



Modélisation du transport réactif en milieu poreux : schéma itératif associé à une combinaison d'éléments finis discontinus et mixtes-hybrides

Modelling reactive transport in porous media: iterative scheme and combination of discontinuous and mixed-hybrid finite elements

Jérôme Carrayrou^a, Robert Mosé^{a,b}, Philippe Behra^{a,c}

^a Institut de mécanique des fluides et des solides de l'Université Louis Pasteur, UMR 7507, Université Louis Pasteur – CNRS, 2, rue Boussingault, 67000 Strasbourg, France

^b École nationale du génie de l'eau et de l'environnement de Strasbourg, 1, quai Koch, 67000 Strasbourg, France

^c École nationale supérieure des ingénieurs en arts chimiques et technologiques, Laboratoire de chimie agro-industrielle, UMR 1010 INRA/INP-ENSIACET, 118, route de Narbonne, 31077 Toulouse cedex 4, France

Reçu le 17 septembre 2001 ; accepté après révision le 14 janvier 2003

Présenté par Michel Combarous

Résumé

Dans le cadre d'une approche par séparation d'opérateurs, le schéma itératif (I) représente une bonne méthode pour la résolution du transport de solutés réactifs en milieu poreux. La combinaison d'éléments finis discontinus et mixtes-hybrides permet la résolution efficace du transport en milieu poreux, mais sa mise en œuvre dans un schéma I conduit à des difficultés numériques importantes. Nous présentons ici comment associer ces deux méthodes afin de simuler le transport de solutés réactifs. La modélisation d'une expérience en colonne permet de tester cette nouvelle méthode. **Pour citer cet article : J. Carrayrou et al., C. R. Mecanique 331 (2003).**

© 2003 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS. Tous droits réservés.

Abstract

The sequential iterative approach (SIA) scheme is the most efficient method for modelling reactive transport in porous media with the operator-splitting approach. A combination of finite discontinuous and finite mixed-hybrid elements is a powerful method for solving solute transport in porous media, but the use of this method for SIA scheme induces numerical difficulties. In this paper, a new method is developed to solve reactive transport by using both the SIA scheme and a combination of finite discontinuous and finite mixed elements. The proposed method is tested by modelling a column experiment. **To cite this article: J. Carrayrou et al., C. R. Mecanique 331 (2003).**

© 2003 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS. All rights reserved.

Adresse e-mail : carrayro@imfs.u-strasbg.fr (J. Carrayrou).

Mots-clés : Milieux granulaires ; Sols ; Milieux poreux ; Transferts thermiques ; Milieux réactifs ; Combustion ; Transport réactif ; Séparation d'opérateurs ; Schéma itératif ; Éléments finis discontinus ; Éléments finis mixtes-hybrides

Keywords: Granular media; Soils; Porous media; Heat transfer; Reactive media; Combustion; Reactive transport; Operator-splitting; Iterative scheme; Finite discontinuous elements; Mixed-hybrid finite elements

Abridged English version

Modelling reactive transport in porous media needs the resolution of both a transport and a chemistry operator. In an operator-splitting (OS) approach, each operator is solved independently of the other one. The OS approach is very attractive because it is computationally less expensive than solving the global system and it allows the use of highly specific method for solving each operator. Nevertheless, it induces intrinsic OS errors due to the separation of the operators. In this paper, we discuss a way to associate a very efficient method for solving the transport operator with an OS approach that minimizes the OS errors. Under an instantaneous equilibrium formulation, it has been well reported [2,7] that the Standard Iterative (SI) scheme is the OS method that induces the minimum of OS errors, but it needs an implicit time formulation for the transport operator. On the other hand, the Standard Non Iterative (SNI) scheme induces more OS errors but the time formulation of the transport operator is free. The method (EFDMH) used for solving transport operator [3] is based on the separation of the two parts of the transport equation. The advective (the dispersive) part is solved with a discontinuous finite elements method with an explicit time formulation (mixed hybrid finite elements method with an implicit time formulation, respectively).

We associated EFDMH and SI scheme in a two steps algorithm. First step: the advective part of the transport equation was solved with discontinuous finite elements and the chemistry operator was then solved and associated to a SNI scheme. Second step: the dispersive part was solved with mixed hybrid finite elements and the chemistry operator was solved and associated to a SI scheme.

