



**HAL**  
open science

# Transport de soluté biologiquement actif en milieu poreux incluant une phase biofilm : de la modélisation numérique aux perspectives expérimentales

Laurent Orgogozo

► **To cite this version:**

Laurent Orgogozo. Transport de soluté biologiquement actif en milieu poreux incluant une phase biofilm : de la modélisation numérique aux perspectives expérimentales. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009. Français. NNT : 2009INPL091N . tel-01748791

**HAL Id: tel-01748791**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748791v1>**

Submitted on 29 Mar 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## 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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

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

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE  
ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEUR DE GÉOLOGIE DE NANCY  
LABORATOIRE ENVIRONNEMENT GÉOMÉCANIQUE ET OUVRAGES  
ÉCOLE DOCTORALE RESSOURCES PROCÉDÉS PRODUITS ENVIRONNEMENT

## **Thèse**

Présentée à l'INPL  
en vue de l'obtention du titre de

**Docteur de l'INPL en Mécanique - Génie Civil**

Par

**Laurent Orgogozo**

# **TRANSPORT DE SOLUTÉ BIOLOGIQUEMENT ACTIF EN MILIEU POREUX INCLUANT UNE PHASE BIOFILM : DE LA MODÉLISATION NUMÉRIQUE AUX PERSPECTIVES EXPÉRIMENTALES**

Soutenue le 3 Décembre 2009 devant la Commission d'Examen

### **Membres du Jury :**

Mme. LEWANDOWSKA Jolanta  
Mr. SCHMITZ Philippe  
Mr. QUINTARD Michel  
Mr. GOYEAU Benoît  
Mr. BLOCK Jean-Claude  
Mr. BUÈS Michel Antoine  
Mr. GOLFIER Fabrice

Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Invité  
Directeur de thèse  
Co-directeur de thèse



## Qualité et adresse des membres du jury :

Jolanta LEWANDOSKA  
Rapporteur

Professeur à l'Université Montpellier II  
Laboratoire de Mécanique et Génie Civil  
de Montpellier UMR 5508  
CC 048 Place Eugène Bataillon  
34095 Montpellier cedex 5

Philippe SCHMITZ  
Rapporteur

Professeur à l'Institut National des  
Sciences Appliqués  
Laboratoire d'Ingénierie des Systèmes  
Biologiques et des Procédés UMR  
INSA/CNRS 5504 et UMR 792  
Complexe Scientifique de Rangueil  
31077 Toulouse cedex 4

Michel QUINTARD  
Examineur

Directeur de Recherche  
Institut de Mécanique des Fluides de  
Toulouse UMR 5502  
Allée du Professeur Camille Soula  
31400 Toulouse

Benoît GOYEAU  
Examineur

Professeur à l'École Centrale Paris  
Laboratoire Énergétique, Moléculaire,  
Macroscopique et Combustion UPR 288  
Grande Voies des Vignes  
92295 Châtenay-Malabry

Jean-Claude BLOCK  
Invité

Professeur à l'Université Henri Poincaré  
Laboratoire de Chimie Physique et  
Microbiologie pour l'Environnement UMR  
7564  
405, rue de Vandoeuvre  
54600 Villers-Lès-Nancy

Michel Antoine BUÈS  
Directeur de thèse

Professeur à l'École Nationale Supérieure  
de Géologie  
Laboratoire Environnement  
Géomécanique et Ouvrage EA 1145  
Rue du Doyen Marcel Roubault BP 40  
54501 Vandoeuvre-Lès-Nancy cedex

Fabrice GOLFIER  
Co-directeur de thèse

Maître de Conférences à l'École  
Nationale Supérieure de Géologie  
Laboratoire Environnement  
Géomécanique et Ouvrage  
EA 1145  
Rue du Doyen Marcel Roubault BP 40  
54501 Vandoeuvre-Lès-Nancy cedex



*À mes parents.*





## Remerciements

Tout d'abord, je voudrais exprimer ma profonde gratitude à Michel Antoine Buès et Fabrice Golfier, mes encadrants, pour m'avoir fait confiance et m'avoir donné la chance de pouvoir travailler avec eux. J'ai le sentiment d'avoir énormément appris à leur contact. En outre, leur cordialité et leur disponibilité ont fait de mes trois années de thèse une période aussi agréable qu'utile. Merci aussi à Jean-Claude Block, qui m'a apporté un support scientifique indispensable pour le volet microbiologique de mes travaux.

Je voudrais également remercier Éric Lefèvre, pour le support technique de haut niveau dont il m'a fait bénéficier. Son flegme et sa bonne humeur n'ont jamais été mis en défaut face aux diverses catastrophes dont j'ai été l'involontaire auteur en salle d'expérimentation (piscine de LML+F, explosion de cellule en cours d'essai, ...), ce qui est à mon avis remarquable.

Merci à Tiangoua Koné pour m'avoir transmis son savoir-faire microbiologique, et bonne chance pour la suite des événements ! Merci aussi à Pierre Le Pape pour son intérêt et sa motivation pour le travail de master qu'il a mené sur nos expériences.

Merci enfin à toute l'équipe Transport en Milieux Poreux et plus généralement à tous les membres de LAEGO pour les trois années gratifiantes que j'ai passé avec vous.

Il faut rendre à César ce qui est à César, toute forme de vie est difficile sans amitié. Alors merci aux copains de Nancy, Romain, Nioz, Jo, Aurélie, Marteen, Julien, Christophe, Sophie, Eric, Emma, Jon, Seb, Fabrice, Audrey, Javad, Yassine, Bien, Truong, Mohamed, Serguey, Serguey, Vu, Tonio, Emad, Théophile, Raph, Juliette, et à tous ceux que j'ai oublié.

Merci à mes parents pour leur soutien jamais démenti. Permettre à leurs enfants de faire ce qu'ils voulaient de leur avenir à toujours fait l'objet d'efforts pugnaces de leur part. Merci également à mon oncle Jean-Marc, à ma tante Isabelle et à mon oncle P.F. pour l'aide qu'ils m'ont fourni sous diverses formes tout au long de mon cursus.

Et évidemment, un grand merci à Aurélia, pour tout.



# TABLE DES MATIÈRES

<b>TABLE DES MATIÈRES.....</b>	<b>1</b>
<b>LISTE DES FIGURES.....</b>	<b>5</b>
<b>LISTE DES ANNEXES.....</b>	<b>9</b>
<b>NOMENCLATURE DES SYMBOLES UTILISÉS.....</b>	<b>11</b>
<b>CHAPITRE 1 : INTRODUCTION.....</b>	<b>19</b>
<b>1.1 Qu'est ce qu'un biofilm ?.....</b>	<b>22</b>
<b>1.2 Phénoménologie de la dynamique des biofilms.....</b>	<b>26</b>
<b>1.2.1 Dynamique générale.....</b>	<b>26</b>
a) Cycle de vie d'un biofilm :.....	26
b) Le métabolisme bactérien.....	28
c) Une dynamique complexe.....	30
<b>1.2.2 Dynamique des biofilms en milieux poreux.....</b>	<b>33</b>
a) La bio-obstruction.....	34
b) Un fort couplage entre développement du biofilm et transport des espèces dissoutes.....	35
c) Un problème fortement multi-échelle.....	35
<b>1.3 Enjeux technologiques et scientifiques associés - objectif de ce travail.....</b>	<b>37</b>
<b>1.3.1 Applications associées aux biofilms en milieux poreux.....</b>	<b>37</b>
a) Applications dans le domaine des procédés industriels.....	37
b) Les processus de bioremédiation.....	38
<b>1.3.2 Une des difficultés majeures : l'aspect multi-échelle.....</b>	<b>39</b>
<b>1.3.3 Objectif du présent travail.....</b>	<b>43</b>
<b>CHAPITRE 2 : SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE - ASPECT THÉORIQUE.....</b>	<b>45</b>
<b>2.1 État de l'art de la modélisation du transport en milieux poreux incluant un biofilm à l'échelle de Darcy.....</b>	<b>47</b>
<b>2.2 Changement d'échelle et prise de moyenne volumique.....</b>	<b>51</b>
<b>2.2.1 Problématique du changement d'échelle.....</b>	<b>51</b>
<b>2.2.2 La méthode de prise de moyenne volumique.....</b>	<b>53</b>
a) L'opérateur de prise de moyenne volumique.....	54
b) Théorèmes de prise de moyenne volumique.....	55
c) Procédure générale d'établissement des équations macroscopiques.....	57
<b>2.3 Modèle à l'échelle du pore et équation de transport ouverte à l'échelle de Darcy.....</b>	<b>60</b>
<b>CHAPITRE 3 : MODÈLE D'ÉQUILIBRE DE MASSE LOCAL.....</b>	<b>69</b>
<b>3.1 Développement théorique du modèle LEA.....</b>	<b>70</b>
<b>3.2 Tenseur de dispersion effectif pour une géométrie de pore réaliste.....</b>	<b>75</b>
<b>3.3 Domaine de validité du modèle d'équilibre de masse local.....</b>	<b>80</b>
<b>CHAPITRE 4 : MODÈLE DE BIODÉGRADATION LIMITÉE PAR LA CINÉTIQUE DE RÉACTION.....</b>	<b>87</b>
<b>4.1 Développement théorique du modèle RRLC.....</b>	<b>89</b>
4.1.1 Fermeture partielle de l'équation de transport macroscopique.....	91
4.1.2 Calcul du flux interfacial.....	94
4.1.3. Equation de transport macroscopique fermé du modèle RRLC.....	98
<b>4.2 Calculs des paramètres effectifs de l'équation de transport macroscopique du modèle RRLC.....</b>	<b>99</b>

4.2.1 Tenseur de dispersion effectif du modèle RRLC.....	100
4.2.2 Calcul du facteur d'efficacité associé à la réaction.....	102
a) Cas limite d'une cinétique d'ordre 1 pour une configuration monodimensionnelle.....	103
b) Impact du nombre de Damköhler et de la demi-saturation effective.....	105
c) Impact de la fraction volumique de biofilm .....	107
4.3. Domaine de validité du modèle RRLC .....	109
<b>CHAPITRE 5 : MODÈLE DE BIODÉGRADATION LIMITÉE PAR LE TRANSFERT DE MASSE EXTERNE.....</b>	<b>115</b>
5.1 Développement théorique du modèle MTLC.....	117
5.2 Calculs des paramètres effectifs de l'équation de transport macroscopique du modèle MTLC.....	124
5.2.1 Influence des effets d'entrée sur le coefficient d'échange de masse .....	125
5.2.2 Impact du nombre de Péclet et des propriétés de l'écoulement sur le coefficient d'échange de masse .....	129
5.2.3 Impact de la fraction volumique de biofilm sur le coefficient d'échange de masse..	131
5.2.4 Termes convectifs non classiques.....	132
5.3. Domaine de validité du modèle MTLC .....	134
<b>CHAPITRE 6 : EXEMPLE D'APPLICATION DES MODÈLES À UNE ÉQUATION - CAS D'UN BIORÉACTEUR À LIT FIXE.....</b>	<b>137</b>
ORGOGOZO L., GOLFIER F., BUÈS M.A. (2009). - Upscaling of Transport processes in porous Media with Biofilms in Equilibrium and Non-Equilibrium Conditions. Applicable Analysis, (DOI:101080/00036810902913862). .....	141
ORGOGOZO L., GOLFIER F., OLTEAN C., BUÈS M.A., WOOD B.D., QUINTARD M. (2009). - Numerical approach of bioreactive transport in porous medium including a biofilm phase. Poromechanics IV, Eds. H.I. Ling <i>et al.</i> , 71-76, DEStech Pub., ISBN 978-1-60595-006-8 (extrait).....	153
<b>CHAPITRE 7 : MODÈLE À DEUX ÉQUATIONS.....</b>	<b>157</b>
7.1 Développement théorique du modèle TEM .....	159
7.2 Calculs des paramètres effectifs de l'équation de transport macroscopique du modèle à deux équations.....	167
7.2.1 Comparaison avec le modèle MTLC.....	168
7.2.2 Comparaison avec le modèle LEA .....	171
7.2.3 Résultats pour une géométrie tridimensionnelle simplifiée.....	174
7.3 Domaine de validité du modèle TEM.....	176
<b>CHAPITRE 8 : EXTENSION DES MODÈLES DE TRANSPORT PAR CHANGEMENT D'ÉCHELLE AU CAS DU TRANSPORT COUPLÉ DE DEUX SOLUTÉS RÉACTIFS.....</b>	<b>181</b>
8.1 Modèle LEA pour le transport couplé de deux espèces chimiques .....	185
8.2 Modèle RRLC pour le transport couplé de deux espèces chimiques.....	186
8.2.1 Calcul des flux interfaciaux à l'échelle macroscopique.....	186
8.2.2 Forme fermée du modèle RRLC pour le transport couplé de deux espèces.....	188
8.2.3 Comparaison entre facteur d'efficacité avec et sans couplage .....	189
8.3 Modèle MTLC pour le transport couplé de deux espèces chimiques.....	191
8.4 Modèle TEM pour le transport couplé de deux espèces chimiques .....	192
<b>CHAPITRE 9 : CONCEPTION D'UN MODÈLE EXPÉRIMENTAL .....</b>	<b>199</b>
9.1 Contraintes du modèle expérimental.....	206
9.1.1 Contraintes hydrodynamiques .....	206

a) Ecoulement et transport en milieu poreux bidimensionnel.....	206
b) Contrôle des conditions aux limites.....	206
c) Contrôle des conditions de transport.....	207
d) Choix du traceur coloré.....	208
<b>9.1.2 Contraintes microbiologiques</b> .....	208
<b>9.1.3 Contraintes métrologiques</b> .....	209
<b>9.2 Test d'acquisition des champs de concentration : choix du milieu poreux transparent</b> .....	<b>210</b>
<b>9.3 Tests de culture d'un biofilm en milieu poreux</b> .....	<b>218</b>
<b>9.4 Modèle expérimental : cellule d'écoulement et montage</b> .....	<b>222</b>
<b>CHAPITRE 10 : CONCLUSION</b> .....	<b>231</b>
10.1 Principaux résultats.....	233
10.2 Possibilités de développements numériques.....	235
10.3 Possibilités d'amélioration du modèle expérimental.....	236
10.4 Perspectives à long terme.....	237
<b>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b> .....	<b>239</b>



# LISTE DES FIGURES

FIGURE 1 : BIOFILMS OBSERVES AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (SOURCE : HTTP://WWW.MICROBELIBRARY.ORG) .....	25
FIGURE 2 : CYCLE DE CROISSANCE ET DE DEVELOPPEMENT DES BIOFILMS (D'APRES LES RESSOURCES EN IMAGES DU SITE DU CENTER FOR BIOFILM ENGINEERING, MONTANA STATE UNIVERSITY - BOZEMAN). ...	26
FIGURE 3 : LES DIFFERENTES ECHELLES IMPLIQUEES DANS LA DYNAMIQUE DES BIOFILMS : EXEMPLE D'UN BIOFILM SE DEVELOPPANT SUR UN GRAIN SOLIDE DE MILIEU POREUX (D'APRES KAPellos <i>ET AL.</i> , 2007)	33
FIGURE 4 : EXEMPLE DE BIO-OBSTRUCTION D'UN MONOLITHE POREUX DU AU DEVELOPPEMENT D'UN BIOFILM EN SON SEIN : TEMPS CROISSANT DE (A) A (D) (TIRE DE EBRAHIMI <i>ET AL.</i> 2005).....	34
FIGURE 5 : ÉCHELLE DE TEMPS DES PHENOMENES IMPLIQUES DANS LA DYNAMIQUE DES BIOFILMS (D'APRES CUNY, 2007).....	36
FIGURE 6 : LES PRINCIPALES ECHELLES IMPLIQUEES DANS LA DYNAMIQUE DES BIOFILMS EN MILIEUX POREUX	41
FIGURE 7 : ECHELLE DU PORE ET DU BIOFILM : LONGUEURS CARACTERISTIQUES ET CONTRAINTES DE SEPARATION DES ECHELLES .....	54
FIGURE 8 : PHENOMENES DE TRANSPORT A L'ECHELLE DU PORE ET DU BIOFILM .....	60
FIGURE 9 : PROFILS DE CONCENTRATION MICROSCOPIQUE AUTOUR DE L'INTERFACE FLUIDE-BIOFILM DANS LE CAS DE L'EQUILIBRE DE MASSE LOCAL .....	70
FIGURE 10 : CELLULES UNITAIRES TRIDIMENSIONNELLES CONSIDEREES POUR L'ETUDE DE L'IMPACT DE LA GEOMETRIE PORALE SUR LE TENSEUR DE DISPERSION EFFECTIF DANS LE CADRE DU MODELE LEA (A) GEOMETRIE SIMPLIFIEE EN QUINCONCE ; (B) GEOMETRIE REALISTE.....	77
FIGURE 11 : DISPERSIONS EFFECTIFS LONGITUDINALES ET TRANSVERSALES EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLET DE PORE POUR LA GEOMETRIE TRIDIMENSIONNELLE REALISTE ET POUR LA GEOMETRIE TRIDIMENSIONNELLE SIMPLIFIEE.....	79
FIGURE 12 : GEOMETRIE DU MILIEU POREUX ET CONDITIONS AUX LIMITES/INITIALES CONSIDEREES POUR L'ETABLISSEMENT DU DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE LEA ( $\varepsilon_k = 0.28$ , $\varepsilon_\omega = 0.22$ , $\varepsilon_\gamma = 0.5$ ). ....	81
FIGURE 13 : COMPARAISON QUALITATIVE ENTRE MODELE LEA ET MODELE MICROSCOPIQUE, (A) $PE_A=10^{-1}$ - $DA_A=10^{-2}$ , (B) $PE_A=10$ - $DA_A=10$ , (C) $PE_A=50$ - $DA_A=10^{-1}$ .....	84
FIGURE 14 : DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE LEA DANS UN DIAGRAMME NOMBRE DE DAMKÖHLER - NOMBRE DE PECLET.....	85
FIGURE 15 : PROFILS DE CONCENTRATION MICROSCOPIQUE AUTOUR DE L'INTERFACE FLUIDE-BIOFILM DANS LE CAS DE LA BIODEGRADATION LIMITEE PAR LA CINETIQUE DE REACTION .....	90
FIGURE 16 : EXEMPLE DE CELLULE UNITAIRE BIDIMENSIONNELLE.....	99
FIGURE 17 : COMPOSANTES DU TENSEUR DE DISPERSION EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLET PREDIT PAR LE MODELE LEA DANS LE CAS DE LA DISPERSION PASSIVE ET PAR LE MODELE RRLC POUR UNE GEOMETRIE DE PORE CIRCULAIRE ( $\varepsilon_\gamma = 0.59$ et $\varepsilon_\omega = 0.11$ ).....	101
FIGURE 18 : MODELE CONCEPTUEL A L'ECHELLE DU PORE D'UN MILIEU POREUX COLONISE PAR UN BIOFILM	104
FIGURE 19 : COMPARAISON ENTRE CALCUL NUMERIQUE ET ANALYTIQUE DANS LE CAS D'UNE CINETIQUE D'ORDRE 1.....	105
FIGURE 20 : INFLUENCE DU NOMBRE DE DAMKÖHLER ET DE LA DEMI-SATURATION EFFECTIF SUR LE FACTEUR D'EFFICACITE POUR UNE GEOMETRIE CIRCULAIRE AVEC $\varepsilon_\gamma = 0.59$ et $\varepsilon_\omega = 0.11$ .....	106
FIGURE 21 : INFLUENCE DE LA FRACTION VOLUMIQUE DE BIOFILM SUR LE FACTEUR D'EFFICACITE EN FONCTION DU NOMBRE DE DAMKÖHLER POUR UNE GEOMETRIE CIRCULAIRE AVEC $K_{eff,A} = 1$ .....	108
FIGURE 22 : ILLUSTRATION DE LA GEOMETRIE ET DES CONDITIONS AUX LIMITES DU SYSTEME STRATIFIE UTILISE POUR L'ETABLISSEMENT DU DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE .....	110
FIGURE 23 : DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE RRLC DANS UN DIAGRAMME NOMBRE DE PECLET - NOMBRE DE DAMKÖHLER.....	113
FIGURE 24 : PROFILS DE CONCENTRATION MICROSCOPIQUE AUTOUR DE L'INTERFACE FLUIDE-BIOFILM DANS LE CAS DE LA BIODEGRADATION LIMITEE PAR LE TRANSFERT DE MASSE .....	117
FIGURE 25 : ILLUSTRATION DE LA GEOMETRIE ET DES CONDITIONS AUX LIMITES D'UN PROBLEME DE TYPE PROBLEME DE GRAETZ.....	125
FIGURE 26 : COMPARAISON ENTRE LA SOLUTION SEMI-ANALYTIQUE DE GRAETZ ET LA SOLUTION PAR CHANGEMENT D'ECHELLE POUR L'EVOLUTION DU NOMBRE DE SHERWOOD LE LONG D'UN TUBE AXISYMETRIQUE.....	128

