

Résumé

Le nombre de cas de contamination des eaux souterraines par des produits pétroliers (et dérivés) n'a cessé de croître durant ces dernières années. Ces contaminations sont essentiellement dues à des déversements accidentels ou à des fuites issues de lieux de stockage. Ces produits, comme le trichloréthylène (TCE) et le perchloréthylène (PCE) sont fortement toxiques et faiblement solubles dans l'eau. Ils peuvent contaminer un aquifère sur plusieurs dizaine d'année.

Ce travail de recherche se place donc dans un contexte d'évaluation du devenir de ces composés organochlorés aliphatiques (COCA) dans le milieu souterrain. Il s'inscrit dans le cadre du programme R&D « code complet » co-financé par l'ADEME et dont les partenaires sont BURGEAP, le LHyGeS et l'IMFT. Ce programme a été initié à la suite du programme R&D MACAOH (Modélisation Atténuation, Caractérisation dans les Aquifères des Organo-halogénés) et co-financé par l'ADEME et le BURGEAP. Les situations classiquement rencontrées sur les sites pollués mettent en jeu une « zone source » (corps d'imprégnation à saturation résiduelle) dont la modélisation nécessite de prendre en compte de façon concomitante, les écoulements triphasiques, les transferts de masse entre phases (volatilisation, dissolution, sorption), des mécanismes de dégradation (biodegradation de la phase dissoute) et des interactions nappes-rivières. Il n'existe pas à ce jour de code complet permettant de tenir compte de l'ensemble de ces mécanismes. Dans le domaine de la modélisation des hydrosystèmes souterrains, la simulation d'écoulements multiphasiques devient complexe (hétérogénéités, couplage avec des hydrosystèmes de surface). La difficulté majeure vient essentiellement de la nature non linéaire des équations qui régissent le système et du manque de données concernant les relations constitutives. Ce travail de thèse a donc pour vocation de fournir un outil de calcul performant (temps de calcul, structure modulaire) permettant de simuler dans un premier temps les équations d'écoulement compressible multiphasique. Une étape ultérieure consistera à traiter les équations de transport multiconstituants en y associant les nouveaux formalismes physiques présentés plus haut.

Dans ce contexte de travail, le mémoire de thèse présente la mise en place d'algorithmes numériques performant pour résoudre les équations décrivant les écoulements multiphasique dans le milieu poreux. Des outils numériques sont également décrits et utilisés afin de générer l'ensemble des variables secondaires indispensable à une résolution performante de l'écoulement. Les méthodes numériques retenues pour l'écoulement sont les éléments finis mixtes hybrides, les éléments finis discontinus ainsi que des éléments finis conformes C^0 et des éléments finis composites spectraux C^1 . Ce mémoire propose, après une revue bibliographique sur les formalismes existants, une description des schémas utilisés dans l'acquisition des variables d'écoulement. Des expériences numériques sont ensuite menées sur des cas multiphasiques (1D,2D, diphasiques et triphasiques) avec effet de compressibilité. Dans le cas mono dimensionnel, les résultats numériques sont comparés avec des solutions analytiques et semi-analytiques également décrites dans le mémoire. Enfin une dernière partie est consacrée aux équations de transport avec une description du formalisme retenu et plus particulièrement sur les phénomènes de dissolution. Le mémoire de thèse se décline en cinq chapitres qui renvoient vers les annexes concernant les détails des développements numériques.

La **première partie** est un chapitre bibliographique dont l'objectif est de présenter les modèles d'écoulements multiphasiques existants. Une reformulation de l'écoulement, par rapport aux approches classiques (pression moyenne / saturation, pression / pression), est ensuite proposée en pression globale / saturation (eau et gaz) [4]. Ce choix d'une approche globale dans la quantification des écoulements triphasiques compressibles est intéressant car il permet de gagner en temps de calcul et simplifie la discrétisation ultérieure des équations. La reformulation conservative des écoulements triphasiques en pression globale permet d'obtenir une expression de la pression globale comme la somme de la pression de la phase intermédiaire (ici en terme de

mouillabilité : l'huile) et de la pression capillaire étendue ou pression capillaire globale [4]. Cette approche requiert une étape préalable de pré traitement des données initiales. Pour l'acquisition de ces données, les valeurs expérimentales sont uniquement connues en système diphasique et très rarement en système triphasique. Un certain nombre d'interpolation sont donc utilisées pour pallier ce manque d'information [9]. Leur existence montre qu'aucune interpolation ne reflète la réalité et qu'il est donc possible de proposer une nouvelle classe d'interpolation de ces données triphasiques tenant compte des propriétés des fluides (viscosités, compressibilité, tensions interfaciales) tout en respectant la condition de différentielle totale (DT) dans l'écoulement. L'acquisition de ces données permet de résoudre plus rapidement les écoulements multiphasiques compressibles. Cette nouvelle formulation est équivalente à la formulation originale [6] (incompressible) et a été élargie aux écoulements compressibles diphasiques [1] puis triphasiques [6]. Une première version de l'algorithme d'interpolation de ces données est donnée dans le chapitre 2 du mémoire de thèse [3] mais sa complexité a cependant, limité son utilisation dans des codes numériques.