These associations were tested and compared. A reactive transport experiment (Table 1) from Lefèvre et al. [9] was solved by three ways: (i) The transport operator solved by finite differences with an implicit time formulation and OS is done by a SI scheme; (ii) EFDMH associated with the SNI scheme; (iii) EFDMH and SI scheme associated as written above. A reference solution was obtained by the three ways, if the mesh and the time step were sufficiently small. With larger mesh and time step, we showed (Fig. 1) that the ways (i) and (iii) were the less and the more efficient, respectively. This shows the importance of associating the best method for solving each operator and the best OS scheme for solving reactive transport problems.

1. Introduction

La compréhension des phénomènes de transport de solutés réactifs ou transport réactif en milieu poreux et leur simulation dans un but prédictif constituent une étape incontournable pour une gestion durable de la qualité des aquifères ou du stockage des déchets. Les modèles numériques de transport de solutés réactifs en milieu poreux représentent à ce titre des outils privilégiés.

Actuellement, ces modèles portent essentiellement sur le transport réactif dans des domaines mono-directionnels, éventuellement bi-dimensionnels, et homogènes tant d'un point de vue (géo)chimique qu'hydrodynamique [1]. Pour appliquer ces modèles à des cas réels, il s'avère indispensable de prendre en compte des domaines bi- et tri-dimensionnels hétérogènes. Dans le cadre d'une approche par séparation d'opérateurs [2], il est nécessaire d'utiliser des méthodes spécifiques de résolution de l'opérateur de transport permettant la prise en compte performante de ces domaines 2D ou 3D. Or leur mise en œuvre dans le transport réactif se heurte à de nombreux obstacles numériques. Dans cet article, nous présenterons comment surmonter ces difficultés et utiliser une combinaison d'éléments finis discontinus et d'éléments finis mixtes-hybrides (EFDMH) pour résoudre l'opé-

rateur de transport [3]. L'utilisation de cette combinaison EFDMH permet d'obtenir une solution compatible avec les contraintes chimiques, absence de concentrations négatives, faible diffusion numérique, quelles que soient les conditions hydrodynamiques. Il est cependant nécessaire d'adapter les techniques de séparation d'opérateurs pour obtenir les meilleurs résultats.

Si la vitesse de l'écoulement est suffisamment lente par rapport aux temps caractéristiques des réactions [4], les phénomènes chimiques peuvent être supposés à l'équilibre thermodynamique. La représentation des systèmes chimiques par tableaux des équilibres [5] permet de ne résoudre l'opérateur de transport que pour les concentrations totales en composants [6,7], en supposant le tenseur de dispersion \mathbf{D} identique pour chaque forme chimique d'un élément donné [8] :

$$\frac{\partial(\omega Td_j + \rho_S Tf_j)}{\partial t} = \nabla \cdot [\mathbf{D} \cdot \nabla(Td_j)] - U \cdot \nabla(Td_j) \quad (1)$$

avec ω la porosité, ρ_S la masse volumique de la matrice solide, U la vitesse de Darcy, et pour le composant j (soluté), Td_j la concentration totale en soluté dissous et Tf_j la concentration totale en soluté fixé. Par soucis de simplification, ω et ρ_S seront supposés constants. La répartition des espèces entre les phase aqueuse et solide est calculée par résolution du système algébrique non linéaire formé par les lois d'action de masse et les équations de conservation de la matière.

2. Méthodes

L'approche par séparation d'opérateurs permet de résoudre séparément les opérateurs de transport et de chimie et d'utiliser les méthodes les mieux adaptées pour chaque opérateur. Deux schémas de séparation sont alors envisageables [7].

2.1. Schéma Non Itératif (NI)

Le schéma NI entre les pas de temps n et $n + 1$ consiste en une étape de transport non réactif (2) suivie du calcul des équilibres thermodynamiques (3) :

$$\omega \frac{Td_j^* - Td_j^n}{\Delta t} = \nabla \cdot [\mathbf{D} \cdot \nabla(Td_j)] - U \cdot \nabla(Td_j) \quad (2)$$

où Td_j^* est la solution de l'opérateur de transport au pas de temps $n + 1$;

$$\omega Td_j^{n+1} = f_d(\omega Td_j^* + \rho_S Tf_j^n) \quad \text{et} \quad \rho_S Tf_j^{n+1} = f_f(\omega Td_j^* + \rho_S Tf_j^n) \quad (3)$$

f_d et f_f représentent les systèmes algébriques non linéaires formés par les lois d'action de masse et les équations de conservation de la matière donnant les concentrations totales en soluté dissous et fixé des composants en fonction des concentrations totales. Td_j^{n+1} et Tf_j^{n+1} sont les solutions du problème de transport réactif au pas de temps $n + 1$.