FIGURE 27 : VARIATION DU NOMBRE DE SHERWOOD EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET POUR DEUX CONFIGURATIONS BIDIMENSIONNELLES DIFFERANT PAR L'ORIENTATION DE L'ECOULEMENT QUI LES TRAVERSE (MILIEU BIDIMENSIONNEL D'INCLUSION CYLINDRIQUE AVEC $\varepsilon_\gamma = 0.59$ ET $\varepsilon_\omega = 0.11$ ).	130
FIGURE 28 : INFLUENCE DE LA FRACTION VOLUMIQUE SUR LE COEFFICIENT D'ECHANGE DE MASSE EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET POUR DEUX GEOMETRIES CIRCULAIRES DIFFERANT PAR LEUR FRACTION VOLUMIQUE DE BIOFILM	132
FIGURE 29 : VARIATION DU RAPPORT DES COMPOSANTES LONGITUDINALES DES TERMES CONVECTIFS NON CLASSIQUES ET CLASSIQUE EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET DANS LE CAS D'UN MILIEU BIDIMENSIONNEL NODULAIRE AVEC $\varepsilon_\gamma = 0.59$ ET $\varepsilon_\omega = 0.11$	133
FIGURE 30 : DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE MTLC DANS UN DIAGRAMME NOMBRE DE DAMKÖHLER - NOMBRE DE PECLLET	136
FIGURE 31 : PROFIL DE CONCENTRATION MICROSCOPIQUE AUTOUR DE L'INTERFACE FLUIDE-BIOFILM CONSIDERE POUR LE MODELE TEM	159
FIGURE 32 : COMPARAISON DES DISPERSIONS LONGITUDINALES OBTENUES PAR LE MODELE MTLC ET PAR LE MODELE TEM	170
FIGURE 33 : COMPARAISON DES COEFFICIENTS D'ECHANGE OBTENU PAR LE MODELE MTLC ET PAR LE MODELE TEM	170
FIGURE 34 : COMPARAISON DES TERMES NON CLASSIQUES OBTENUS PAR LE MODELE MTLC ET PAR LE MODELE TEM	171
FIGURE 35 : COMPARAISON DES DISPERSIONS LONGITUDINALES OBTENUES PAR LE MODELE LEA ET PAR LE MODELE TEM	173
FIGURE 36 : COMPOSANTES LONGITUDINALES ET TRANSVERSALES DU TENSEUR DE DISPERSION EFFECTIF DANS LA PHASE FLUIDE DE LA CONCENTRATION EN SOLUTE DE LA PHASE FLUIDE $D_{A\gamma\gamma}^*$ EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET $Pe_A$ A SATURATION EFFECTIVE FIXEE ( $K'_{eff,A}{}^{-1} = 0,1$ ) POUR DIFFERENTS NOMBRES DE DAMKÖHLER ( $Da_A = 1$ ET $Da_A = 1000$ ).	174
FIGURE 37 : COMPOSANTES LONGITUDINALES ET TRANSVERSALES DU TENSEUR DE DISPERSION EFFECTIF DANS LA PHASE FLUIDE POUR LA CONCENTRATION EN SOLUTE DE LA PHASE FLUIDE $D_{A\gamma\gamma}^*$ EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET $Pe_A$ A NOMBRE DE DAMKÖHLER FIXE ( $Da_A = 1000$ ) POUR DIFFERENTES SATURATION EFFECTIVES ( $K'_{eff,A}{}^{-1} = 0,1$ ET $K'_{eff,A}{}^{-1} = 10$ ).	175
FIGURE 38 : COEFFICIENT DE TRANSFERT ENTRE PHASE $\alpha_A^*$ EN FONCTION DU NOMBRE DE PECLLET POUR DIFFERENTS COUPLES (NOMBRE DE DAMKÖHLER $Da_A$ ; DEMI-SATURATION EFFECTIVE $K'_{eff,A}{}^{-1}$ )	176
FIGURE 39 : DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE TEM DANS UN DIAGRAMME NOMBRE DE DAMKÖHLER - NOMBRE DE PECLLET	179
FIGURE 40 : COMPARAISON DES FACTEURS D'EFFICACITE COUPLES ET DECOUPLES POUR UNE GEOMETRIE BIDIMENSIONNELLE CYLINDRIQUE ( $\varepsilon_\gamma = 0.59$ , $\varepsilon_\omega = 0.11$ ).	190
FIGURE 41 : TABLEAU DE SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES EXPERIENCES DE TRANSPORT EN MILIEU POREUX INCLUANT UN BIOFILM.	204
FIGURE 42 : CONDITIONS AUX LIMITES RECHERCHEES POUR LE MODELE EXPERIMENTAL.	207
FIGURE 43 : PHOTOGRAPHIE DE GRAINS DE NAFION ET D'UNE BILLE DE VERRE (DIAMETRE 2 MM) PRISE A LA LOUPE BINOCULAIRE	211
FIGURE 44 : PHOTO DE LA CELLULE-TEST REMPLIE DE NAFION DANS SA PARTIE CENTRALE ET SATUREE D'EAU.	212
FIGURE 45 : MONTAGE UTILISE POUR LES ESSAIS DE TRAÇAGE TEST.	214
FIGURE 46 : ZONES CONSIDEREES POUR LE TRAITEMENT DES DONNEES.	217
FIGURE 47 : COURBE DE PERCEE MOYENNEE MESUREE EN SORTIE DE LA ZONE DE TRAITEMENT.	217
FIGURE 48 : BOITE DE PETRI CONTENANT DES COLONIES DE <i>SHEWANELLA ONEIDENSIS</i> SE DEVELOPPANT SUR MILIEU GELOSE.	219
FIGURE 49 : AUGMENTATION DE L'ABSORPTION LUMINEUSE DU MILIEU DUE A LA CROISSANCE.	221
FIGURE 50 : CELLULE D'ECOULEMENT DESTINEE AUX ESSAIS DE TRANSPORT NON REACTIF EN MILIEU POREUX INCLUANT UN BIOFILM.	222
FIGURE 51 : PROJET DE MONTAGE DE MODELE EXPERIMENTAL - CROISSANCE DE BIOFILM ET INJECTION DE TRACEUR.	225
FIGURE 52 : SYSTEME DE CELLULE D'ECOULEMENT.	226



FIGURE 53 : SYSTEME D'ACQUISITION DES DONNEES. ....	227
FIGURE 54 : TABLEAU RESUMANT LES DIFFERENTS DOMAINES DE VALIDITE DES MODELES DE TRANSPORT EN MILIEUX POREUX INCLUANT UNE PHASE BIOFILM A L'ECHELLE DE DARCY. ....	234



## LISTE DES ANNEXES

Annexe A : Annexe A.1 de Golfier *et al.*, 2009.

Annexe B : Développement du problème de fermeture pour le modèle RRLC

Annexe C : Développement du calcul du facteur d'efficacité

Annexe D : Résultat des comparaisons entre modèle par changement d'échelle et simulations directes

Annexe E : Établissement du problème gouvernant les déviations en concentration associé au modèle à deux équations

Annexe F : Établissement des problèmes de fermeture associés aux modèles à deux équations, ou « c'est tellement plus drôle quand c'est compliqué ».

Annexe G : Validations analytiques et numériques des codes de résolution des problèmes de fermeture associées au modèle TEM

Annexe H : Calcul des propriétés effectives d'un milieu poreux tridimensionnel dans le cadre du modèle TEM

Annexe I : Développement du modèle RRLC dans le cas du transport couplé de deux solutés

Annexe J : Développement du modèle MTLC dans le cas du transport couplé de deux solutés

Annexe K : Développement du modèle TEM pour le cas du transport couplé de deux espèces chimiques

Annexe L : Plan de la cellule test (schéma d'Éric Lefèvre)

Annexe M : Traitement des données recueillies au cours des essais de traçage stérile effectués dans un milieu de Nafion et dans un milieu de bille de verre Retsch

Annexe N : Préparation des milieux nutritifs utilisés pour les essais de croissance bactérienne

Annexe O : Dessins techniques de la cellule d'écoulement retenue pour les essais de transport non réactif en milieu poreux incluant un biofilm (réalisés par Éric Lefèvre)

# NOMENCLATURE DES SYMBOLES UTILISÉS

## Lettres romaines :

$a_v$  [ $m^{-1}$ ] : Surface spécifique.

$A$ ,  $B$  : Lettres de notation du soluté servant de substrat et de celui servant d'accepteur d'électron (respectivement).

$A_{ij}$ , ( $i = \gamma, \omega, \kappa$  ;  $j = \gamma, \omega, \kappa$ ) : interface entre la phase  $i$  et la phase  $j$ .

$A_{\gamma e}$  : Surfaces d'entrée et de sortie de la phase  $\gamma$  aux frontières de la cellule unitaire.

$A_{\omega e}$  : Surfaces d'entrée et de sortie de la phase  $\omega$  aux frontières de la cellule unitaire.

$\mathbf{b}_{A\gamma}$  [m] : Variable vectoriel de fermeture associé à la phase  $\gamma$  (LEA, RRLC, MTLC).

$\mathbf{b}_{A\omega}$  [m] : Variable vectoriel de fermeture associé à la phase  $\omega$  (LEA).

$\mathbf{b}'_{A\gamma}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{b}_{A\gamma}$ .

$\mathbf{b}'_{A\omega}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{b}_{A\omega}$ .

$\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}$  [m] : Variable vectoriel de fermeture associé aux gradients de  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  dans la phase  $\gamma$  (TEM).

$\mathbf{b}_{A\gamma\omega}$  [m] : Variable vectoriel de fermeture associé aux gradients de  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$  dans la phase  $\gamma$  (TEM).

$\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$  [m] : Variable vectoriel de fermeture associé aux gradients de  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  dans la phase  $\omega$  (TEM).

$\mathbf{b}_{A\omega\omega}$  [m] : Variable vectoriel de fermeture associé aux gradients de  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$  dans la phase  $\omega$  (TEM).

$\mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}$ .

$\mathbf{b}'_{A\gamma\omega}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{b}_{A\gamma\omega}$ .

$\mathbf{b}'_{A\omega\gamma}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$ .

$\mathbf{b}'_{A\omega\omega}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{b}_{A\omega\omega}$ .

$\mathbf{b}_{B\gamma}$  [m] : Analogue de  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}_{B\omega}$  [m] : Analogue de  $\mathbf{b}_{A\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}_{B\gamma\gamma}$  [m] : Analogue de  $\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}_{B\gamma\omega}$  [m] : Analogue de  $\mathbf{b}_{A\gamma\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}_{B\omega\gamma}$  [m] : Analogue de  $\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}_{B\omega\omega}$  [m] : Analogue de  $\mathbf{b}_{A\omega\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}'_{B\omega\gamma}$  [-] : Analogue de  $\mathbf{b}'_{A\omega\gamma}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{b}'_{B\omega\omega}$  [-] : Analogue de  $\mathbf{b}'_{A\omega\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$B(i, j)$  : Constante de correspondance optique (au pixel  $(i, j)$ ) dépendant des caractéristiques du montage.

$c(i, j)$  [ $mol.m^{-3}$ ] : Concentration moyenne en colorant dans la phase  $\gamma$  au pixel  $(i, j)$ .

$c_{A\gamma}$  [ $mol.m^{-3}$ ] : Concentration microscopique dans la phase  $\gamma$ .

$c_{A\omega}$  [ $mol.m^{-3}$ ] : Concentration microscopique dans la phase  $\omega$ .

$c'_{A\gamma}$  [-] : Adimensionnement de  $c_{A\gamma}$ .

$c'_{A\omega}$  [-] : Adimensionnement de  $c_{A\omega}$ .

$\tilde{c}_{A\gamma}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Champ de déviation en concentration dans la phase  $\gamma$ .

$\tilde{c}_{A\omega}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Champ de déviation en concentration dans la phase  $\omega$ .

$\{c_A\}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Concentration moyenne pondérée (LEA).

$\{c_A\}'$  [-] : Adimensionnement de  $\{c_A\}$ .

$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}$  [-] : Adimensionnement de  $\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}$ .

$\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}$  [-] : Adimensionnement de  $\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}$ .

$c_{B\gamma}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Analogue de  $c_{A\gamma}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$c_{B\omega}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Analogue de  $c_{A\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$c_{B\omega}^*$  [-] : Concentration apparente en soluté  $B$  dans la phase  $\omega$  (cas du large excès de soluté  $B$ ).

$\tilde{c}_{B\gamma}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Analogue de  $\tilde{c}_{A\gamma}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\tilde{c}_{B\omega}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Analogue de  $\tilde{c}_{A\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\{c_B\}$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Analogue de  $\{c_A\}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$c_0$  [mol.m<sup>-3</sup>] : Concentration de référence.

$C_{xx}$  [-] : Fonction de covariance de  $\chi_\gamma$  dans la cellule unitaire selon l'axe  $x$ .

$CCD(i, j)$  [-] : niveau de gris au pixel  $(i, j)$ .

$d$  [m] : Diamètre moyen des grains du milieu poreux.

$D$  [m] : Diamètre d'un tube.

$\mathbf{d}_{A\gamma}^*$  [m.s<sup>-1</sup>] : Premier terme convectif non classique associé à la phase  $\gamma$  (MTLC, TEM).

$\mathbf{d}_{A\omega}^*$  [m.s<sup>-1</sup>] : Premier terme convectif non classique associé à la phase  $\omega$  (MTLC, TEM).

$\mathbf{d}_{A\gamma}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{d}_{A\gamma}^*$ .

$\mathbf{d}_{A\omega}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{d}_{A\omega}^*$ .

$\mathbf{d}_{A\gamma}^{* L}$  [m.s<sup>-1</sup>] : Premier terme convectif non classique associé à la phase  $\gamma$  pour le cas couplé (MTLC).

$\mathbf{d}_{B\gamma}^{* L}$  [m.s<sup>-1</sup>] : Analogue à  $\mathbf{d}_{A\gamma}^{* L}$  pour le soluté  $B$ .

$\mathbf{D}_{A,eff}^*$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Tenseur de dispersion effectif (LEA, MTLC, RRLC).

$\mathbf{D}_{A,eff}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$ .

$\mathcal{D}_{A\gamma}$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Coefficient de diffusion du soluté  $A$  dans la phase  $\gamma$  (*i.e.* l'eau).

$\mathbf{D}_{A\omega}$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Tenseur de diffusion du soluté  $A$  dans la phase  $\omega$ .

$\mathcal{D}_{A\omega}$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Terme courant de  $\mathbf{D}_{A\omega}$ , si celui ci est sphérique.

$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Tenseur de dispersion effectif associé à  $\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}$  dans la phase  $\gamma$  (TEM).

$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Tenseur de dispersion effectif associé à  $\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}$  dans la phase  $\gamma$  (TEM).

$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^*$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Tenseur de dispersion effectif associé à  $\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}$  dans la phase  $\omega$  (TEM).

