilisent le front avec une distribution homogène du DNAPL lors du déplacement ascendant. Dans le cas inverse, le champ de saturation devient fortement hétérogène.

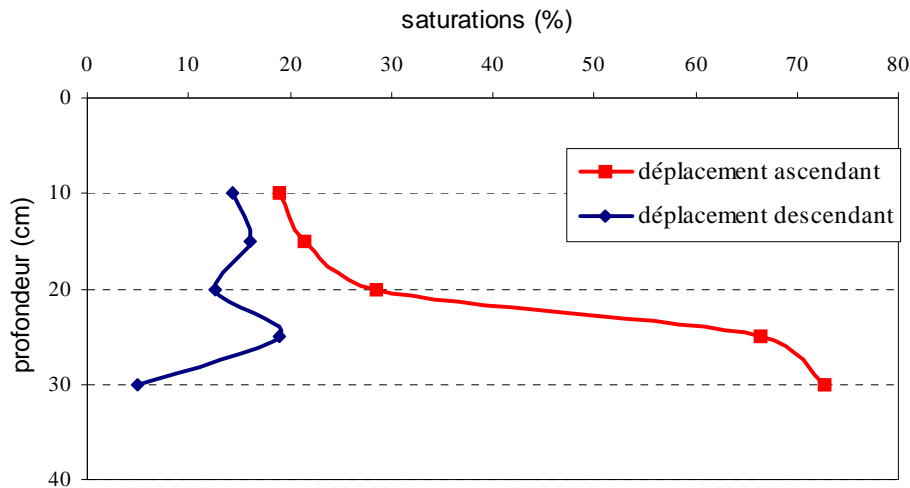


FIG. 4 – Profils des saturations en TCE en fonction de la profondeur pour les deux cas de déplacement

## 2.3 Simulation numérique des instabilités de déplacement eau/DNAPL

Le modèle développé est utilisé pour simuler les deux cas de déplacement eau/TCE. Afin de s'approcher des conditions de l'expérience, une condition de Neumann (flux imposé) a été choisie sur la limite amont. Le débit de DNAPL injecté ( $Q = 0.015$  ml/min) est défini au niveau de chaque pore appartenant à cette section d'entrée. La limite aval du réseau correspond à une condition de Dirichlet où la pression est maintenue constante ( $P = 0$ ) sur toutes les pores de cette limite. Le réseau simulé comporte  $10 \times 10 \times 20$  pores et ne représente pas la structure réelle du milieu poreux utilisé dans l'expérimentation. Dans ce cas test, les paramètres fictifs caractérisant la distribution de la taille des pores et des capillaires du réseau ( $R_{\min}, R_{\text{moy}}, R_{\max}$ ) sont respectivement (0.6, 1.2, 1.8) et (0.2, 0.4, 0.6) mm. La distance  $L$  séparant les centres de deux pores adjacents est de 6 mm. L'occupation du réseau en TCE pour les deux cas de déplacements est illustrée dans la figure 5. Compte tenu des résultats obtenus, nous constatons que le modèle reproduit qualitativement les cheminements préférentiels observés sur colonne de laboratoire. En effet, la répartition du DNAPL obtenue pour le cas de déplacement ascendant est relativement uniforme. Le DNAPL injecté remplit la majorité des pores à différentes tailles et dans toutes les directions. Cependant, la répartition du DNAPL est ramifiée dans le cas du déplacement descendant. La phase envahissante suit les chemins menant aux pores ayant une grande taille et aux canaux ayant une pression capillaire seuil minimale.

## 3 Conclusions et perspectives

Le dispositif expérimental tel qu'il a été conçu a permis de fournir des informations quantitatives et précises sur les instabilités de déplacement de drainage eau/DNAPL. Les phénomènes observés ont été reproduits qualitativement au moyen du modèle discret développé. La prochaine étape consistera à paramétrer le modèle réseau pour le milieu poreux utilisé dans l'expérimentation afin de pouvoir simuler les expériences et comparer les résultats numériques et expérimentaux. Nous envisageons aussi de réaliser une étude similaire du processus de l'imbibition couplée au processus de drainage et quantifier les saturations résiduelles en DNAPL dans les différents cas de déplacement (stable et instable).