2.2. Schéma Itératif (I)

Le schéma I, à l'itération $k + 1$ entre les pas de temps n et $n + 1$, se décompose en une étape de transport réactif (4), dans laquelle le caractère réactif est introduit sous la forme d'un terme puits-source, et en une étape d'actualisation du terme puits-source par calcul des équilibres (5) :

$$\omega \frac{Td_j^{n+1,k+1,*} - Td_j^n}{\Delta t} = \nabla \cdot [\mathbf{D} \cdot \nabla(Td_j)] - U \cdot \nabla(Td_j) - \rho_S \frac{Tf_j^{n+1,k} - Tf_j^n}{\Delta t} \quad (4)$$

où $Td_j^{n+1,k+1,*}$ est la solution de l'opérateur de transport au pas de temps $n + 1$ à l'itération $k + 1$;

$$\omega Td_j^{n+1,k+1} = f_d(\omega Td_j^{n+1,k+1,*} + \rho_S Tf_j^{n+1,k}) \quad \text{et} \quad \rho_S Tf_j^{n+1,k+1} = f_f(\omega Td_j^{n+1,k+1,*} + \rho_S Tf_j^{n+1,k}) \quad (5)$$

$Td_j^{n+1,k+1}$ et $Tf_j^{n+1,k+1}$ représentent les solutions du transport réactif au pas de temps $n + 1$ et à l'itération $k + 1$. La solution exacte est approchée par la méthode du point fixe.

Le schéma I est plus précis que le schéma NI, mais il requiert une formulation implicite en temps pour la résolution de l'opérateur de transport [7], alors que le schéma NI laisse toute liberté pour choisir la formulation temporelle la plus adaptée.

2.3. Résolution du transport : combinaison EFDMH

Lorsque le transport est fortement convectif, les méthodes numériques classiques induisent une forte diffusion numérique ainsi que des oscillations. Aussi est-il impératif de respecter certains critères pour assurer la stabilité du schéma. Une formulation explicite en temps nécessite le respect du critère de Courant, $Co = (U/\omega) \cdot (\Delta t/\Delta x) \leq 1$, où Co est le nombre de Courant. Le critère de Péclet impose $Pe = \Delta x/\alpha < 2$, quelle que soit la formulation temporelle choisie, où Pe est le nombre de Péclet de maille et α la dispersivité. L'utilisation d'une combinaison EFDMH permet de s'affranchir du critère de Péclet, de limiter la diffusion numérique et d'éviter les oscillations [3]. La partie convective de l'équation de transport est résolue par éléments finis discontinus. En respectant le critère de Courant, cette approche permet de résoudre l'opérateur de transport avec $0 < Pe < \infty$. La résolution temporelle adoptée est d'ordre deux en temps. La solution obtenue respecte le principe du maximum, ce qui garantit l'absence d'oscillation. La partie dispersive est résolue par éléments finis mixtes-hybrides qui permettent d'obtenir un bilan de masse local exact ainsi qu'une prise en compte aisée d'un tenseur de dispersion \mathbf{D} plein [3].

2.4. Association du Schéma Itératif et d'une combinaison EFDMH

La combinaison EFDMH est donc une méthode de résolution de l'opérateur de transport dont les performances répondent aux exigences de la modélisation du transport réactif. Cependant, seul un schéma de couplage NI semble applicable si l'opérateur de transport est résolu par cette méthode, la partie convective de l'équation de transport étant formulée explicitement en temps. Néanmoins, la partie dispersive est résolue par éléments finis mixtes-hybrides, avec une formulation implicite en temps. Un schéma de résolution itératif peut donc être proposé. Un schéma NI permet la résolution de la partie convective de l'opérateur de transport par éléments finis discontinus (6) et le calcul des équilibres (7). Un processus itératif est ensuite mis en place entre (i) la résolution de la partie dispersive avec un terme puits-source réactif (8) par éléments finis mixtes-hybrides, et (ii) l'actualisation du terme puits-source réactif par calcul des équilibres (5) :

$$\omega \frac{Td_j^* - Td_j^n}{\Delta t} = -U \cdot \nabla(Td_j^n) \quad (6)$$

avec Td_j^* solution de la partie convective au pas de temps $n + 1$;

$$\omega Td_j^{**} = f_d(\omega Td_j^* + \rho_S Tf_j^n) \quad \text{et} \quad \rho_S Tf_j^{**} = f_f(\omega Td_j^* + \rho_S Tf_j^n) \quad (7)$$

où Td_j^{**} et Tf_j^{**} sont les solutions de la partie convective-réactive au pas de temps $n + 1$;

$$\omega \frac{Td_j^{n+1,k+1} - Td_j^{**}}{\Delta t} = \nabla \cdot [\mathbf{D} \cdot \nabla(Td_j^{n+1,k+1})] - \rho_S \frac{Tf_j^{n+1,k} - Tf_j^{**}}{\Delta t} \quad (8)$$

$Td_j^{n+1,k+1}$ et $Tf_j^{n+1,k+1}$ représentent les solutions du problème de transport réactif au pas de temps $n + 1$ et à l'itération $k + 1$.