$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Tenseur de dispersion effectif associé à  $\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}$  dans la phase  $\omega$  (TEM).

$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*$ .

$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*$ .

$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^*$ .

$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*$ .

$\mathcal{D}_{B\gamma}$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Analogue de  $\mathcal{D}_{A\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{D}_{B\omega}$  [m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>] : Analogue de  $\mathbf{D}_{A\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{D}_{B,eff}^*$  [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ] : Analogue de  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathbf{D}_\Gamma$  [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ] : Adimensionnement de  $\mathbf{D}_{A\omega}$ .

$Da_A$  [-] : Nombre de Damköhler associé au soluté  $A$ , défini par rapport à  $l_\omega$ .

$Da_A'$  [-] : Nombre de Damköhler défini par rapport à  $l_\gamma$ .

$Da_1$  [-] : Nombre de Damköhler défini pour une cinétique linéaire d'ordre 1.

$Da_B$  [-] : Analogue de  $Da_A$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$\mathcal{D}_{Taylor}^*$  [ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ] : Dispersion longitudinale théorique (selon Taylor) dans un tube.

$\mathbf{e}_z$  [-] : Vecteur unitaire longitudinal en coordonnée cylindrique.

$\mathbf{f}_{A\gamma}$  [ $\text{mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ] : Flux associé à la dispersion hydrodynamique dans la phase fluide (LEA).

$\mathbf{f}_{A\omega}$  [ $\text{mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ] : flux associé à la dispersion hydrodynamique dans la phase biofilm (LEA).

$F_\omega$  [ $\text{s}^{-1}$ ] : Taux de mortalité des bactéries.

$\mathbf{g}$  [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$ ] : Vecteur accélération de la pesanteur.

$G_{AB\gamma}$  [-] : Premier coefficient de couplage micro-macro (modèle TEM couplé).

$G_{AB\omega}$  [-] : Deuxième coefficient de couplage micro-macro (modèle TEM couplé).

$G_\omega$  [ $\text{s}^{-1}$ ] : Taux de croissance de la biomasse.

$H_{AB}$  [-] : Deuxième coefficient de couplage micro-macro (modèle TEM couplé).

$\mathbf{I}$  [-] : Matrice identité.

$I(i, j)$  [ $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$ ] : Flux lumineux incident au pixel  $(i, j)$

$I_0(i, j)$  [ $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$ ] : Flux lumineux incident au pixel  $(i, j)$  en cas de concentration nulle en colorant.

$K_{A,eq}$  [-] : Coefficient de partition à l'équilibre du soluté  $A$  entre les phases  $\omega$  et  $\gamma$ .

$K_{A\omega}$  [ $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ ] : Constante de demi-saturation du soluté  $A$ .

$K'_{A\omega}$  [ $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ ] : Adimensionnement de  $K_{A\omega}$ .

$k_{A\omega}$  [ $\text{s}^{-1}$ ] : Taux de dégradation du soluté  $A$  pour une cinétique du premier ordre.

$K_{B,eq}$  [-] : Analogue de  $K_{A,eq}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$K_{B\omega}$  [ $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ ] : Analogue de  $K_{A\omega}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$K_{eff,A}$  [-] : Constante de demi-saturation effective (RRLC).

$K'_{eff,A}$  [-] : Constante de demi-saturation effective (TEM).

$K_{eff,B}$  [-] : Analogue de  $K_{eff,A}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$K'_{eff,B}$  [-] : Analogue de  $K'_{eff,A}$  pour le soluté  $B$  (cas couplé).

$l_c$  [m] : largeur de la cellule expérimentale d'écoulement.

$\mathbf{l}_i$ , ( $i = 1, 2, 3$ ) [-] : Vecteur de périodicité de la cellule unitaire (colinéaire à la  $i^{\text{ème}}$  direction de l'espace et de longueurs égales à la longueur adimensionnée de la cellule unitaire selon cette même direction).

$l(i, j)$  [m] : Longueur du trajet optique passant dans la phase  $\gamma$  au pixel  $(i, j)$ .

$l_{xx}$  [m] : Longueur de corrélation de la phase  $\gamma$  dans la cellule unitaire selon l'axe  $x$ .

$l_\gamma$  [m] : Longueur caractéristique des hétérogénéités de la phase  $\gamma$  à l'échelle du pore.

$l_k$  [m] : Longueur caractéristique des hétérogénéités de la phase  $\kappa$  à l'échelle du pore.

$l_\omega$  [m] : Longueur caractéristique des hétérogénéités de la phase  $\omega$  à l'échelle du pore.

$L$  [m] : Longueur caractéristique des hétérogénéités du milieu poreux à l'échelle de Darcy.

$L_c$  [m] : largeur de la cellule expérimentale d'écoulement.

LEA : « Local Equilibrium Assumption », acronyme désignant le modèle macroscopique de transport à une équation développé pour des conditions d'équilibre de masse entre phases.

MTLC : « Mass Transfer Limited Consumption », acronyme désignant le modèle macroscopique de transport à une équation développé pour des conditions de transfert de masse limitant.

$\mathbf{n}_{ij}$ , ( $i = \gamma, \omega, \kappa$ ) et ( $j = \gamma, \omega, \kappa$ ) [-] : vecteur normal à l'interface entre les phases  $i$  et  $j$ , pointant vers la phase  $j$ .

$Pe_A$  [-] : Nombre de Péclet associé au soluté A, défini par rapport à  $l_\gamma$ .

$Pe_{A,\text{exp}}$  [-] : Nombre de Péclet de pore expérimental.

$Pe_{d,A}$ ,  $Pe_{u,A}$  [-] : Composantes longitudinales des termes convectifs non classiques adimensionnées, analogues à des nombres de Péclet (MTLC).

$p_\gamma$  [Pa] : Pression dans la phase fluide.

$Q_{\text{pompe}}$  [m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>] : Débit de la pompe.

$R$  [m] : Longueur caractéristique du volume de prise de moyenne  $V$ .

$R_t$  [m] : Rayon interne d'un tube.

$\mathbf{r}$  [-] : Vecteur position dans l'espace (adimensionné).

$\{R_{A\omega}\}$  [mol.m<sup>-3</sup>.s<sup>-1</sup>] : Réaction effective (modèle LEA).

$r_{A\gamma}$  [-] : Variable de fermeture scalaire associé à  $(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)$  dans la phase  $\gamma$  (TEM).

$r_{A\omega}$  [-] : Variable de fermeture scalaire associé à  $(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)$  dans la phase  $\omega$  (TEM).

$r'_{A\gamma}$  [-] : Produit de  $r_{A\gamma}$  et  $K_{A,eq}$ .

$r_{B\gamma}$  [-] : Analogue de  $r_{A\gamma}$  pour le soluté B (cas couplé).

$r_{B\omega}$  [-] : Analogue de  $r_{A\omega}$  pour le soluté B (cas couplé).

RRLC : « Reaction Rate Limited Consumption », acronyme désignant le modèle macroscopique de transport à une équation développé pour des conditions de taux de réaction limitant.

$S_{A\omega}$  [-] : Variable scalaire du problème microscopique associé au modèle RRLC.

$S_{B\omega}$  [-] : Analogue de  $S_{A\omega}$  pour le soluté B (cas couplé).

$s_{A\gamma}$  [-] : Variable de fermeture scalaire à la phase  $\gamma$  (MTLC).

$s_{A\omega}$  [-] : Différence entre l'unité et  $r_{A\omega}$ .

$s_{B\omega}$  [-] : Analogue de  $s_{A\omega}$  pour le soluté B (cas couplé).

$Sh_A$  [-] : Nombre de Sherwood associé à  $\alpha_A$ .

$Sh'_A$  [-] : Nombre de Sherwood associé à  $\alpha'_A$ .

$Sh_{\text{Graetz}}$  [-] : Nombre de Sherwood associé à  $\alpha_{\text{Graetz}}$ .

$t$  [s] : Variable temporelle.

$t'$  [-] : Adimensionnement de

$t_{\text{sej}}$  [s] : Temps de séjour dans la cellule

expérimentale d'écoulement.

TEM : « Two Equation Model », acronyme désignant le modèle macroscopique de transport à deux



équations développé pour le cas général de non-équilibre.

$\mathbf{u}_{A\gamma}^*$  [m.s<sup>-1</sup>] : Deuxième terme convectif non classique associé à la phase  $\gamma$  (MTLC, TEM).

$\mathbf{u}_{A\omega}^*$  [m.s<sup>-1</sup>] : Deuxième terme convectif non classique associé à la phase  $\omega$  (TEM).

$\mathbf{u}_{A\gamma}^{* \prime}$  [m.s<sup>-1</sup>] : Adimensionnement de  $\mathbf{u}_{A\gamma}^*$  (MTLC, TEM).

$\mathbf{u}_{A\omega}^{* \prime}$  [m.s<sup>-1</sup>] : Adimensionnement de  $\mathbf{u}_{A\omega}^*$  (TEM).

$\mathbf{v}_{eff}$  [m.s<sup>-1</sup>] : Vitesse effective corrigée par les termes convectifs non classiques (MTLC).

$\mathbf{v}_\gamma$  [m.s<sup>-1</sup>] : Champs de vitesse de la phase fluide à l'échelle du pore.

$\|\mathbf{v}_\gamma\|$  [m.s<sup>-1</sup>] : Norme euclidienne de  $\mathbf{v}_\gamma$ .

$\tilde{\mathbf{v}}_\gamma$  [m.s<sup>-1</sup>] : Champ de déviation en vitesse dans la phase fluide.

$\mathbf{v}'_\gamma$  [-] : Adimensionnement de  $\mathbf{v}_\gamma$ .

$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma$  [-] : Adimensionnement de  $\tilde{\mathbf{v}}_\gamma$ .

$\mathbf{v}_{\gamma i}$ , ( $i = \omega, \kappa$ ) [-] : Vitesse de déplacement de l'interface de la phase  $\gamma$  et de la phase  $i$ .

$v_\gamma(r)$  [m.s<sup>-1</sup>] : Composante longitudinale de la vitesse dans un tube.

$\mathbf{v}_0$  [m.s<sup>-1</sup>] : Vitesse d'injection dans la cellule expérimental d'écoulement.

$V$  [m<sup>3</sup>] : Volume de prise de moyenne.

$V_{pore}$  [m<sup>3</sup>] : Volume de pore dans la cellule expérimentale d'écoulement.

$V_\gamma$  [m<sup>3</sup>] : Volume de la phase  $\gamma$  dans  $V$ .

$V_\omega$  [m<sup>3</sup>] : Volume de la phase  $\omega$  dans  $V$ .

$x, y, z$  [m] : Variable spatial (repère cartésien).

$x', y', z'$  [-] : Adimensionnement de  $x, y, z$ , respectivement.

$X_{\omega\kappa}$  [-] : Abscisse adimensionnée de l'interface  $\omega$ - $\kappa$  (modèle conceptuel 1D).

$X_{\omega\gamma}$  [-] : Abscisse adimensionnée de l'interface  $\omega$ - $\gamma$  (modèle conceptuel 1D).

$z_c$  [m] : hauteur de la cellule expérimental d'écoulement.

### Lettres grecques :

$\alpha$  [m<sup>2</sup>.mol<sup>-1</sup>] : Coefficient d'absorption molaire du colorant considéré.

$\alpha_A$  [s<sup>-1</sup>] : Coefficient d'échange de masse entre les phases  $\gamma$  et  $\omega$  (MTLC).

$\alpha'_A$  [s<sup>-1</sup>] : Coefficient d'échange  $\alpha_A$  réduit par  $\mathcal{E}_\gamma$  (MTLC, cas du tube).

$\alpha_A^{* \prime}$  [s<sup>-1</sup>] : Coefficient d'échange  $\alpha_A$  réduit par  $\mathcal{E}_\gamma$  et par le rapport  $\|\mathbf{v}_{eff}\| / \|\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma\|$  (MTLC, cas du tube).

$\alpha_A^*$  [s<sup>-1</sup>] : Coefficient d'échange de masse entre les phases  $\gamma$  et  $\omega$  (TEM).

$\alpha_A^{* \prime}$  [-] : Adimensionnement de  $\alpha_A^*$ .

$\alpha_A^L$  [s<sup>-1</sup>] : Coefficient d'échange de masse entre les phases  $\gamma$  et  $\omega$  pour le soluté A dans le cas couplé (MTLC).

$\alpha_B^L$  [s<sup>-1</sup>] : Analogue de  $\alpha_A^L$  pour le soluté B.

$\alpha_{Graetz}$  [s<sup>-1</sup>] : Coefficient d'échange théorique dans un tube selon Graetz.

$\gamma, \kappa, \omega$  : Lettres de notations des phases fluide, solide et biofilm (respectivement).

$\gamma(i, j)$  : Constante de correspondance optique (au pixel  $(i, j)$ ) dépendant des caractéristiques du montage.

$\mathcal{E}_\gamma$  [-] : Fraction volumique de fluide.

$\mathcal{E}_\omega$  [-] : Fraction volumique de biofilm.

$\mathcal{E}_\gamma(i, j)$  [-] : Fraction volumique de fluide moyenne sur le pixel  $(i, j)$ .

$\mathcal{E}_\gamma^{initial}$  [-] : Fraction volumique de fluide moyenne dans la cellule en début d'expérience, avant croissance de biofilm.

$\mathcal{E}_\omega(i, j)$  [-] : Fraction volumique de biofilm moyenne sur le pixel  $(i, j)$ .

$\eta$  [-] : Facteur d'efficacité de la réaction dans le cas couplé (RRLC).

$\eta_A$  [-] : Facteur d'efficacité de la réaction calculé pour le soluté A (RRLC).

$\eta_{analytic}$  [-] : Facteur d'efficacité pour le soluté A calculé analytiquement pour un cas simple 1D (RRLC).

$\eta_B$  [-] : Analogue de  $\eta_A$  pour le soluté B (cas couplé).

$\mu$  [Pa.s] : viscosité dynamique de l'eau

$\mu_{A\omega}$  [mol.kg<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>] : Taux de dégradation massique maximal du soluté A.

$\mu_{B\omega}$  [mol.kg<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>] : Taux de dégradation massique maximal du soluté B.

$\rho_\gamma$  [kg.m<sup>-3</sup>] : Masse volumique de l'eau.

$\rho_\omega$  [kg.m<sup>-3</sup>] : Masse de bactérie active par unité de volume du biofilm.

$\chi_\gamma$  [-] : Indicatrice de la phase  $\gamma$  dans la cellule unitaire.

### **Symboles mathématiques :**

$\langle * \rangle$  : Moyenne superficielle de \*.

$\langle * \rangle^i$ , ( $i = \gamma, \omega$ ) : Moyenne intrinsèque de \* dans la phase  $i$ .





## **CHAPITRE 1 : INTRODUCTION**



Depuis plus d'un siècle, les bactéries sont utilisées pour traiter et assainir l'eau. Bien qu'ancien, cet usage a acquis une importance croissante ces dernières décennies, compte tenu de la préoccupation grandissante exprimée partout dans le monde face au problème de la pollution du milieu naturel (rivières, aquifères) liée à l'activité humaine. Ce contexte a conduit au développement de nombreuses méthodes d'assainissement et de traitement basées sur l'utilisation des bactéries naturellement présentes dans les eaux de surface ou souterraines. En effet, le métabolisme bactérien permet de transformer des espèces chimiques polluantes présentes en solution dans l'eau en substance moins actives voire inertes : on parle de biodégradation.

Afin d'optimiser ces processus biologiques, il est fréquent – en particulier pour des applications associées à des milieux poreux – de favoriser le développement des populations bactériennes sous forme d'agrégats appelés biofilms. On peut citer entre autres les exemples des méthodes de bioremédiation, qui contribuent à traiter des sols contaminés en favorisant le développement de biofilms, et des procédés biologiques de traitement des eaux usées (boues activées, bio-filtration), qui impliquent des systèmes biofilm-milieu poreux.

Cependant, les mécanismes (réactions physico-chimiques, couplage écoulement-transport) liés au phénomène de biodégradation restent encore imparfaitement compris. En particulier, un des processus contrôlant la dynamique des systèmes biofilm - milieu poreux est le transport des espèces chimiques dissoutes dans le milieu. En effet, la présence de nutriments et de polluants (qui peuvent être confondus) contraint le développement des biofilms, qui à leur tour ont un impact sur la répartition des espèces dissoutes dans le milieu. Modéliser de manière formelle ces processus de transport en milieu poreux incluant une phase biofilm est donc d'un intérêt majeur pour le développement des méthodes de bioremédiation et des procédés biologiques et, plus généralement, pour l'étude de la dynamique des systèmes

biofilm - milieu poreux. L'établissement d'une telle modélisation fait l'objet du présent mémoire.

Dans cette introduction, nous commencerons par définir la notion de biofilm, puis nous examinerons leur dynamique, en particulier en milieu poreux. Seront présentées ensuite les applications techniques et scientifiques associées à cette problématique, ce qui nous permettra de définir l'objectif de cette étude.