Le **deuxième chapitre** est consacré à l'implémentation de l'approche globale développée plus haut (cf. chapitre 1). Une première approche d'acquisition des variables secondaires par optimisation, basée sur l'algorithme de Chavent-Salzano [3,4] est donnée. Le système physique recherché détermine un domaine triphasique dans lequel nous exprimons trois nouvelles fonctions à savoir : les perméabilités relatives triphasiques, les fonctions fractionnelles triphasiques et la mobilité totale des trois phases. La difficulté réside dans la détermination des perméabilités relatives à l'intérieur du domaine triphasique. Plusieurs méthodes existent et se basent sur des considérations physiques [9]. L'approche que nous adoptons ici consiste à prolonger les données diphasiques (connues sur les frontières) à l'ensemble du diagramme et ainsi déterminer les perméabilités relatives triphasiques en respectant une condition dite de « différentielle totale » [7,4]. Des résultats sont présentés pour deux sables différents : un sable fin (H1F) et un sable moyen (H2F). Cependant au terme de ces premiers résultats, cette première approche n'a pas été retenue car elle ne permet pas de représenter la physique recherchée. Une deuxième approche a donc été développée dans ce sens [6]. Cependant, la nouvelle implémentation que nous proposons dans le chapitre 3 est plus « opérationnelle » et permet d'espérer des temps de calculs de l'écoulement divisés par deux [4,7].

Le **troisième chapitre** décrit l'approche globale revisitée [5,11] ainsi que son implémentation. Un nouvel algorithme d'interpolation des variables triphasiques par éléments finis C^0 et C^1 est donné. Une première étape consiste à calculer la pression capillaire sur les frontières du diagramme à partir de trois équations différentielles ordinaires non linéaires. La résolution est assurée par un schéma multi-pas prédictor-correcteur d'Adams [8] avec une procédure de linéarisation (méthode de Picard) sur la correction. La condition de différentielle totale est alors introduite et consiste, au terme de la résolution des trois équations différentielles ordinaires, à fermer le diagramme ternaire en imposant que la valeur de pression capillaire au sommet en gaz soit identique (condition de compatibilité). Cela induit une correction au niveau de la pression capillaire globale sur le système gaz-huile qui n'affecte pas de manière significative le modèle de perméabilité initiale imposé. L'approche qui est adoptée, pour la résolution de la mobilité globale et celle de la pression capillaire globale, utilise respectivement des éléments finis standard C^0 et des éléments finis composites spectraux C^1 [2]. Les perméabilités triphasiques découlent des solutions obtenues par ces deux méthodes. Les données requises en entrée de modèle sont le niveau de pression globale, les perméabilités diphasiques, certaines propriétés des fluides et les pressions capillaires diphasiques. En sortie, l'algorithme donne les perméabilités triphasiques et le facteur de compressibilité associé. Deux cas sont analysés : un cas incompressible et un cas compressible. La solution obtenue sur la mobilité globale est régulière avec un effet de rehaussement global des valeurs pour le cas compressible. La prise en compte de la compressibilité aboutit à des perméabilités en eau supérieure (par rapport au cas incompressible) pour des saturations en gaz plus grandes. Afin de proposer un outil d'interpolation performant, deux choix ont été testés : une première option choisie a été de redéfinir un nouvel élément finis composite réduit. Son utilisation permet de diviser le temps de calcul par dix mais impose d'affecter des conditions aux limites

régulières (strictement monotone). Un deuxième choix s'est porté sur l'utilisation d'un solveur multifrontal pour résoudre localement les matrices de flexion et a abouti à des gains de temps de calcul de l'ordre de deux par rapport à des approches directes classiques. L'analyse des résultats obtenus en pression capillaire globale permet de justifier le choix de la pression globale comme variable primaire de l'écoulement. En effet, la pression capillaire apparente (cas 2) obtenue par soustraction entre la pression capillaire globale et la pression capillaire eau-huile est lissée pour une saturation en eau croissante. D'autres approches classiques aboutissent à des singularités aux sommets en eau et en gaz pénalisant ainsi le temps de calcul. Contrairement au modèle de Stone [9] couramment utilisé, les perméabilités triphasiques associées à cette interpolation tiennent explicitement compte des propriétés de chacun des trois fluides ainsi que de la pression de chacune des phases. Les perméabilités obtenues sont donc des variables de la saturation en eau, en gaz, des viscosités, de la pression en gaz, des tensions interfaciales, des pressions capillaires. En outre, les résultats obtenus, concernant le facteur de compressibilité et garantissent la stabilité du schéma reformulé en pression globale/saturation vu dans le premier chapitre [5,6].