3. Discussion

Les performances des schémas précédents sont comparées à l’aide d’une expérience en colonne réalisée par Lefèvre et al. [9]. Il s’agit de la migration du strontium, sous forme Sr^{2+} , à travers un sol sableux argilo-calcaire (voir Tableau 1). La combinaison des phénomènes de précipitation, de dissolution et d’échange de cations qui ont

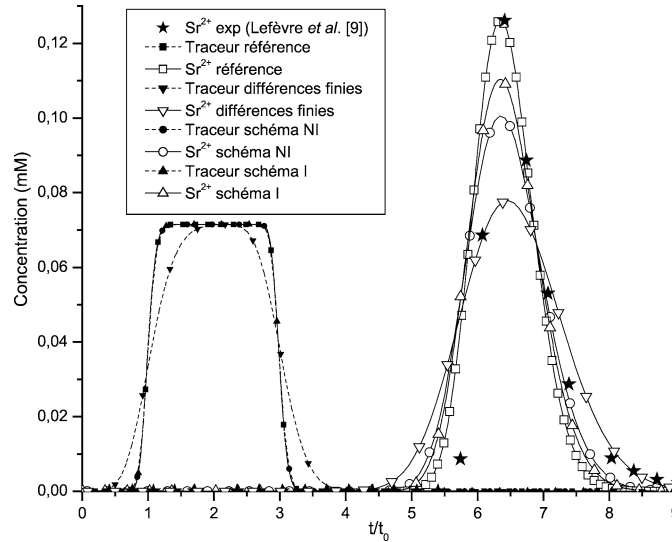


Fig. 1. Comparaison des courbes expérimentales d’élutions d’un traceur et du strontium [9] et de celles obtenues pour un calcul de référence (maillage fin : $\Delta t = 7,61 \times 10^{-4}t_0$ et $\Delta x = 10^{-4}$ m), des solutions calculées sur un maillage large ($\Delta t = 7,61 \times 10^{-3}t_0$ et $\Delta x = 10^{-3}$ m) pour un schéma NI et par un schéma I avec une combinaison EFDMH, et pour un schéma I avec des différences finies implicites. (Conditions expérimentales d’après Lefèvre et al. [9], temps de séjour d’un traceur t_0 , données des calculs cf. Tableau 1.)

Fig. 1. Comparison between experimental breakthrough curves of tracer and strontium [9], breakthrough curves for a reference calculation (fine mesh: $\Delta t = 7.61 \times 10^{-4}t_0$ and $\Delta x = 10^{-4}$ m), and breakthrough curves calculated over a large mesh ($\Delta t = 7.61 \times 10^{-3}t_0$ and $\Delta x = 10^{-3}$ m) by a non iterative scheme and a SIA scheme with a combination of discontinuous and mixed-hybrid finite elements and by a SIA scheme with implicit finite difference. (Experimental conditions after Lefèvre et al. [9], breakthrough time of a tracer t_0 , computation parameters see Table 1.)

Tableau 1

Paramètres chimiques utilisés pour les calculs de l’expérience de sorption du strontium [9]

Table 1

Chemical parameters used for calculating the strontium sorption experiment [9]

Réaction	Constante d’équilibre pK
$H_2O \rightleftharpoons H^+ + OH^-$	14,0
$H_2CO_3^* \rightleftharpoons H^+ + HCO_3^-$	6,3
$HCO_3^- \rightleftharpoons H^+ + CO_3^{2-}$	10,3
$CaCO_3(s) \rightleftharpoons Ca^{2+} + CO_3^{2-}$	8,42
$SrCO_3(s) \rightleftharpoons Sr^{2+} + CO_3^{2-}$	9,03
$Ca_f^{2+} + Sr^{2+} \rightleftharpoons Ca^{2+} + Sr_f^{2+}$	-0,021
Injection – Injection (Durée – Duration = $2t_0$)	$[H_2CO_3^*] = 1,07 \times 10^{-5}$ M ; $[Sr^{2+}] = 7,15 \times 10^{-5}$ M ; $[Ca^{2+}] = 0$
Lessivage – Leaching (Durée – Duration = $10t_0$)	$[H_2CO_3^*] = 1,07 \times 10^{-5}$ M ; $[Sr^{2+}] = 0$; $[Ca^{2+}] = 4,63 \times 10^{-3}$ M

lieu lors de cette expérience [9] entraînent un pic de Sr^{2+} retardé et amplifié par rapport à un traceur injecté dans les mêmes conditions (Fig. 1). Un calcul de référence est effectué à l'aide d'un maillage et de pas de temps très fins. Les courbes d'élution de Sr^{2+} sont alors identiques, que le calcul soit fait par un schéma NI ou par un schéma I.