## 1.1 Qu'est ce qu'un biofilm ?

La première observation de biofilm est effectuée par Antoni van Leeuwenhoek au 18<sup>ème</sup> siècle, à l'aide d'un microscope de sa fabrication. Les biofilms qu'il observe (il parle d'agrégats d' « animalcules ») sont issus d'échantillons de plaque dentaire (Costerton, 1999). Plus de deux siècles plus tard, Heukelekian et Heller (1940) observent l' « effet bouteille » pour les microorganismes marins : les microorganismes se développent de manière sensiblement plus importante en présence d'une surface solide à laquelle s'attacher. Zobel (1943) va encore un peu plus loin et constate que les microorganismes marins se développent préférentiellement sur la surface solide à leur disposition. Le développement de l'observation des biofilms s'étend ensuite de la biologie marine à des domaines aussi variés que la santé publique (étude de la plaque dentaire au Forsyth Dental Center entre 1935 et 1978 par entre autres Gibbons et van Houte - *cf* Costerton, 1999 -, étude de la contamination des DUWS - Dental Unit Water System - par Blake en 1963 puis par bien d'autres - *cf* Walker et Marsh, 2004 - ...), le traitement des eaux usées (*e.g.* Jones *et al.*, 1969) ou les systèmes d'eau industrielle (*e.g.* Characklis, 1973). Tous ces travaux ont permis d'identifier diverses caractéristiques des biofilms, telles que leur aspect communautaire (plusieurs espèces

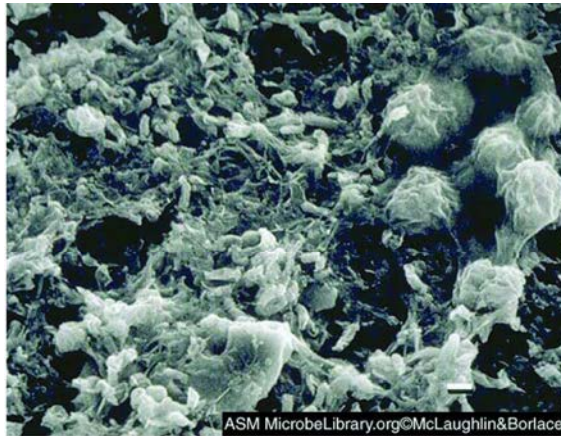


bactériennes pouvant être présentes au sein d'un même biofilm), leur capacité à soutenir des sollicitations mécaniques relativement élevées (ce qui interdit le traitement des surfaces colonisées par simple rinçage), leur résistance élevée au traitement par désinfectant (comme par exemple par la chlorine), leur structure sous forme de bactéries incluses dans une matrice de polysaccharides, .... En 1978, Costerton *et al.* Présentent la première théorie expliquant les mécanismes par lesquels les bactéries adhèrent aux interfaces solides et les avantages écologiques que les colonies bactériennes ainsi formées tirent de cette situation. La prise de conscience de l'importance des biofilms dans l'écologie bactérienne et de l'influence de ce mode de développement sur le comportement des bactéries ont conduit l'AAM (American Academy of Microbiology) à insister sur l'importance de prendre en compte la formation des biofilms sur les phénomènes impliquant des bactéries. En particulier, les erreurs que pouvaient générer le fait d'extrapoler des résultats obtenus par l'étude de cultures bactériennes planctoniques (c'est-à-dire se développant en suspension dans l'eau) mono-espèces à des situations en systèmes naturels ou industriels ont été soulignées (*cf.* Costerton, 1999). L'étude des biofilms est donc un domaine en pleine expansion, en microbiologie en particulier mais aussi plus généralement dans tous les domaines où des biofilms peuvent jouer un rôle sur la dynamique des systèmes étudiés (en médecine, en traitement des eaux ou dans la maintenance des systèmes d'eau industrielle par exemple, pour citer les cas mis en avant ci-dessus). Du point de vue strictement microbiologique, deux nouvelles approches ont eu un fort impact sur l'étude des biofilms au cours de la dernière décennie : l'utilisation de la microscopie confocale par balayage laser pour observer la structure tridimensionnelle des biofilms d'une part (*e.g.* : Palmer et Sternberg, 1999), et l'étude des gènes impliqués dans les mécanismes d'adhésion chez les bactéries d'autre part (Donlan, 2002). Le développement de la recherche sur les applications des biofilms est par exemple illustré au niveau français par la mise en place du Pôle de recherche National à Implantation Régionale (PNIR) « Biofilms » en

septembre 2003. L'étude présentée ici s'inscrit dans l'intérêt toujours croissant depuis plusieurs décennies pour les biofilms et leurs applications.

On peut proposer la définition suivante de la notion de biofilm : un biofilm est une colonie de micro-organismes (bactéries, mais aussi levures, champignons ou protozoaires, *e.g.* : Block, 1992) se développant au sein d'une matrice de substances polymériques extracellulaires (souvent notées EPS, pour *Extracellular Polymeric Substances*), l'ensemble étant attaché de manière irréversible à une interface (la plupart du temps solide-liquide, mais on peut aussi en trouver sur des interfaces types solide-gaz, liquide-gaz ou liquide-liquide). On trouve dans les biofilms une fraction de biomasse active (les cellules bactériennes vivantes), une fraction d'EPS sécrétée par les bactéries (formant en général 75 % à 95 % de la masse totale du biofilm) et principalement composée de polysaccharides hautement hydratés et de protéines, une fraction de reste de cellules bactériennes mortes (ces deux dernières fractions composant ce qu'on appelle la biomasse inerte du biofilm) et une fraction de composés solubles issus de l'activité microbienne (souvent notés SMP, pour *Soluble Microbial Products*). Le lecteur peut se référer à Laspidou et Ritmann (2002) pour plus de détails sur la classification des différents composants d'un biofilm. Des matériaux non cellulaires, comme des minéraux, des particules argileuses ou des composés sanguins par exemple, peuvent également se trouver au sein de la biomasse, selon l'environnement dans lequel le biofilm se développe. En général, les biofilms abritent différentes espèces de bactéries, formant ainsi des consortia fonctionnels pouvant être le siège d'interactions complexes entre les différentes communautés de microorganismes. Néanmoins, il existe aussi des biofilms mono-espèces, comme par exemple ceux qu'on peut trouver sur les valves cardiaques. Les biofilms peuvent avoir des structures tridimensionnelles extrêmement hétérogènes et variables (filamenteuses, corpusculaires, denses, ramifiées, ...) suivant leurs compositions et leur environnement. Des détails et références additionnels sur la définition

des biofilms peuvent être trouvés dans Donlan (2002) et Walker et Marsh (2004). La Figure 1 présente ainsi la structure de deux biofilms s'étant développés dans des environnements distincts et comportant des différences morphologiques significatives.



Biofilm se développant sur des lentilles de contact (observé au microscope électronique à balayage)



Biofilm se développant sur une plante (observé au microscope électronique à balayage)

**Figure 1 : Biofilms observés au microscope électronique à balayage (source : <http://www.microbelibrary.org>)**

Enfin, une caractéristique remarquable des biofilms est leur capacité à se développer dans des environnements extrêmement divers : tuyauteries industrielles, système d'eau potable, système de ventilation, DUWS, cathéters, implants médicaux, sols et formations géologiques souterraines, galets de rivières ... Ils peuvent s'adapter à des conditions extrêmement sévères, variées et fluctuantes (*e.g.* Block, 1992 ou encore Hall-Stoodley et Stoodley, 2002). Cette capacité d'adaptation est une des principales sources d'intérêt des biofilms, qu'ils soient un problème à éradiquer (comme dans le monde médical, car ils peuvent abriter des espèces pathogènes) ou une force qu'il convient d'utiliser (comme dans les procédés biologiques, en bioremédiations ou autres).

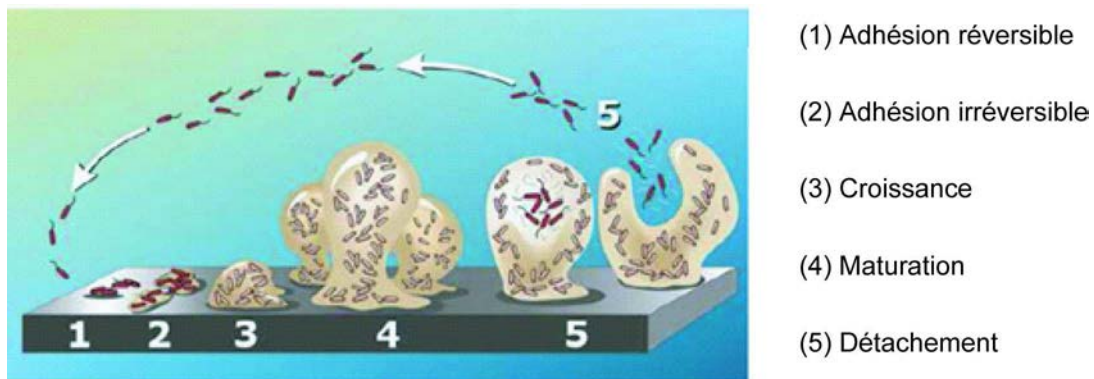
## 1.2 Phénoménologie de la dynamique des biofilms

### 1.2.1 Dynamique générale

a) Cycle de vie d'un biofilm :

Le cycle de vie d'un biofilm peut se diviser en 5 phases : l'adhésion réversible à la surface, l'adhésion irréversible à la surface, la croissance, la maturation du biofilm et le détachement.

La Figure 2 présente ces différentes phases.



**Figure 2 : Cycle de croissance et de développement des biofilms (d'après les ressources en images du site du Center for Biofilm Engineering, Montana State University - Bozeman).**

L'adhésion réversible (1) est un phénomène d'adsorption de cellules bactériennes planctoniques sur la surface solide. Le transport des cellules bactériennes vers l'interface peut être actif ou passif, suivant que l'on a affaire à des espèces mobiles (*i.e.* aptes à se déplacer par elles-mêmes : flagelle, chemotaxie ...) ou non. La présence d'un « film conditionnant » sur l'interface eau - solide, dû à l'interaction de surface entre les phases aqueuses et solides, influence le taux et la zonation de l'adsorption des cellules sur la surface considérée (Loeb et Neihof, 1975). L'énergie de surface des suspensions présentes dans le milieu aqueux peut aussi avoir une influence sur ces phénomènes d'adsorption réversibles de bactéries à l'interface fluide - solide (Ofek et Doyle, 1994).

L'adhésion irréversible des bactéries à l'interface (2) qui s'ensuit est un phénomène tout aussi complexe impliquant des variations importantes du métabolisme bactérien, une réorientation des cellules sur la surface, voire un déplacement de celles-ci vers les sites les plus favorables à cet attachement, ainsi que la sécrétion des premières molécules d'EPS (*e.g.* : Sauer *et al.*, 2002).

La croissance proprement dite du biofilm (3) commence alors, avec la multiplication des bactéries et la poursuite de la sécrétion d'EPS. Dans un premier temps, la croissance s'effectue horizontalement par rapport à la surface colonisée, puis des structures tridimensionnelles apparaissent quand le biofilm se développe vers le « cœur » de la phase liquide (*e.g.* : Walker et Marsh, 2004).

Au cours de la maturation (4), c'est-à-dire une fois l'état stationnaire de croissance atteint, on n'observe plus de changement quantitatif majeur du biofilm, mais des modifications structurelles importantes peuvent encore intervenir, en particulier dues à l'établissement et à l'évolution des relations entre les différentes espèces bactériennes présentes dans le biofilm (*e.g.* : Walker et Marsh, 2004).

La dernière étape de ce cycle est constituée par le détachement (5) et peut être dû à différents facteurs : érosion hydrodynamique du biofilm sous l'effet des forces de cisaillement exercées par l'écoulement du fluide, pénurie de nutriments entraînant la létalité d'une partie de la colonie bactérienne, ... (*e.g.* : Donlan, 2002). Le détachement conduit à la remise en suspension de cellules bactériennes ou de floccs bactériens, susceptibles à leur tour de recommencer un cycle en adhérant à une autre interface solide - fluide.

Le phasage du cycle de vie présenté ci-dessus reste toutefois très schématique. Ainsi, la phase de détachement est plus un processus concomitant aux différentes phases du cycle de vie du biofilm que la phase ultime de celui-ci. D'autre part, ce phasage n'est pas nécessairement net dans le temps, comme par exemple en ce qui concerne la limite entre la

phase de croissance et la phase de maturation qui est plutôt graduelle. Néanmoins, une telle représentation permet d'appréhender le cycle de vie d'un biofilm selon un schéma linéaire simple. Le lecteur peut se référer à Savage et Fletcher (1985) pour plus de détails sur le phénomène de l'adhésion bactérienne sur une interface.

#### b) Le métabolisme bactérien

Le métabolisme bactérien est l'ensemble des réactions biochimiques par lesquelles les bactéries produisent l'énergie et les produits nécessaires à leur activité. On a une très grande variabilité du métabolisme selon les espèces et une grande complexité des chaînes de réactions biochimiques impliquées, avec de nombreux intermédiaires réactionnels, de nombreuses catalyses enzymatiques et de nombreuses variantes possibles en fonction des conditions du milieu. L'état de l'art des connaissances actuelles touchant au métabolisme bactérien est au-delà du champ du présent travail, aussi on ne présentera ici qu'une schématisation succincte de ce processus dans le cas le plus couramment rencontré dans les applications associées aux biofilms. On peut se référer à Lynch et Hobbie (1988) pour une présentation générale du métabolisme bactérien. Globalement, celui-ci nécessite une source de matière (principalement de carbone, mais aussi d'azote, d'oxygène et d'hydrogène), une source d'énergie et un donneur d'électron. Sur la base de la source d'énergie utilisée, on distingue les bactéries phototrophes, tirant leur énergie d'une source lumineuse (*e.g.* : le soleil), des bactéries chimiotrophes qui tirent leur énergie de l'oxydation de composés organiques ou inorganiques, nommés accepteurs d'électrons. Parmi les chimiotrophes, on a les lithotrophes qui oxydent des composés inorganiques, et les organotrophes qui oxydent des composés organiques. En se fondant sur la nature de la source de carbone utilisée, on peut aussi établir une distinction en opposant les bactéries autotrophes, qui tirent leur carbone de composés simples comme le CO<sub>2</sub>, des bactéries hétérotrophes, qui ont besoin de sources de

carbone organiques. Cette classification sur la base de la nutrition bactérienne a ses limites, *e.g.* : il existe des espèces hétérotrophes vis-à-vis du carbone et autotrophe vis-à-vis d'autres éléments de base comme l'azote. Néanmoins, elle nous permet d'identifier le principal groupe de bactéries qui présente un intérêt pour la suite de ce travail. En effet, les bactéries les plus couramment rencontrées dans les applications médicales, industrielles et environnementales des biofilms sont des bactéries chimiorganohétérotrophes, *i.e.* : des bactéries utilisant des substances organiques comme source de carbone et comme accepteur d'électron. Dans le cas le plus simple, une même espèce chimique organique peut jouer les deux rôles dans le métabolisme. Elles n'ont plus besoin, dans ce cas, que de deux espèces chimiques pour assurer leur métabolisme : une substance organique fournissant carbone et énergie, qu'on nommera par la suite l'accepteur d'électron ou le substrat, et une espèce chimique jouant le rôle de donneur d'électron. Suivant que le donneur d'électron est le dioxygène ou pas, on parlera d'espèce bactérienne aérobie ou anaérobie (cette distinction franche doit cependant être relativisée ; en effet, il existe aussi des bactéries anaérobies facultatives ou aérobies facultatives, aérotoles, micro-aérophiles, ...). On peut décrire schématiquement le bilan en termes d'espèces chimiques du métabolisme bactérien chimiorganohétérotrophe dans le cas simple présenté ci-dessus de la manière suivante :



Où  $A$  est un composé organique qu'on nomme l'accepteur d'électron ou le substrat,  $B$  est le donneur d'électron (classiquement le dioxygène ou le nitrate),  $C$  est la biomasse produite par la réaction (qui n'est généralement pas composée que d'une seule espèce chimique) et  $\mu_{A\omega}$ ,  $\mu_{B\omega}$  et  $\mu_{C\omega}$  sont les coefficients stœchiométriques associés. Notons qu'un ou plusieurs catalyseurs éventuels peuvent être nécessaires à cette transformation. On a omis de présenter le bilan énergétique couplé à cette réaction car il implique bien souvent des espèces vectrices supplémentaires présentes dans la bactérie (comme l'ADP et l'ATP par exemple). Il est clair

qu'ici seules deux espèces chimiques interviennent dans le métabolisme bactérien, *i.e.* jouent un rôle dans la survie des bactéries et leur multiplication. Cela influe grandement sur la dynamique des biofilms composés de ce type de bactéries, puisque l'activité bactérienne est conditionnée par la disponibilité (donc le transport) de l'accepteur d'électron et du donneur d'électron.

### c) Une dynamique complexe

Les biofilms ont une dynamique complexe de par, primo, leur interaction permanente avec leur environnement, et secundo, des interactions entre les différentes populations bactériennes qui les composent. Ceci conduit à avoir des structures de biofilms hétérogènes et variables à la fois dans l'espace et au cours du temps.