Le **chapitre 4** présente les schémas numériques retenus et la discrétisation des équations d'écoulement triphasique basées sur l'approche globale revisitée. La formulation en écoulement fractionnel adoptée dans le chapitre 1 permet d'identifier si l'écoulement est dominé par les forces de convection ou de capillarité. Cette formulation donne lieu à deux équations de nature différentes. La méthode des éléments finis mixtes hybrides (EFMH) classiquement appliquée aux équations parabolique/elliptique est proposée pour l'équation en pression globale. Une méthodologie similaire est mise en place pour la partie « diffusive » de l'équation de saturation. Une formulation par éléments finis discontinus (EFD) est proposée pour l'équation hyperbolique obtenue par « operator splitting » sur les équations de saturation en eau et en gaz. Nous traitons également du problème de l'évaluation des variables secondaires non-linéaires issues de l'interpolation précédente (cf. chapitre 3) ainsi que du traitement des hétérogénéités. Des premiers tests d'écoulement sont comparés aux solutions semi-analytique de McWorther-Sunada [10] et analytique de Buckley-Leverett [11] permettent d'envisager une bonne résolution du nouvel écoulement proposé. Des études numériques sont menées et comparées sur des cas bidimensionnels diphasiques avec effet de compressibilité.

Pour conclure, le **cinquième chapitre** traite des perspectives de couplage entre le modèle d'écoulement multiphasique développé et le modèle de transport multiconstituants associant un module de cinétique de dissolution de la phase organique. Différentes corrélations du coefficient de transfert de masse sont analysées et comparées. Dans le cadre du couplage écoulement/transport, une formulation analogue à l'écoulement par « operator splitting » est décrite en utilisant les outils numériques existants (EFMH,EFD). Des travaux futurs se focaliseront sur la mise en place des nouveaux modules décrit en introduction et sur leur validation par rapport à des solutions numériques existantes. Des piste de recherches permettraient d'associer les deux éléments finis composites développés (cf. chapitre 3) et de tirer partie de la rapidité des éléments finis spectraux réduits et de la précision des éléments finis complets. Des travaux ultérieurs pourront également être menés afin de « guider » l'interpolation vers des modèles de perméabilité connus ou des valeurs expérimentales ponctuelles par optimisation tout en respectant la condition de « Différentielle Totale ».

Références

- [1] Amaziane, B. and Jurak, M., 2008, A new formulation of immiscible compressible two-phase flow in porous media, *C.R. Mécanique* **336**, Science Direct, 600-605
- [2] Bernadou M., Hassan K., 1980, Basis functions for general Hsieh-Clough-Tocher triangles complete or reduced, *Inria Report*
- [3] Chavent, G. and Salzano, G., 1985, Un algorithme pour la détermination de perméabilités relatives triphasiques satisfaisant une condition de différentielle totale, *Inria Report* RR-0355
- [4] Chavent, G. and Jaffré , J., 1986, Mathematical Models and Finite Elements fo Reservoir Simulation, *North-Holland*, Amsterdam
- [5] Chavent, G., di Chiara Roupert R., Schäfer G., 2008, A Fully Equivalent Global Pressure Formulation for Three-Phase Compressible Flows, presented at the *conference Scaling'Up 08*, Dubrovnik, October 13-16
- [6] Chavent, G., 2009, A Fully Equivalent Global Pressure Formulation for Three-Phase Compressible Flow, *Applicable Analysis*, Vol. **00**, No.00 1-14
- [7] Chen, Z., 2005, Finite Element Methods and Their Applications, Scientific Computation *Springer*, Berlin, pages 338-349
- [8] Quarteroni A, Sacco R, Saleri F. Méthodes Numériques – Algorithme, analyse et applications. *Springer*, Italia, 2007.
- [9] Stone, H.M., 1970, Probability model for estimating three-phase relative permeability, *Journal of Petroleum Technology* **22**, 214-218
- [10] McWhorther D.B., Sunada D.K., 1990, Exact Integral Solutions for two-phase flow, *Water Ressources Research*, **26,3**, 399-413
- [11] Buckley S.E., Leverett M.C., 1942, Mecanism of fluid displcement in sands, *Trans. Am. Inst. Min. Metall. Pet. Eng.*, **146**,107-116.