En augmentant la taille des mailles et le pas de temps, il n'est plus possible de simuler correctement le pic de Sr^{2+} (Fig. 1). Il s'en suit une baisse de la concentration maximale atteinte ainsi qu'un étalement du pic. En revanche, le calcul du transport du traceur par la combinaison EFDMH conduit à une courbe d'élution identique, pour les deux discrétisations. Ainsi, une bonne modélisation du transport d'un traceur ne présage en rien de résultats corrects pour un soluté réactif. Avec cette méthode de résolution du transport, l'étalement du pic de Sr^{2+} n'est donc pas exclusivement dû aux phénomènes de diffusion numérique inévitables, liés à l'augmentation de la taille des mailles et du pas de temps. Avec une combinaison EFDMH, l'étalement du pic de Sr^{2+} est plus important avec le schéma NI qu'avec le schéma I. Les itérations entre les opérateurs de dispersion et de chimie conduisent à une meilleure approximation des transferts réactifs. Pour comparaison, l'utilisation d'une méthode plus classique, un schéma I associé à une résolution du transport par différences finies implicites en temps, montre l'intérêt évident de mettre en œuvre une méthode de résolution de l'opérateur de transport efficace : la diffusion numérique mise en évidence sur la courbe d'élution du traceur (Fig. 1) se traduit par un étalement très important du pic de Sr^{2+} .

4. Conclusion

Nous avons montré qu'il est possible de simuler le transport de solutés réactifs en milieu poreux à l'aide d'un schéma itératif en résolvant l'opérateur de transport par une combinaison EFDMH. Cette approche permet d'assurer un couplage précis entre transport et chimie par le biais du schéma itératif et de bénéficier d'une méthode de résolution performante de l'opérateur de transport pour des écoulements allant des phénomènes convectifs purs à des phénomènes purement diffusifs.

Remerciements

Ce travail a été financé par le Programme Environnement, Vie et Société du CNRS. J.C. a bénéficié d'une bourse du Ministère de l'Éducation Nationale, de la Recherche et de la Technologie (1998–2001).

Références

- [1] J. van der Lee, L. de Windt, Present state and future directions of modeling of geochemistry in hydrogeological systems, *J. Contaminant Hydrol.* 47 (2001) 265–282.
- [2] G.T. Yeh, V.S. Tripathi, A critical evaluation of recent developments in hydrogeochemical transport models of reactive multichemical components, *Water Resource Res.* 25 (1989) 93–108.
- [3] P. Siegel, R. Mosé, Ph. Ackerer, J. Jaffre, Solution of the advection dispersion equation using a combination of discontinuous and mixed finite elements, *Internat. J. Numer. Methods Fluids* 24 (1997) 595–613.
- [4] A.J. Valocchi, Validity of the local equilibrium assumption for modeling sorbing solute transport through homogeneous soils, *Water Resource Res.* 21 (1985) 808–820.
- [5] F.M.M. Morel, *Principles of Aquatic Chemistry*, Wiley, New York, 1983.
- [6] A. Cederberg, R.L. Street, J.O. Leckie, A groundwater mass transport and equilibrium chemistry model for multicomponent systems, *Water Resource Res.* 21 (1985) 1095–1104.
- [7] C.I. Steefel, K.T.B. McQuarrie, Approaches to modelling of reactive transport in porous media, in: P.C. Lichtner, C.I. Steefel, E.H. Oelkers (Eds.), *Reactive Transport in Porous Media*, in: *Reviews in Mineralogy*, Vol. 34, Mineralogical Society of America, Washington, 1996, pp. 82–129.
- [8] L. Sigg, Ph. Behra, W. Stumm, *Chimie des milieux aquatiques*, 3^e édition, Masson, Paris, 2000.
- [9] F. Lefèvre, M. Sardin, D. Schweich, Migration of strontium in a clayey and calcareous sand soil: precipitation and ion exchange, *J. Contaminant Hydrol.* 13 (1993) 215–229.