Les biofilms interagissent avec leur environnement de diverses manières. Ainsi le phénomène d'adhésion décrit précédemment est largement dépendant des caractéristiques de la surface colonisée, que ces caractéristiques soient physico-chimiques (nature du film conditionnant, hydrophobicité et polarité de la surface, les bactéries adhérant préférentiellement aux surfaces hydrophobes et/ou apolaires) ou géométriques (notamment la rugosité de la surface, *e.g.* : Richter *et al.*, 1999). L'expression même du génome des bactéries change en fonction de leur environnement, en particulier lors du passage de l'état planctonique à l'attachement à une surface solide (*e.g.* Ghigo 2003). En outre, non seulement l'environnement influe sur le biofilm, mais le biofilm peut lui aussi influencer sur l'environnement. Ainsi le développement d'un biofilm dans un écoulement dépend des conditions de cisaillement qui lui sont imposées et de la disponibilité du substrat et du donneur d'électron, contrôlée par le transport de ces solutés dans l'écoulement (*e.g.* Piciooreanu *et al.*, 1998 et Ebrahimi *et al.*, 2005). Or la croissance du biofilm, en modifiant la géométrie du milieu, modifie à son tour l'écoulement et le transport. De même, le coefficient

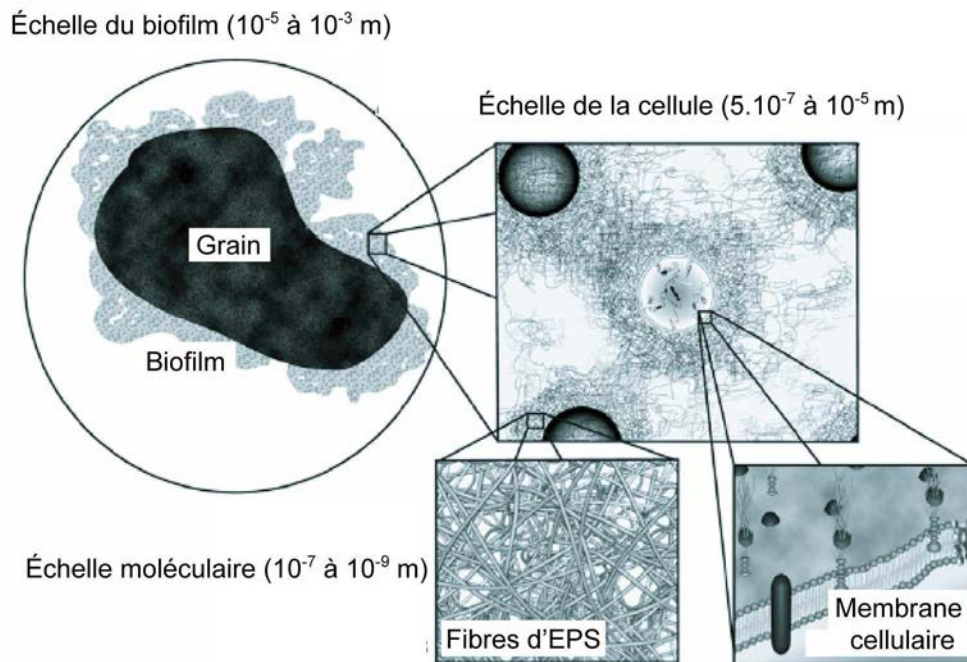


de diffusion des solutés au sein du biofilm évolue au cours de la croissance et de la maturation du biofilm (Beyenal et Lewandowski, 2002), ce qui conduit à un changement des conditions de transport du substrat et du donneur d'électron. Enfin, un biofilm modifie en permanence les conditions biochimiques de son milieu (pH, force ionique ...) par son activité métabolique, puisqu'il consomme des solutés et en produit d'autres. Cette évolution des conditions chimiques du milieu peut entraîner, par exemple, des variations dans la spéciation des éléments et composés chimiques présents, ce qui peut provoquer des modifications du biofilm. Tous ces facteurs conduisent à une évolution permanente par rétroaction du biofilm, du milieu hôte et des relations entre ces deux derniers.

En outre, au sein même du biofilm, il existe une dynamique complexe entre les bactéries d'une même espèce et entre les différentes populations bactériennes qui aboutit à la mise en place de consortia bactériens fonctionnels et évolutifs. Ainsi, il est possible qu'après l'adhésion irréversible d'espèces bactériennes aptes à l'attachement (on parle de colonisateur primaire), d'autres espèces bactériennes incapables d'adhérer à la surface solide mais capables de s'intégrer dans la matrice d'EPS viennent coloniser le biofilm (on parle de colonisateur secondaire). On peut aussi avoir des symbioses métaboliques, *i.e.* une espèce bactérienne qui utilise comme substrat un produit métabolique issu de la consommation d'un substrat primaire par une autre espèce (*e.g.* : Andrews *et al.* 2006 ou encore Farhadian *et al.* 2008). À l'inverse, des relations de compétition (*e.g.* : James *et al.*, 1995 ou encore Morgenroth et Wilderer, 2000) voire même de prédation (*e.g.* : Murga *et al.*, 2001 ou encore Núñez *et al.*, 2005) peuvent aussi exister entre les différentes espèces présentes dans un biofilm. On observe, en outre, qu'il existe des phénomènes de communication biochimique entre les cellules bactériennes, fondés sur le phénomène de « quorum sensing » : chaque individu relâche une certaine espèce chimique dans le milieu de manière à ce que ce composé, lorsqu'il se trouve à une concentration seuil dans le milieu (*i.e.* quand la population

microbienne a atteint une densité précise) déclenche une réaction chez les bactéries. De tels phénomènes de communication chimique jouent un rôle important dans les processus d'attachement et de détachement (*e.g.* : Davies *et al.*, 1998 ou encore Xie *et al.*, 2000). Enfin, les biofilms sont un environnement privilégié pour le transfert de gènes entre bactéries, et constituent donc un milieu propice à l'évolution de la communauté bactérienne selon les conditions environnementales (*e.g.* : Ghigo, 2001).

Ce jeu d'interactions internes (entre bactéries au sein du biofilm) et externes (avec l'environnement de développement du biofilm) conduit aux structures de biofilms complexes, hétérogènes et évolutives déjà évoqués. Ainsi, on peut avoir des biofilms présentant une stratification du point de vue des populations bactériennes, *e.g.* : en milieu aérobie, les bactéries aérobies se trouvent en surface du biofilm, et les espèces anaérobies présentes se développent préférentiellement en profondeur dans le biofilm, dans les zones où le dioxygène a été entièrement consommé par le métabolisme des espèces aérobies (*e.g.* : Lynch et Hobbie, 1988). On a d'autre part des structures plus ou moins poreuses (Lewandowski, 2000), suivant les conditions de cisaillement et de disponibilité des substrats (Picioreanu *et al.*, 1998 et Ebrahimi *et al.*, 2005). Enfin, et c'est un aspect important pour la suite de ce travail, des structures et des interactions multi-échelles existent, puisque les cellules bactériennes ont des diamètres de l'ordre de 0.5 à 10  $\mu\text{m}$ , alors que les chaînes de polysaccharides hydratées constituant l'EPS ont des longueurs de l'ordre de la dizaine de nanomètres et que les biofilms peuvent être d'épaisseur millimétriques (voire centimétriques, *e.g.* : Charbonneau *et al.*, 2006), avec des porosités très variables (en terme de volume totale, de taille des pores et de morphologie des pores). La Figure 3 présente les différentes échelles associées à cette dynamique.



**Figure 3 : Les différentes échelles impliquées dans la dynamique des biofilms : exemple d'un biofilm se développant sur un grain solide de milieu poreux (d'après Kapellos *et al.*, 2007)**

Il est important de noter que jusqu'à six ordres de grandeur de différence peuvent exister entre les longueurs caractéristiques associées à l'échelle moléculaire et celle du biofilm proprement dit.

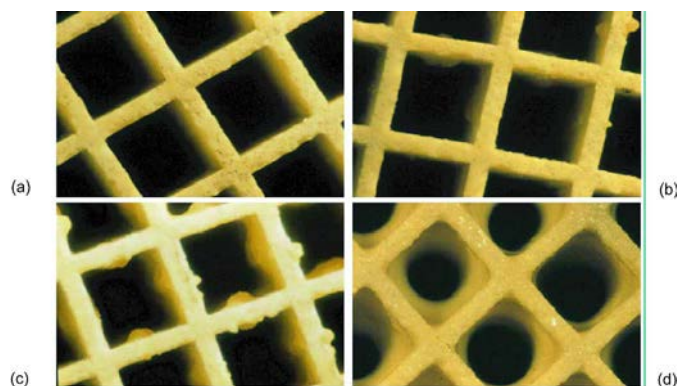
### 1.2.2 Dynamique des biofilms en milieux poreux

Les milieux poreux, de par leurs grandes surfaces de contact fluide - solide, sont un milieu fortement propice au développement de biofilms. En outre, ils présentent d'importantes spécificités qu'il convient de détailler. L'interaction entre le biofilm et le milieu poreux conduit en effet à de fortes modifications des propriétés du milieu hôte (perméabilité, porosité en particulier) ce qui en retour implique des changements notables des caractéristiques du biofilm. De plus, les phénomènes mis en jeu sont associés à des échelles caractéristiques très

variées. Ce double aspect rétroactif et multi-échelle explique la complexité de la dynamique des biofilms en milieu poreux.

#### a) La bio-obstruction

La bio-obstruction est le phénomène par lequel l'espace poral d'un milieu poreux est progressivement envahi par le biofilm qui se développe en son sein, ce qui conduit à une augmentation significative des pertes de charges dans le milieu et donc à une baisse importante de la perméabilité (celle-ci pouvant diminuer facilement d'un facteur 10 ou plus). Ce phénomène a fait l'objet de nombreuses études expérimentales et numériques (on peut citer, par exemple Clement *et al.*, 1997, Chen et Li, 1999, Kildsgaard et Engesgaard, 2001, Dupin *et al.*, 2001, Tiwari et Bowers, 2001, Thulner *et al.*, 2004, Knutson *et al.*, 2006, Kapellos *et al.*, 2007 ou encore Rockhold *et al.*, 2007), de par son impact déterminant sur la dynamique des biofilms en milieux poreux et de ses nombreuses applications (bio-barrières, bio-fouling, ...). La bio-obstruction limite l'écoulement dans le milieu poreux dans les zones de fort développement bactérien, conduisant ainsi à l'établissement de chenaux d'écoulements préférentiels dans les zones les moins colonisées. La Figure 4 présente un exemple de bio-obstruction de milieu poreux.



**Figure 4 : Exemple de bio-obstruction d'un monolithe poreux dû au développement d'un biofilm en son sein : temps croissant de (a) à (d) (tiré de Ebrahimi *et al.* 2005)**

## b) Un fort couplage entre développement du biofilm et transport des espèces dissoutes

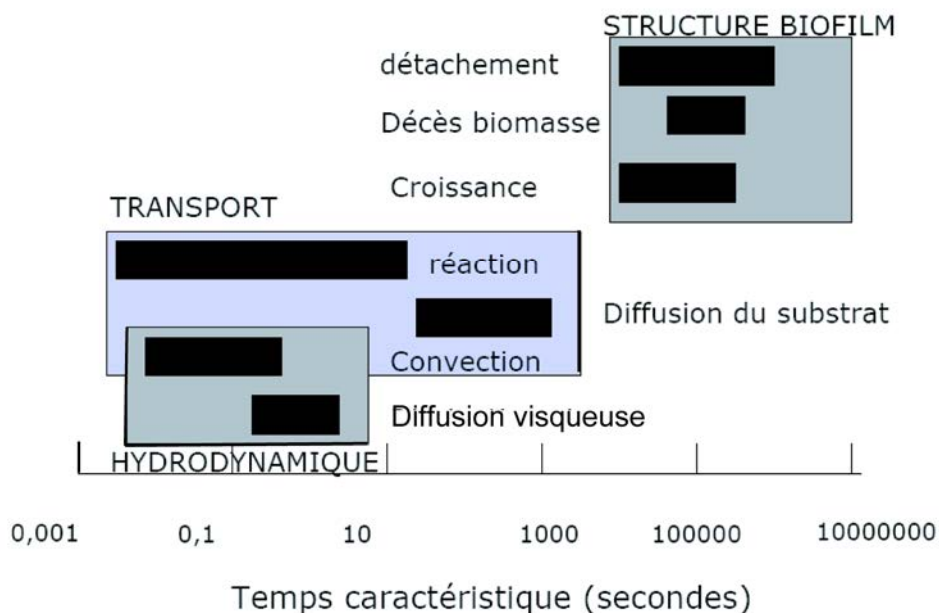
Le transport des espèces impliquées dans le métabolisme bactérien, l'accepteur d'électron et le donneur d'électron, détermine fortement l'évolution du biofilm au sein du milieu. Ainsi, Thullner *et al.* (2002) observent dans leur expérience de croissance de biofilm en milieu poreux que la biomasse se développe principalement dans les zones de mélange entre l'accepteur d'électron et le donneur d'électron - ici le glucose et le nitrate. De par la bio-obstruction et des écoulements préférentiels qui en résultent, ces zones de mélange se déplacent au cours de l'évolution du système, et un couplage entre croissance du biofilm et phénomène de transport devient incontournable. Dans le même ordre d'idée, Knutson *et al.* (2006) insistent sur l'importance de la dispersion transverse (qui est l'un des principaux paramètres contrôlant le mélange des espèces en solution dans l'écoulement) pour l'évaluation du taux effectif de biodégradation des espèces chimiques impliquées dans le métabolisme bactérien. La dispersion est l'une des caractéristiques hydrodynamiques du milieu poreux qui subit des modifications dues au développement du biofilm. Là encore un couplage entre le développement du biofilm et les phénomènes de transport doit être pris en considération.

## c) Un problème fortement multi-échelle

La première forme de multiscalarité rencontrée est spatiale. Le problème du transport en milieu poreux est intrinsèquement multi-échelle, de par la disparité d'échelle entre les grains et les longueurs caractéristiques des formations géologiques ou des réacteurs poreux dans lesquels les phénomènes de transport sont étudiés. De même la dynamique des biofilms est un problème multi-échelle comme cela a été exposé précédemment. Il n'est donc pas surprenant que la dynamique des biofilms en milieux poreux soit un problème fortement multi-échelle. En effet, cette problématique implique des phénomènes prenant place à des échelles aussi variées que l'échelle de la bactérie (transferts membranaires, métabolisme

bactérien, ...), l'échelle du réacteur ou l'échelle de l'aquifère (écoulement macroscopique, hétérogénéités géologiques, ...) en passant par l'échelle du pore (croissance, détachement, ...). Nous reviendrons plus longuement sur ce point – qui constitue le cœur de notre étude - dans le paragraphe 1.3.2.

Il faut noter aussi l'existence d'une multiscalarité temporelle des différents phénomènes impliqués (écoulement, transport, croissance du biofilm ...). On peut voir en Figure 5 un schéma explicitant cette diversité d'échelles temporelles



**Figure 5 : Échelle de temps des phénomènes impliqués dans la dynamique des biofilms (d'après Cuny, 2007).**

En règle générale, le temps caractéristique de relaxation du champ de vitesse est très petit devant le temps caractéristique de transport. De même, celui-ci est très petit devant le temps caractéristique de croissance du biofilm. Cette forte disparité d'échelle temporelle permet la plupart du temps de découpler chacun de ces phénomènes dans le temps. Ainsi, le transport d'un soluté dans un milieu poreux incluant un biofilm peut être modélisé en

considérant que l'écoulement est en régime permanent (puisque celui-ci atteint son équilibre très rapidement, relativement aux phénomènes de transport), et que la géométrie du biofilm est elle aussi fixée (puisque'elle varie très lentement, relativement aux phénomènes de transport).

### **1.3 Enjeux technologiques et scientifiques associés - objectif de ce travail**

Intéressons nous à la modélisation des phénomènes de transport en milieu poreux incluant un biofilm. En effet, les phénomènes de transport sont déterminants dans la dynamique des biofilms, et sont souvent d'un intérêt central dans les applications environnementales et industrielles des systèmes biofilms - milieux poreux.

#### **1.3.1 Applications associées aux biofilms en milieux poreux**

Les applications associées au biofilms en milieux poreux relèvent principalement des domaines des procédés industriels et de l'ingénierie environnementale. Les biofilms peuvent être une contrainte à gérer (biofouling, bio-obstruction autour de puits de fixation, ...) ou au contraire être les agents d'effets recherchés (procédés biologiques avec culture bactérienne fixée, bioremédiation des sites et sols pollués, ...).

##### **a) Applications dans le domaine des procédés industriels**

Des biofilms peuvent se former dans des réacteurs fonctionnant sous le flux d'une phase aqueuse, *e.g.* : réacteur à catalyse de surface, et ainsi générer un certain nombre de problèmes : augmentation des pertes de charges avec éventuellement, réduction de la surface

active utile (les surfaces hôtes du biofilm étant partiellement ou totalement isolées du fluide à traiter), dégradation de l'état du réacteur par biocorrosion, ... Pour plus de détails sur les problèmes générés dans les systèmes industriels par le développement de biofilms, le lecteur pourra se référer à Geesey *et al.* (1994). La plus grande tolérance aux traitements biocides des populations bactériennes se développant sous forme de biofilm par rapport aux bactéries planctoniques et la résistance importante des biofilms au traitement par rinçage augmentent la sévérité de ces problèmes.

Néanmoins les biofilms se développant en milieux poreux sont aussi beaucoup utilisés en procédé biologique, pour le traitement des eaux usées (*e.g.* Vayenas et Lyberatos, 1995 ou encore Stevik *et al.*, 2004) ou pour la culture cellulaire (Meuwly, 2005). La résistance importante des biofilms évoquée ci-dessus devient alors un avantage puisqu'elle garantit une meilleure stabilité des réacteurs face aux variations des effluents les traversant ou au changement brutal des conditions opératoires. On parle de bioréacteur à lit fixe, ou de réacteur PBR (pour Packed Bed Reactor). Dans ce type d'application, la colonisation du milieu poreux est recherchée, même si la bio-obstruction peut devenir, là aussi, un problème.

Pour toutes ces applications, les phénomènes de transfert sont déterminants : le transport de substrat contrôle le développement du biofilm et donc la bio-obstruction, le traitement des eaux usées peut être assimilé au transport d'espèces polluantes à travers des réacteurs, ... Une meilleure compréhension de ces phénomènes permettrait donc de parfaire le dimensionnement et le suivi des procédés impliqués.

#### b) Les processus de bioremédiation

Les biofilms colonisent naturellement les sols, où ils se nourrissent de la matière organique présente. La capacité des populations bactériennes à dégrader une grande variété de composés organiques conduit à une atténuation naturelle de la pollution organique dans les



sols contaminés (*e.g.* : Röling et van Verseveld, 2002 ou encore Weiss et Cozzarelli, 2008). Néanmoins, ce phénomène peut être très lent, d'où l'intérêt d'améliorer cette atténuation naturelle dans les sites fortement contaminés, grâce à des techniques d'ingénierie environnementale comme le biosparging ou le bioventing (injection de dioxygène et/ou de nutriments dans le sol pour favoriser le développement bactérien, *e.g.* : Dybas *et al.*, 1998 ou encore Wu *et al.*, 2006). La capacité des biofilms à réduire la perméabilité du milieu poreux hôte par bio-obstruction peut aussi être utilisée pour limiter l'extension d'un panache de pollution : c'est la technique des bio-barrières (*e.g.* : Chen-Charpentier *et al.*, 2009). De par leur coût limité et de la simplicité de leur mise en œuvre et de leur contrôle (comparativement à d'autres méthodes de traitement physico-chimiques), ces méthodes, qu'on appelle méthodes de bioremédiation, sont déjà beaucoup utilisées en dépollution des sols. Une large littérature leur est consacrée (*e.g.* : National Research Council, 1993 ou encore Löffler et Edwards, 2006).