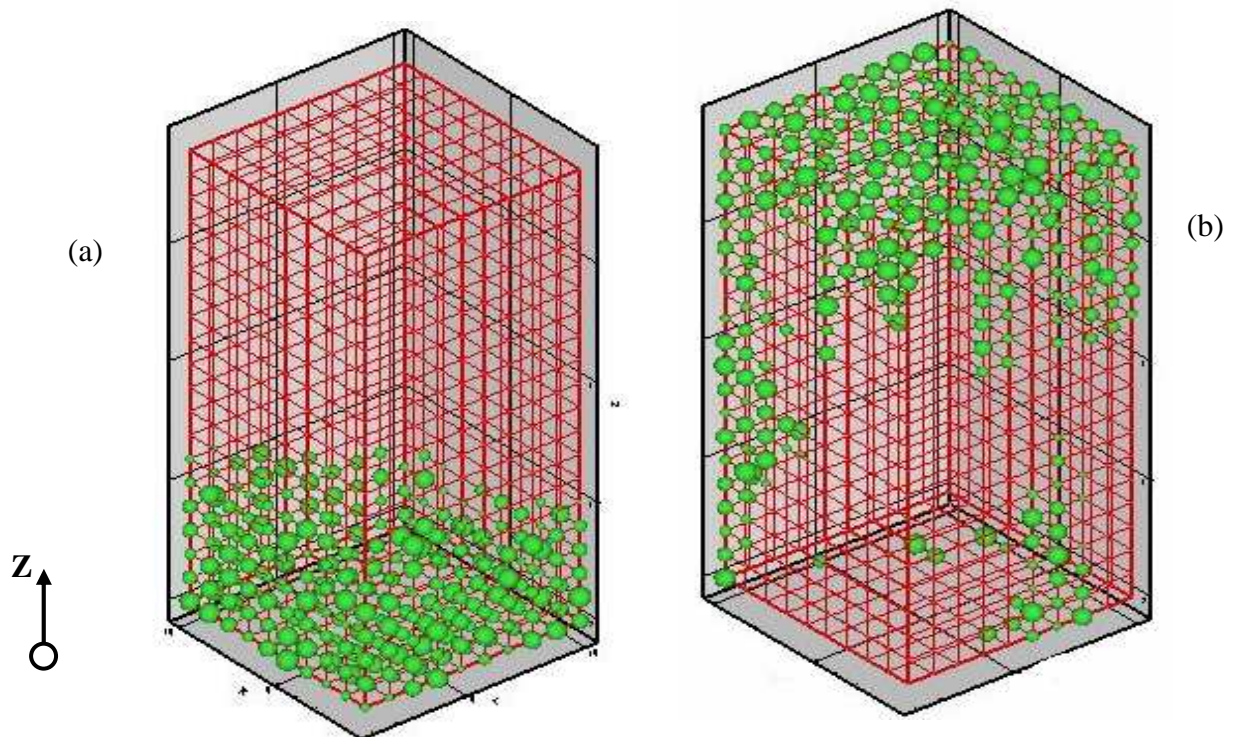


FIG. 5 – Occupation du réseau en TCE (sphères remplies) pour la même séquence de déplacement (envahissement de 700 pores du réseau) pour les cas de déplacement ascendant (a) et descendant (b)

## Remerciements

Ces travaux ont reçu le soutien financier du REseau Alsace de Laboratoires en Ingénierie et Sciences pour l'Environnement (REALISE), du GDR «Hydrodynamique et Transferts dans les Hydrosystèmes Souterrains» et du Conseil Scientifique de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg. Nous tenons à adresser nos sincères remerciements à Messieurs Olivier Cregut, IR CNRS (IPCMS), Pascal Friedmann, TCN CNRS (LhyGeS), Joseph Rapp AI CNRS (IMFS) et Gilles Versini, TCS Uds (IPCMS) pour leur participation active à la mise au point des capteurs à fibre optique et à la conception du montage expérimental.

## Références

- [1] Ahmadi A., Aigueperse A. and Quintard M., Upscaling of nonwetting phase residual transport in porous media: A network approach, *Transport in Porous Media*, 43, 309-353, 2001.
- [2] Dawson H.E. and Roberts P.V., Influence of viscous, gravitational, and capillary forces on DNAPL saturation, *Ground Water*, 35, 261-269, 1997.
- [3] Dullien F.A.L., *Porous media, fluid transport and pore structure*, Academic, San Diego, California, 1992
- [4] Koplik J. and Lasseter T.J., Two phase flow in random network models of porous media, *SPE*, 89-100, 1985.
- [5] Kueper B.H. and Frind E.O., An overview of immiscible fingering in porous media, *Journal of contaminant Hydrology*, 2, 95-110, 1989.
- [6] Lenormand R., Zarcone C. and Sarr A., Mechanisms of displacement of one fluid by another fluid in a network of capillary ducts, *Journal Fluids Mechanisms*, 135, 337-353, 1983.
- [7] Løvoll G., Méheust Y., Maløy K. J., Aker E. and Schmittbuhl J., Competition of gravity, capillary and viscous forces during drainage in a two-dimensional porous medium, a porous scale study, *Energy*, 30, 861-872, 2005.
- [8] Nordhaug H.F., Celia M. and Dahle H.K., A pore network model for calculation of interfacial velocities, *Advances in Water Resources*, 26, 1061-1074, 2003.
- [9] Singh M. and Mohanty K., Dynamic network for drainage through three dimensional porous materials, *Chemical Engineering Science*, 58, 1-18, 2003.