Cependant, la bio-obstruction peut aussi être une contrainte dans le domaine de l'ingénierie environnementale. Lorsqu'un tel phénomène se produit autour des puits de fixation destinés à limiter l'extension d'une pollution ponctuelle, la diminution de la perméabilité autour des puits et donc le débit d'eau les traversant contribue à une baisse d'efficacité.

L'importance des phénomènes de transport dans ces problématiques est mise en exergue. Le suivi de la biodégradation d'un composé chimique ou de la progression d'un panache de polluant dans un sol conduit au suivi des transports réactifs de ces espèces à travers le milieu poreux qu'est la formation considérée.

### **1.3.2 Une des difficultés majeures : l'aspect multi-échelle**

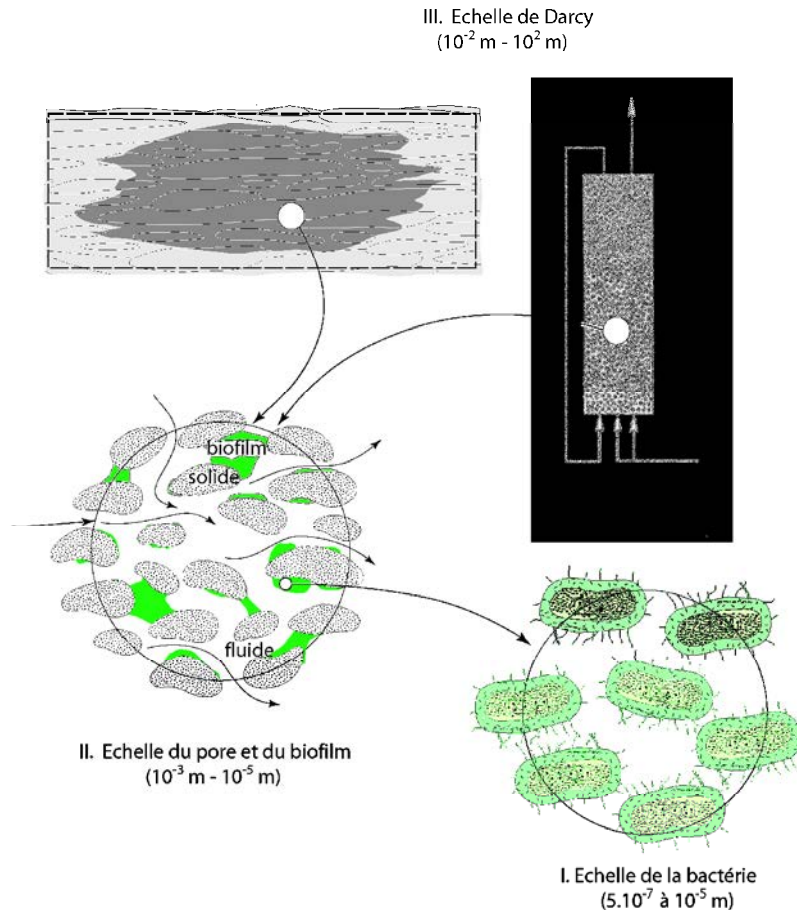
La modélisation des phénomènes de transport bio-réactif dans un milieu poreux incluant un biofilm se heurte donc à plusieurs difficultés :

- (i) l'aspect multidisciplinaire des phénomènes impliqués (physique, chimique, biologique) ;
- (ii) les forts couplages existant entre ces différents phénomènes (comme celui, par exemple, entre les phénomènes de transport et le développement des biofilms) ;
- (iii) la complexité des milieux poreux naturels que sont les sols dans le cas des méthodes de bioremédiation (réactivité de la phase solide, présence d'une fraction organique naturelle issue de l'humification, incertitudes sur les données géologiques ...) ;
- (iv) et enfin l'aspect multi-échelle des phénomènes impliqués.

C'est sur ce dernier point que le présent travail se focalise. La Figure 6 présente les principales échelles impliquées dans le transport bio-réactif en milieu poreux qui sont :

- (i) l'échelle de la bactérie (échelle des processus biochimiques, *etc*) ;
- (ii) l'échelle du pore (échelle -entre autre- de la diffusion du polluant dans le biofilm) ;
- (iii) et l'échelle de Darcy où le milieu poreux est supposé continu et homogène

Une ou plusieurs étapes supplémentaires peuvent éventuellement être nécessaires pour modéliser le transport à l'échelle d'un aquifère, pour prendre en compte les hétérogénéités des formations géologiques (fracturations, lentilles argileuses, ...). On peut se référer par exemple à Sun *et al.* (1999) pour un exemple de modélisation de transport en milieux poreux incluant un biofilm dans un aquifère hétérogène.



**Figure 6 : Les principales échelles impliquées dans la dynamique des biofilms en milieux poreux**

La plupart du temps, l'échelle d'intérêt est l'échelle du terrain ou celle du réacteur. Si l'on suppose le milieu quasi-homogène (c'est-à-dire faiblement hétérogène à grande échelle), on peut utiliser les équations de transport à l'échelle de Darcy pour modéliser les phénomènes de transport au niveau d'un réacteur ou d'une formation aquifère. De nombreux modèles de ce type décrivant la biodégradation en milieu poreux existent dans la littérature (e.g. Clement, 1997) à l'heure actuelle. Toutefois, bien que la plupart de ces modèles soient mécanistiques dans le sens où ils essaient d'identifier les mécanismes importants mis en jeu (dispersion - convection - biodégradation, limitation éventuelle), ils ne sont pas issus d'un formalisme rigoureux qui moyenne les équations de l'échelle inférieure. En ce sens, ce qui fait défaut, ce sont les valeurs des paramètres effectifs associés à ces modèles tels que le tenseur de

dispersion. Les coefficients à l'échelle de Darcy sont supposés existés *a priori* et ne sont pas reliés d'une quelconque manière à la structure microscopique du milieu poreux. Ils ont alors besoin d'être calés ou mesurés directement avec les difficultés expérimentales inhérentes aux systèmes biologiques. Plusieurs études (Cirpka *et al.*, 1999, Cirpka, 2002) par exemple, soulignent l'importance de la dispersion dans les méthodes de bioremédiation *in situ* (le développement du biofilm est lié à l'importance de la zone de mélange) et suggèrent que la surestimation de la biodégradation observée dans la plupart des modèles numériques est due à une mauvaise évaluation de ce tenseur. En outre, si on peut mesurer par exemple le taux de dégradation intrinsèque d'un composé par les bactéries présentes ou le taux de diffusion moléculaire de ce composé dans l'eau, il n'en est pas de même pour le tenseur de dispersion macroscopique du composé dans le milieu poreux colonisé par le biofilm ou pour le taux de dégradation effectif dans le milieu compte tenu de la densité de bactérie dans le biofilm et du développement de celui-ci dans le milieu. Pour être plus précis, même si la valeur à un instant  $t$  d'un des paramètres effectifs évoqués ci-dessus peut être calé ou estimé, son évolution au cours du temps en fonction de la croissance microbienne ne peut être prédite de cette manière. Afin de pouvoir mettre en place une modélisation rigoureuse du phénomène de transport bioréactif à l'échelle de Darcy, il faut pouvoir relier les équations macroscopiques aux paramètres microscopiques. En d'autres termes, il faut être capable d'évaluer les paramètres macroscopiques dont on a besoin à partir des paramètres microscopiques dont on dispose. Une solution pour résoudre ce problème de disparité des échelles est d'appliquer des méthodes de changement d'échelle qui permettent de conserver au niveau macroscopique les principales caractéristiques des processus physiques, biologiques et chimiques se produisant aux échelles inférieures (*e.g.* : Sturmman *et al.* 1995). Ce point sera développé dans le chapitre suivant.

### 1.3.3 Objectif du présent travail

Dans ce travail, on se propose de conduire une modélisation rigoureuse des phénomènes de transport de soluté biodégradable en milieu poreux à l'échelle de Darcy, qui est l'échelle des applications techniques et scientifiques, à partir des données disponibles, définies à l'échelle du pore et du biofilm. La mise en place d'une telle modélisation permettrait d'approfondir la compréhension de ce phénomène complexe qu'est la dynamique des biofilms en milieux poreux, et éventuellement d'avancer dans la voie de l'optimisation des différentes applications technologiques et environnementales associées. Le changement d'échelle complet des phénomènes de biodégradations et de tous les phénomènes connexes (rôle de la réactivité de la matrice solide, dynamique du biofilm, ... ; cf. Sturmman *et al.*, 1995 pour une revue des défis du changement d'échelle des phénomènes de biodégradation) dépasse notablement le cadre de ce travail, aussi on se limitera ici à un système biofilm-milieu poreux simplifié par rapport à la réalité, comme on l'expliquera dans le chapitre suivant. Néanmoins, cette première approche est à notre avis un préambule nécessaire au développement d'une modélisation de cas réels (bioréacteur, biodégradation sur site pollué) en tenant compte de toute leur complexité. Ce travail de modélisation est présenté dans les chapitres 2 à 8 de cette thèse. En outre, la conception d'un modèle expérimental de transport non-réactif (*i.e.* sans biodégradation) en milieu poreux incluant un biofilm a été initiée durant cette thèse. Le développement d'un tel modèle expérimental répond à deux objectifs principaux : la nécessité de procéder à une validation expérimentale de la modélisation numérique détaillée dans un premier temps, et dans un second temps, l'étude de la dynamique des biofilms en milieux poreux par l'utilisation croisée des modèles numériques et expérimentaux. Ce volet expérimental n'a pas encore donné lieu à des résultats publiables. Néanmoins son avancée est présentée dans le chapitre 9. Enfin, les conclusions et perspectives de cette thèse seront présentées dans le chapitre 10.



## **CHAPITRE 2 : SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE - ASPECT THÉORIQUE**





Nous commençons ce chapitre par un bref état de l'art de la modélisation des phénomènes de transport de soluté biologiquement actif en milieu poreux incluant une phase biofilm à l'échelle de Darcy. Les différentes approches développées dans la littérature sont présentées dans un premier temps, avant de se consacrer à la problématique du changement d'échelle, aux principales méthodes qui lui sont associées et plus particulièrement à la méthode de prise de moyenne volumique. Enfin, nous présentons les bases de l'application de cette méthode au problème de transport de soluté bio-réactif en milieux poreux : hypothèses fondamentales, expression du problème à l'échelle du pore et établissement de la forme générale de l'équation de transport à l'échelle de Darcy.

## **2.1 État de l'art de la modélisation du transport en milieux poreux incluant un biofilm à l'échelle de Darcy**

L'étude du transport d'espèces chimiques en présence de bactéries, se développant généralement sous la forme de conglomerats appelés biofilms au sein du milieu poreux, est un problème typiquement multi-échelle. En règle générale, on considère l'impact de ces phénomènes *d'un point de vue macroscopique* - à l'échelle de Darcy ou à une échelle supérieure (celle du réacteur ou de l'aquifère), alors que les processus bio-physico-chimiques les contrôlant se tiennent à l'échelle du pore ou à une échelle inférieure : limitation diffusive du taux de réaction, réaction de biodégradation, ... Compte tenu de l'intérêt croissant pour ce type de problématique, un grand nombre de modèles macroscopiques ont vu le jour. Du point de vue de la prise en compte du processus de transport (nous ne considérons pas ici, par exemple, la modélisation du phénomène de croissance bactérienne), on peut distinguer deux grands types de modèles.

Sous certaines conditions (hydrodynamiques et réactives), les processus limitants, propres à chaque phase, peuvent ne pas fondamentalement modifier la distribution macroscopique de la concentration au sein du milieu et une hypothèse d'équilibre de masse local (*i.e.* les concentrations moyennes par phase sont globalement à l'équilibre) peut alors être adoptée. Cette approche, qui suppose que la dégradation bactérienne est limitée par la concentration moyenne de soluté au sein de la phase fluide, conduit à introduire le terme réactif sous forme d'un terme « source » macroscopique au sein de l'équation de transport. Cette situation, la plus simple en termes de modélisation des transferts, a donné lieu aux premiers modèles macroscopiques de transport bioréactif. On peut citer les travaux pionniers de Sykes *et al.* (1982), Borden et Bedient (1986) ou encore Kindred et Celia (1989). Dans Cirpka *et al.* (1999), par exemple, cette hypothèse est adoptée pour traiter le cas à grande échelle d'une biodégradation limitée par le mélange transverse. Ce travail, ainsi que celui de Knutson *et al.* (2006), souligne l'importance de la dispersion transversale macroscopique dans le phénomène de biodégradation. En effet, la plupart du temps les réactions de biodégradation impliquent aux moins deux espèces, l'accepteur d'électron et le donneur d'électron, et ne peuvent donc avoir lieu que dans les zones de mélange entre ces deux solutés.

Toutefois, les limitations, affectant le transport ou le taux de dégradation à l'échelle du pore, ne sont généralement pas négligeables et se traduisent par l'apparition de gradients de concentration à l'interface fluide-biofilm. Cette situation de non-équilibre peut être d'origine hydrodynamique (différence dans les temps caractéristiques des processus de transfert associés à chacune des phases) ou chimique (Harmon *et al.*, 1989 ; Weber *et al.*, 1991). En effet, un non-équilibre massique entre la phase fluide et une phase non-aqueuse peut être dû à une limitation du transfert de masse dans le fluide, si le transport diffusif dans le biofilm n'est pas négligeable devant le transfert convectif (Miller *et al.*, 1990). De même, la biodégradation du soluté au sein du biofilm peut générer ou augmenter un déséquilibre de masse avec la

phase fluide environnante, si le taux de réaction est important par rapport au taux de diffusion (Rifai et Bedient, 1990 ; Anderson et McCarty, 1994).

Des modèles conceptuels ont été mis en place pour expliquer les processus par lesquels l'existence de situation de non équilibre de masse affecte les phénomènes de transport en milieu poreux incluant un biofilm. On peut ainsi citer les modèles issus de la théorie du film stagnant (*e.g.* : Jennings *et al.*, 1976, Baveye et Valocchi, 1989), et les modèles de type couche limite (*e.g.* : Chen *et al.*, 1992). Taylor et Jaffe (1990) ont proposé un modèle macroscopique de non-équilibre où l'effet limitant de la cinétique de réaction est pris en compte à travers l'introduction d'un facteur d'efficacité (voir Chapitre 4). Kim *et al.* (2004), plus récemment, ont étendu ce travail en incluant un biofilm différencié (comportant des espèces bactériennes aérobie et anaérobie) afin de simuler des expériences de biodégradation de toluène en colonne de sable saturé en eau. Ces modèles fournissent des descriptions qualitatives pertinentes de l'impact des non-équilibres sur les phénomènes de transport, mais sont plus limités du point de vue de la prédiction quantitative car ils sont contraints par des hypothèses fortes (gradients de concentration restreints à une couche d'épaisseur finie, concentration à la surface du biofilm égale à la concentration moyenne dans le milieu fluide ...) et impliquent l'usage de grandeurs moyennes (concentrations moyennes dans le fluide et à la surface du biofilm, coefficient de transfert entre phase, ...) qui sont très difficiles à évaluer *a priori*. La plupart des modèles les dérivent sur la base de mesures expérimentales ou à partir de simulations directes réalisées à l'échelle du pore. Dans Suchomel *et al.* (1998a, 1998b) et Chen-Charpentier (1999), par exemple, une approche de modélisation par réseau est proposée, qui permet d'étudier la bio-obstruction d'un milieu poreux.

Afin de contraindre ces grandeurs moyennées, une des voies possibles est le recours aux méthodes de changement d'échelle (*cf.* paragraphe 2.2). Ces méthodes mathématiques

permettent d'établir sur une base physique rigoureuse les liens entre processus à petites échelles et phénomènes à grandes échelles. Ainsi, plusieurs travaux ont été menés sur l'établissement des équations de transport de solutés en milieux poreux incluant un biofilm à l'échelle de Darcy à partir des données de l'échelle du pore. Dans Dykaar et Kitanidis (1996), un des premiers travaux de ce type, l'équation de transport macroscopique est dérivée pour une géométrie de pore sinusoïdale, en prenant en compte une cinétique de biodégradation du premier ordre. La méthode utilisée est la méthode des moments. Dans Miralles-Whilhelm *et al.* (1997), un changement d'échelle pour l'équation de transport dans le cas d'une population bactérienne planctonique est proposé. Plus récemment, dans Heße *et al.* (2009), l'équation de transport est moyennée dans le cas d'une géométrie stratifiée et d'une réaction surfacique régie par une cinétique non linéaire de Monod et l'impact de cette non linéarité sur les concentrations moyennées est analysé.

Enfin, avec Wood et Whitaker (1998,1999, 2000) et Golfier *et al.* (2009), un processus rigoureux d'établissement des équations de transport de soluté bioréactif en milieux poreux basé sur la méthode de prise de moyenne volumique est entamé. L'objectif est d'établir un modèle de transport tridimensionnel à l'échelle de Darcy basé sur les données disponibles aux échelles inférieures et permettant de considérer la plus large gamme possible de milieux poreux et de situation de transport (hydrodynamique, biochimique). Dans Wood et Whitaker (1998, 1999, 2000), le changement d'échelle permettant de passer de l'échelle de la bactérie (I) à l'échelle du pore et du biofilm (II) est traité (*cf.* Figure 6). Dans Golfier *et al.* (2009), le passage à l'échelle supérieure (vers l'échelle de Darcy) a été effectué avec l'établissement des équations de transport macroscopiques dans le cadre de l'équilibre de masse local. Le présent travail s'inscrit dans la continuité de ces études, afin de développer les équations de transport macroscopiques en conditions hors équilibre et d'utiliser ces modèles pour l'étude de la dynamique des biofilms en milieux poreux. La méthode de prise de moyenne volumique a été

mise en oeuvre avec succès depuis des décennies pour établir les formes appropriées des équations de transport dans des systèmes multiphasiques (*e.g.* : Quintard and Whitaker, 1994). C'est pourquoi cette approche a été choisie dans Wood et Whitaker (1998, 1999, 2000) et dans Golfier *et al.* (2009), et c'est aussi pourquoi nous conserverons cette même optique dans le présent travail.

## **2.2 Changement d'échelle et prise de moyenne volumique**

La nécessité de résoudre des problèmes impliquant des phénomènes de disparités d'échelles a donné naissance aux techniques de changement d'échelle. Nous présentons dans cette partie la problématique du changement d'échelle au sens large, avant de s'intéresser plus particulièrement à la technique utilisée dans ce travail : la méthode de prise de moyenne volumique.

### **2.2.1 Problématique du changement d'échelle**

Le changement d'échelle vise à établir les équations et paramètres caractérisant un phénomène donné à une échelle donnée à partir des équations et paramètres définis à une échelle inférieure. L'intérêt réside dans le fait qu'*a priori* les équations et paramètres de la petite échelle sont connus, alors que ceux de l'échelle supérieure ne le sont pas. Or il est courant qu'un problème scientifique ou industriel ne puisse être résolu entièrement à petite échelle, de par un manque de données et/ou d'une puissance de calcul insuffisante (Wood, 2009). Il faut alors étudier ces phénomènes à une échelle où les données *utiles*<sup>1</sup> (géométries, conditions aux limites, ...) sont disponibles et où les calculs sont réalisables en un temps

---

<sup>1</sup> La totalité des informations microscopiques en tout point du domaine n'est en effet pas obligatoirement nécessaire à la détermination des coefficients macroscopiques. Il est bien connu par exemple, que la diffusion effective ne dépend principalement que de la porosité du milieu poreux et non pas de sa tortuosité.

raisonnable. Cette échelle, dite échelle d'intérêt, est en règle générale supérieure à la plus grande échelle où les équations et paramètres des phénomènes mis en jeu sont connus. Afin d'établir des modèles pertinents et utilisables, on a alors recours aux méthodes de changement d'échelle, qui permettent d'obtenir les équations et paramètres des phénomènes étudiés à l'échelle d'intérêt (échelle macroscopique) à partir des équations et paramètres connus à plus petite échelle (échelle microscopique). Le changement d'échelle agit comme un filtre qui permet de ne conserver que les informations déterminantes à l'échelle d'intérêt à partir de la masse d'informations disponibles aux échelles inférieures (Wood, 2009). Il ressort qu'une partie de l'information est nécessairement perdue à travers ce processus ; le but étant de pouvoir quantifier les erreurs résultant de cette perte d'information de telle sorte qu'on puisse vérifier qu'elles ne posent pas de problème au regard de la précision exigée pour la modélisation (qui dépend des contraintes scientifiques ou industrielles du problème considéré). Différentes méthodes de changement d'échelle ont été développées au cours des dernières décennies. On peut citer par exemple la méthode d'homogénéisation (Sanchez-Palencia, 1980, ou encore Lewandowska *et al.*, 2005), qui repose sur le développement asymptotique des grandeurs considérées en fonction d'un petit paramètre qui est le rapport entre les longueurs caractéristiques des échelles microscopiques et macroscopiques ; ce développement permet de distinguer les contributions de chaque échelle au phénomène macroscopique étudié. La méthode stochastique (Matheron, 1965 ; Dagan, 1979 ; Gehlar, 1984 ; Dagan, 1990) adopte le point de vue où la structure du milieu à l'échelle microscopique est une réalisation d'un processus aléatoire stationnaire et ergodique ; on peut donc évaluer les propriétés macroscopiques du milieu à l'aide des moments statistiques de la structure du système à l'échelle microscopique (calculés à partir des informations disponibles sur la réalisation constituée par le milieu poreux étudié). L'approche variationnelle (Rubinstein et Torquato, 1989) repose sur l'idée d'exprimer les propriétés effectives

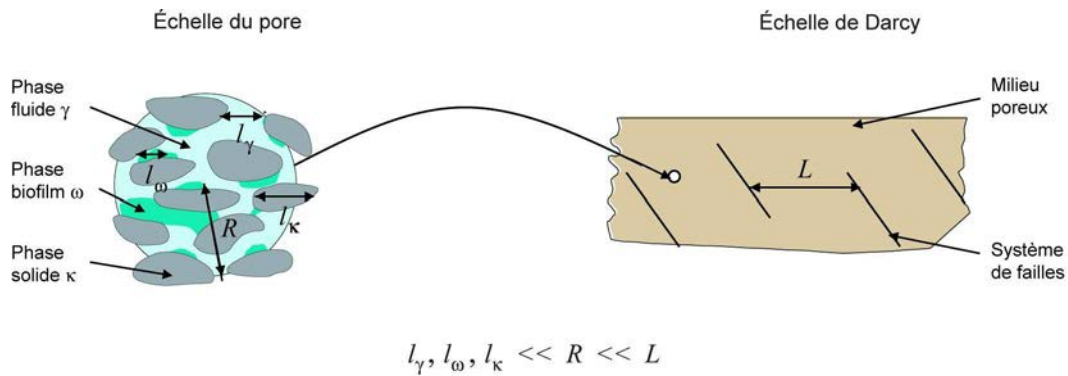
recherchées (à grandes échelles) comme des fonctionnelles énergétiques, qu'on borne ensuite par application du principe variationnel. Enfin, la méthode de prise de moyenne volumique procède par l'intégration des grandeurs microscopiques sur un volume convenablement choisi, d'échelle caractéristique intermédiaire entre l'échelle microscopique et l'échelle macroscopique (Anderson et Jackson, 1967 ; Marle, 1967 ; Slattery, 1967 ; Whitaker, 1967). Une description détaillée de chacune de ces approches dépasse le cadre de ce travail, néanmoins on présentera brièvement dans le paragraphe suivant la méthode de prise de moyenne volumique puisque c'est celle qui est adoptée ici.

### **2.2.2 La méthode de prise de moyenne volumique**

La méthode de prise de moyenne volumique (*e.g.* : Whitaker, 1999) repose sur l'utilisation d'un opérateur de prise de moyenne sur un volume convenablement choisi du milieu considéré à l'échelle microscopique. L'application de cet opérateur aux équations gouvernant le phénomène considéré à l'échelle microscopique, associée à l'utilisation de différents théorèmes régissant les relations entre l'opérateur de prise de moyenne volumique et les opérateurs classiquement utilisés en physique (gradient spatial, divergence, dérivée temporelle) permet d'arriver à l'expression générale des équations de conservation à l'échelle d'observation considérée. Ces équations macroscopiques ainsi développées sont *in fine* exprimées en terme des moyennes spatiales (ou d'ensemble) des processus eux-mêmes. Les paramètres associés à ces équations macroscopiques sont calculés par la résolution de problèmes de fermeture établis à l'échelle microscopique et définis sur le volume de prise de moyenne ou V.E.R (Volume Élémentaire Représentative), en pratique sur une cellule unitaire représentative des propriétés du milieu à l'échelle microscopique. Ces instruments mathématiques sont présentés ci-dessous, ainsi que les contraintes à satisfaire pour que leur utilisation soit pertinente.

a) L'opérateur de prise de moyenne volumique

Les définitions mathématiques rigoureuses de l'opérateur de prise de moyenne volumique et des théorèmes de composition qui lui sont associés peuvent, par exemple, être trouvées dans Whitaker (1999) ou Quintard (1993). Ici on introduira ces notions en les développant pour notre cas d'application : le transport de soluté biologiquement actif en milieu poreux incluant une phase biofilm. On peut voir sur la Figure 7 les échelles considérées dans ce travail, ainsi que les longueurs caractéristiques qui leur sont associées, dans le cas où l'on a des hétérogénéités à grandes échelles telles que des failles.



**Figure 7 : Echelle du pore et du biofilm : longueurs caractéristiques et contraintes de séparation des échelles**

À l'échelle du pore (échelle microscopique), le milieu est constitué de trois phases, considérées comme continues mais distinctes dans l'espace : la phase fluide (phase  $\gamma$ ), la phase biofilm (phase  $\omega$ ) et la phase solide (phase  $\kappa$ ). À l'échelle de Darcy (échelle macroscopique), on considère que ces trois phases sont des continua interconnectés et définis en tous points de l'espace. On considère le transport d'un soluté A dans ce milieu triphasique : on note  $c_{A\gamma}$  (resp.  $c_{A\omega}$ ) la concentration à l'échelle microscopique dans la phase fluide (resp. dans la phase biofilm). La concentration en soluté n'est pas définie dans la phase solide. L'application de l'opérateur de prise de moyenne volumique, noté  $\langle \rangle$ , à ces deux grandeurs



microscopiques sur un volume  $V$  convenablement choisi permet de définir les concentrations globales à l'échelle macroscopique :

$$\langle c_{A\gamma} \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_\gamma} c_{A\gamma} dV \quad (1)$$

$$\langle c_{A\omega} \rangle = \frac{1}{V} \int_{V_\omega} c_{A\omega} dV \quad (2)$$

Ici  $V_\gamma$  (resp.  $V_\omega$ ) représente le volume de phase fluide (resp. de phase biofilm) contenu dans le volume de prise de moyenne  $V$ . Pour que  $\langle c_{A\gamma} \rangle$  et  $\langle c_{A\omega} \rangle$  soient effectivement des grandeurs significatives des concentrations en soluté A dans chaque phase à l'échelle de Darcy, il faut que la longueur caractéristique du volume de prise de moyenne  $V$ , à savoir son rayon  $R$ , respecte la contrainte de séparation des échelles (Whitaker, 1999), qui peut être exprimée de la manière suivante :

$$l_\gamma, l_\omega, l_k \ll R \ll L \quad (3)$$

En d'autres termes, la longueur caractéristique du volume  $V$  doit être très grande devant les longueurs caractéristiques des hétérogénéités à l'échelle microscopique et très petite devant la longueur caractéristique des hétérogénéités à l'échelle macroscopique. Cette condition est illustrée en Figure 7. C'est la loi d'échelle (*scaling law*) qui permet le filtrage des informations pertinentes à l'échelles de Darcy à partir de la masse d'informations disponibles à l'échelle du pore (*e.g.* : Wood, 2009). Si cette condition est respectée, les grandeurs  $\langle c_{A\gamma} \rangle$  et  $\langle c_{A\omega} \rangle$  sont appelées les concentrations moyennes globales des phases fluide et biofilm.

#### b) Théorèmes de prise de moyenne volumique

Afin de pouvoir appliquer l'opérateur de prise de moyenne volumique aux équations de transport de l'échelle microscopique, il reste à définir les lois de composition entre cet opérateur et les différents opérateurs différentiels classiques : gradient, divergence et dérivée

temporelle. On utilise pour cela trois théorèmes dont la validité est assujettie au respect de la contrainte de séparation des échelles. Ils sont rappelés brièvement ici, dans le contexte de notre problème.

- Théorème de prise de moyenne spatiale scalaire (Howes and Whitaker, 1985 ; Gray *et al.*, 1993) : On considère la composition de l'opérateur gradient d'une fonction scalaire (par exemple la concentration microscopique dans la phase fluide  $c_{A\gamma}$ ) par l'opérateur de prise de moyenne volumique.

$$\langle \nabla c_{A\gamma} \rangle = \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\omega}} c_{A\gamma} \mathbf{n}_{\gamma\omega} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} c_{A\gamma} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} dA \quad (4)$$

où  $A_{\gamma i}$ , ( $i = \omega, \kappa$ ) désignent les interfaces fluide-biofilm et fluide-solide respectivement, et  $\mathbf{n}_{\gamma i}$ , ( $i = \omega, \kappa$ ) désignent les normales aux interfaces fluide-biofilm et fluide-solide respectivement, orientant la surface du domaine fluide vers l'extérieur.

- Théorème de prise de moyenne spatiale vectorielle (*ibid.*) : Ce théorème permet d'inverser l'opérateur divergence d'une fonction vectorielle (par exemple le produit du champ de vitesse microscopique défini dans la phase fluide  $\mathbf{v}_\gamma$  et du champ de concentration microscopique dans cette même phase) avec l'opérateur de prise de moyenne volumique. Cette relation peut s'exprimer sous la forme :

$$\langle \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \rangle = \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma} \rangle + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\omega}} (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \cdot \mathbf{n}_{\gamma\omega} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \cdot \mathbf{n}_{\gamma\kappa} dA \quad (5)$$

- Théorème général de transport (Whitaker, 1981) : on considère la composition de l'opérateur dérivée temporelle d'une fonction scalaire (par exemple la concentration microscopique dans la phase fluide  $c_{A\gamma}$ ) avec l'opérateur de prise de moyenne volumique :

$$\left\langle \frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle}{\partial t} + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\omega}} c_{A\gamma} (\mathbf{v}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{n}_{\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} c_{A\gamma} (\mathbf{v}_{\gamma\kappa} \cdot \mathbf{n}_{\gamma\kappa}) dA \quad (6)$$

Ici les  $\mathbf{v}_{\gamma i}$ , ( $i = \omega, \kappa$ ) représentent les vitesses de déplacement des interfaces fluide-biofilm et fluide-solide respectivement. Comme l'on ne considère pas de dissolution de la phase solide, ni de phénomène de précipitation, et que la croissance du biofilm est un phénomène supposé très lent par rapport aux phénomènes de transports étudiés (voir le chapitre 1 et le paragraphe 2.4 pour plus de détails sur les hypothèses associées au problème considéré), on a  $\mathbf{v}_{\gamma\kappa} = \mathbf{v}_{\gamma\omega} = \mathbf{0}$ . On peut alors simplifier le théorème précédent de la manière suivante et on obtient :

$$\left\langle \frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle}{\partial t} \quad (7)$$

### c) Procédure générale d'établissement des équations macroscopiques

En appliquant l'opérateur de prise de moyenne volumique aux équations de transport à l'échelle du pore, et en appliquant les théorèmes de moyenne présentés ci-dessus, on obtient la formulation générale des équations régissant les moyennes globales des concentrations dans le milieu, équations qui sont définies à l'échelle de Darcy. Néanmoins ces équations ne sont pas fermées au sens où elles font encore intervenir les champs de concentrations microscopiques. La procédure aboutissant à ce système d'équations macroscopiques ouvert est présentée dans la partie suivante de ce chapitre.

Afin d'identifier les contributions respectives des grandeurs macroscopiques et des grandeurs microscopiques, il est intéressant d'utiliser une décomposition des champs microscopiques considérés comme des sommes de leurs valeurs moyennées et d'un terme de déviation autour de ces moyennes. Tout d'abord,, il est nécessaire de définir la notion de grandeur moyenne intrinsèque, *i.e.* : la valeur moyenne réelle de la variable considérée dans la

phase où elle est définie. En considérant les fractions volumiques de fluide  $\varepsilon_\gamma$  et de biofilm  $\varepsilon_\omega$ , données par

$$\varepsilon_\gamma = \frac{V_\gamma}{V} \quad (8)$$

$$\varepsilon_\omega = \frac{V_\omega}{V} \quad (9)$$

Les concentrations moyennes intrinsèques  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  et  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$  peuvent être définies sous la forme

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma = \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle}{\varepsilon_\gamma} = \frac{1}{V_\gamma} \int_{V_\gamma} c_{A\gamma} dV \quad (10)$$

$$\langle c_{A\omega} \rangle^\omega = \frac{\langle c_{A\omega} \rangle}{\varepsilon_\omega} = \frac{1}{V_\omega} \int_{V_\omega} c_{A\omega} dV \quad (11)$$

Ces concentrations moyennes intrinsèques sont utilisées dans la décomposition des champs de concentrations microscopiques, nommée décomposition de Gray (Gray *et al.*, 1993) sous la forme d'une somme de leur moyenne et d'une déviation:

$$c_{A\gamma} = \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \tilde{c}_{A\gamma} \quad (12)$$

$$c_{A\omega} = \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} \quad (13)$$

On appelle champ de déviation des concentrations dans la phase fluide (resp. biofilm) le champ  $\tilde{c}_{A\gamma}$  (resp.  $\tilde{c}_{A\omega}$ ), qui est défini à l'échelle microscopique. On peut définir de manière similaire une décomposition de Gray du champ de vitesse microscopique :

$$\mathbf{v}_\gamma = \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \quad (14)$$

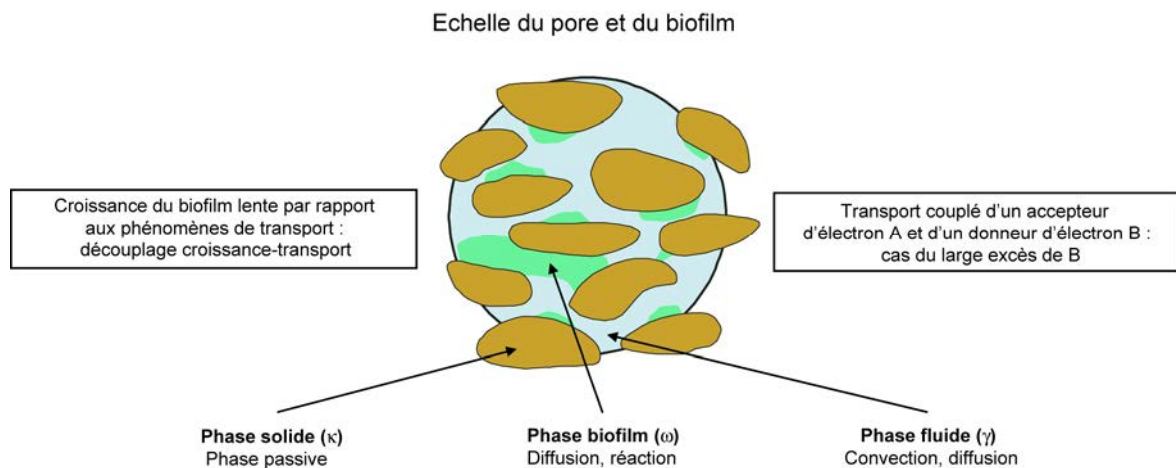
En introduisant ces décompositions dans les équations moyennées précédemment obtenues, on arrive à un système d'équations régissant les grandeurs moyennes intrinsèques et dont les paramètres sont des fonctions des champs de déviation  $\tilde{c}_{A\gamma}$ ,  $\tilde{c}_{A\omega}$  et  $\tilde{\mathbf{v}}_\gamma$ . Il ne reste alors plus

qu'à relier ces termes de déviations (qui sont des termes microscopiques) à des termes sources macroscopiques. Pour ce faire, on soustrait les équations macroscopiques aux équations microscopiques de manière à obtenir les équations régissant ces champs de déviations. De ces équations de déviations, on tire alors l'expression des problèmes de fermeture, qui, résolus sur le volume de prise de moyenne ou sur une cellule unitaire représentative des propriétés du milieu poreux à l'échelle du pore, permettent de calculer les paramètres des équations macroscopiques de transport. Il reste à définir une notion importante qui concerne les problèmes de changement d'échelle lorsque des hétérogénéités apparaissent : la *notion d'équilibre* ou de *non équilibre de masse local*. En pratique, l'hypothèse d'équilibre de masse local revient à supposer que les concentrations moyennes intrinsèques propres à chaque phase ( $\langle c_{Ay} \rangle^y$  et  $\langle c_{Aw} \rangle^w$ ) sont pratiquement similaires et qu'une seule et même concentration macroscopique (et donc une seule équation de transport) permet de caractériser le milieu. À l'opposé, si cette hypothèse n'est pas vérifiée, ces deux concentrations moyennes, bien que couplées, sont distinctes et deux équations macroscopiques interdépendantes sont généralement requises. Dans notre cas, la présence éventuelle de gradients de concentration à l'interface fluide-biofilm due aux processus de réaction et de diffusion peut conduire à des conditions de non-équilibre. Nous montrerons toutefois par la suite que sous certaines hypothèses simplificatrices (limitation de la réaction par la cinétique ou le transfert de masse), ces deux équations peuvent être simplifiées. À ce stade de l'analyse et en fonction des hypothèses émises (équilibre local ou non, limitation éventuelle), nous obtenons l'expression du modèle macroscopique final de transport bioréactif qui gouverne notre problème. Nous reviendrons plus en détails sur le développement de ces modèles d'équilibre ou de non équilibre local dans les chapitres suivants. Notons simplement que l'essentiel du travail théorique effectué pour le développement des modèles de transport par changement d'échelle présentés ci-après, consiste en l'établissement des équations de transport macroscopiques et

des problèmes de fermeture associés, tandis que l'essentiel de l'effort numérique a porté sur la résolution des problèmes de fermeture.

### 2.3 Modèle à l'échelle du pore et équation de transport ouverte à l'échelle de Darcy

Avant toute chose, il est important de définir les équations qui régissent notre problème à l'échelle microscopique. On considère ici les relations de conservation de la masse à l'échelle du pore d'un soluté organique A, dans les phases fluide et biofilm au sein d'un milieu poreux saturé. On peut voir sur la Figure 8 un bref résumé des hypothèses qui sont formulées par rapport au transport bio-réactif considéré.



**Figure 8 : Phénomènes de transport à l'échelle du pore et du biofilm**

Dans cette formulation du problème de transport à l'échelle du pore, nous ne considérons que les phénomènes de convection et de diffusion dans la phase fluide, et les phénomènes de diffusion et de réaction de biodégradation dans la phase biofilm. Classiquement, on utilise une cinétique de Monod double pour représenter la réaction de biodégradation (*e.g.* : McGee *et al.*,

1970 ou encore Clement, 1997), puisque en règle générale la métabolisation des substances organiques par des bactéries implique deux espèces chimiques : un substrat, ou donneur d'électron, *e.g.* une molécule organique qui sert de source de carbone et d'énergie, noté soluté *A*, et un donneur d'électron, *e.g.* le dioxygène ou le nitrate, noté soluté *B*. Une cinétique de Monod tend vers une cinétique d'ordre 1 quand la concentration en soluté réactif est très petite devant une constante dite de demi-saturation effective, et vers une cinétique d'ordre 0 quand la concentration en soluté est très grande devant la constante de demi-saturation effective. On a donc affaire à une non-linéarité relativement faible, qui traduit une évolution non linéaire entre deux comportements-limites linéaires. D'autre part la phase solide est supposée passive vis-à-vis du transport du soluté *A*. À ces premières simplifications viennent se rajouter une série d'hypothèses fortes sur le phénomène étudié qui sont listées ci-dessous

- Le biofilm est assimilé à une phase continue localement homogène, bien qu'en réalité celui-ci soit un système multiphasique complexe (cellule bactériennes, substance polymérique extra cellulaire, porosité). La description du biofilm en tant que continuum a été effectuée par Wood et Whitaker (1998, 2000). On fait en outre l'hypothèse que la macroporosité du biofilm peut être assimilée à la phase fluide environnante (pas de transport convectif dans le biofilm). Dans le cas où les dimensions des pores au sein du biofilm sont petites devant celles des pores du milieu poreux, un changement d'échelle supplémentaire peut être nécessaire. L'étude d'un tel cas dépasse le cadre du présent travail, mais a été considéré récemment par Aspa *et al.* (*sous presse*). Les bactéries sont aussi supposées présentes uniquement sous forme de biofilm (pas de bactérie mobile et donc pas de réaction dans la phase fluide).
- La cinétique de biodégradation est fortement simplifiée ; on ne tient pas compte en particulier des effets complexes qui peuvent être associés au métabolisme bactérien tels que les effets d'inhibition (*e.g.* Bielefelt et Stensel, 1999).

- Les interactions chimiques entre les solutés  $A$  et  $B$  et les autres espèces chimiques présentes en solution sont supposées négligeables.
- On suppose enfin qu'il n'y a pas d'interaction entre les solutés considérés et la phase solide du milieu poreux, bien que, dans un sol naturel les phénomènes d'adsorption et de désorption peuvent avoir un rôle déterminant dans la cinétique macroscopique de biodégradation d'un polluant (Sturmann *et al.*, 1995).

Notre étude se place aussi dans les conditions d'un milieu saturé, alors que dans le cas d'une biodégradation aérobie, la disponibilité maximale de l'oxygène est localisée dans la zone non-saturée où, par conséquent, le taux de biodégradation est maximal. Il ressort clairement de cette discussion de nos hypothèses de travail que nous nous attaquons à une version très simplifiée du problème de biodégradation d'un polluant organique dans un milieu poreux réel incluant un biofilm. Néanmoins, la mise en place des équations de transport macroscopiques pour un tel problème simplifié de biodégradation n'a à notre connaissance pas encore été effectuée, et elle constituerait un pas supplémentaire dans la compréhension et la maîtrise de phénomènes de biodégradation. C'est l'objectif de ce présent travail. Une dernière remarque enfin qui renvoie à l'hypothèse sur la séparation des temps caractéristiques des différents processus mis en jeu. L'écoulement, régi par la loi de Stokes (puisque'on est en milieu poreux saturé), est en régime stationnaire, du fait de son très faible temps de relaxation (*cf.* paragraphe 1.2.2.c). On fait enfin l'hypothèse, elle aussi déjà précédemment évoquée (*ibid.*), que le taux de croissance du biofilm est très lent par rapport à l'établissement du régime stationnaire de transport, afin, là encore, de pouvoir découpler les deux phénomènes dans le temps. Cette hypothèse est dans la plupart des cas valide (Skowlund, 1990). Plus de détails sur les modèles de croissance de biomasse en milieu poreux peuvent être trouvés dans Wanner *et al.* (2006) ou encore Shafahi et Vafai (2009). On peut donc considéré un découplage temporelle complet du transport et des autres phénomènes mécaniques (écoulement) et bio-mécanique (croissance). Par conséquent, seul le



problème de transport de soluté dans le cadre d'un écoulement saturé monophasique sans variation importante de masse volumique du fluide et dans un milieu de géométrie fixée est pris en considération. De ce fait, le champ de vitesse microscopique  $\mathbf{v}_\gamma$  et la géométrie du milieu sont des données du problème, les seules inconnues étant  $c_{A\gamma}$  et  $c_{A\omega}$ . On considère l'approximation d'un fluide incompressible, et des conditions de non-glissement aux interfaces fluides-biofilm et fluide-solide (vu l'hypothèse d'absence de transport convectif dans le biofilm qui a été formulée précédemment). Sous ses hypothèses, le changement d'échelle du problème de conservation de la quantité de mouvement de l'échelle du pore à l'échelle de Darcy conduit à la classique loi de Darcy (e.g. : Whitaker, 1986).

Sur la base des hypothèses présentées, le système d'équations décrivant le bilan de masse, de quantité du mouvement et de croissance de la biomasse (que nous détaillons ici par souci de lisibilité, bien que nous ne nous intéressons qu'au changement d'échelle des équations de transport) du soluté  $A$  à l'échelle du pore s'écrit de la manière suivante :

*Conservation de la quantité de mouvement*

$$-\nabla p_\gamma + \mu \nabla^2 \mathbf{v}_\gamma = -\rho_\gamma \mathbf{g} \quad (15)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{v}_\gamma = 0 \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (16)$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathbf{v}_\gamma = 0 \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (17)$$

*Conservation de la masse*

*Phase  $\omega$*

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) - \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} \quad (18)$$

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) \quad (19)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = 0 \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (20)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (21)$$

$$\text{C.L.3} \quad c_{A\omega} = K_{A,eq} c_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (22)$$

$$\text{C.L.4} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} \quad \text{sur } A_{\gamma\omega}, \quad (23)$$

*Croissance du biofilm (modèle heuristique élémentaire ne prenant en compte que la croissance de la biomasse et la mortalité des bactéries, inspiré de Baveye et Valocchi, 1989)*

$$\frac{\partial \varepsilon_\omega}{\partial t} = G_\omega - F_\omega \varepsilon_\omega \quad (24)$$

On rappelle que  $c_{A\gamma}$  et  $c_{A\omega}$  représentent les concentrations en soluté  $A$  dans les phases  $\gamma$  et  $\omega$ , respectivement, que  $\mathbf{v}_\gamma$  est le champ de vitesse du fluide et que  $A_{ij}$ , ( $i = \omega, \kappa, \gamma$ ;  $j = \omega, \kappa, \gamma$ ) désignent les interfaces entre les phases  $i$  et  $j$ , et  $\mathbf{n}_{ij}$ , ( $i = \omega, \kappa, \gamma$ ;  $j = \omega, \kappa, \gamma$ ) désignent les normales aux interfaces phase  $i$  - phase  $j$ , orientant la surface du domaine fluide vers l'extérieur.  $p_\gamma$  est le champ de pression dans la phase fluide,  $\mu$  est la viscosité dynamique de l'eau,  $\rho_\gamma$  est la masse volumique de l'eau et  $\mathbf{g}$  est l'accélération de la pesanteur. Enfin,  $G_\omega$  est le taux de croissance de la biomasse et  $F_\omega$  est le taux de mortalité des bactéries.

D'autre part,  $\mathcal{D}_{A\gamma}$  est le coefficient de diffusion du soluté  $A$  dans le fluide et  $\mathbf{D}_{A\omega}$  est le tenseur de diffusion effectif dans la phase biofilm (qu'on considère sphérique de terme courant  $\mathcal{D}_{A\omega}$  dans la suite afin de simplifier l'exposé - le cas où une telle hypothèse est invalide est étudié dans Aspa *et al.*, *sous presse*) ;  $K_{A,eq}$  est le coefficient de partition à l'équilibre entre les phases  $\gamma$  et  $\omega$  (*e.g.* : Mohseni et Allen, 2000);  $\mu_{A\omega}$  est le taux de dégradation du soluté  $A$  par la réaction de biodégradation ;  $\rho_\omega$  est la masse de bactérie par unité de volume du biofilm;  $K_{A\omega}$

et  $K_{B\omega}$  sont les constantes de demi-saturation pour les solutés A et B, respectivement ; et  $c_{B\omega}$  est la concentration en soluté B dans la phase  $\omega$ . Un système d'équations exactement analogue décrit le bilan de masse du soluté B. Ces deux systèmes d'équations sont couplés via les termes de cinétique de biodégradation de Monod double. Bien que la dérivation des équations de transport macroscopique couplées soit possible avec l'approche par changement d'échelle proposée ici, on considère principalement dans ce travail le cas où on est en large excès de soluté B, ce qui permet de découpler les deux systèmes d'équations. Nous reviendrons au cours du chapitre 8 sur le cas où une telle simplification ne peut être effectuée. Cette hypothèse nous permet de considérer que la concentration apparente en soluté B dans la phase biofilm, notée  $c_{B\omega}^*$  et définie ci dessous, est une constante à l'échelle du pore :

$$c_{B\omega}^* = \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} = \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\gamma}{\langle c_{B\omega} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \quad (25)$$

Nous pouvons alors écrire la forme découplée du bilan de masse pour le soluté A,

*Phase  $\omega$*

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) - \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \quad (26)$$

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) \quad (27)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = 0 \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (28)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (29)$$

$$\text{C.L.3} \quad c_{A\omega} = K_{A,eq} c_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (30)$$

$$\text{C.L.4} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (31)$$

sur lequel l'opérateur la prise de moyenne sera appliqué, afin d'arriver à un système d'équations ouvertes de bilan de masse à l'échelle de Darcy. La méthodologie à appliquer est celle décrite à la fin du paragraphe précédent ; le détail des calculs peut être trouvé dans l'Annexe A.1 de Golfier *et al.* (2009), consultable en annexe A de cette thèse. Le résultat de cette prise de moyenne conduit aux deux équations de transport suivantes :

*Équation de transport macroscopique ouverte dans la phase  $\omega$*

$$\begin{aligned}
\underbrace{\frac{\partial(\varepsilon_\omega \langle c_{A\omega} \rangle^\omega)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} &= \underbrace{\nabla \cdot \left[ \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \right]}_{\text{Diffusion}} \\
&+ \underbrace{\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA}_{\text{Flux interfacial}} \\
&- \underbrace{\varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}}}_{\text{Réaction}}
\end{aligned} \tag{32}$$

*Équation de transport macroscopique ouverte dans la phase  $\gamma$*

$$\begin{aligned}
\underbrace{\frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} &+ \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Convection}} = \\
\underbrace{\nabla \cdot \left[ \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\omega}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \right]}_{\text{Diffusion}} \\
&+ \underbrace{\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA}_{\text{Flux interfacial}} - \underbrace{\nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle}_{\text{Transport Dispersif}}
\end{aligned} \tag{33}$$

Rappelons que  $\tilde{c}_{A\gamma}$ ,  $\tilde{c}_{A\omega}$  et  $\tilde{\mathbf{v}}_\gamma$  sont les champs de déviation associés aux champs microscopiques  $c_{A\gamma}$ ,  $c_{A\omega}$  et  $\mathbf{v}_\gamma$  par la décomposition de Gray de ceux-ci. Les deux systèmes d'équations présentés ci-dessus, *i.e.* : le bilan de masse à l'échelle du pore (équations (26) à (31)) et le bilan de masse ouvert à l'échelle de Darcy (équations (32) et (33)), sont le point de départ des développements théoriques présentés dans les chapitres suivants.

En effet, à ce stade de l'analyse, plusieurs options sont possibles : la première est le développement d'un modèle de transport à deux équations à l'échelle de Darcy. Le processus de base de prise de moyenne volumique du modèle de transport à l'échelle du pore génère un modèle de transport avec une équation pour chacune des phases de transport : la phase fluide et la phase biofilm. Chacune des deux équations est couplée à l'autre via les flux de soluté interfaciaux. Ce modèle à deux équations (noté TEM, *Two Equation Model*) qui s'inscrit dans le contexte des modèles de non-équilibre de masse local est le plus général en terme de domaine de validité qui puisse être développé par la démarche de changement d'échelle adoptée. Néanmoins, comme on le verra dans le chapitre 7, l'usage de ce modèle nécessite le calcul de nombreux paramètres pour les équations de transport à l'échelle de Darcy, ce qui implique un degré de complexité élevé des simulations et de longs temps de calcul. Il est donc intéressant, autant que faire ce peut, de mettre en place des modèles simplifiés, ayant un domaine d'application plus restreint mais d'un usage moins lourd. Trois régimes spécifiques de transport permettent de mettre en place des modèles à une équation à l'échelle de Darcy ; le premier correspond à la situation d'équilibre local alors que les deux autres sont des cas limites de transport hors équilibre. Le modèle d'équilibre de masse local (modèle LEA) repose ainsi sur l'hypothèse de l'existence d'une condition d'équilibre entre les concentrations moyennes respectives des phases fluide et biofilm. Le modèle MTLC (*Mass Transfer Limited Consumption*) est basé sur l'hypothèse d'une consommation du substrat instantanée à l'interface fluide-biofilm. Enfin, le modèle dit RRLC (*Reaction Rate Limited Consumption*) suppose que la phase fluide est parfaitement mélangée et que la réaction est limitée par la cinétique, *i.e.* que l'interface biofilm-fluide est exposée à la concentration moyenne de soluté  $A$  dans la phase fluide. Ces deux derniers modèles sont particulièrement pertinents dans le sens où bien qu'ils soient établis pour des conditions de non-équilibre (*i.e.* : les conditions les plus générales de transport), ils se ramènent pourtant – au prix certes d'hypothèses

simplificatrices fortes – à une formulation mathématique constituée d’une seule équation. Les domaines de validités, en terme de conditions de transport, associées à chacun de ces modèles seront définis par deux nombres adimensionnels classiques en transport réactif, le nombre de Péclet (qui caractérise les conditions hydrodynamique de transport) et le nombre de Damköhler (qui caractérise les conditions biochimique de transport).

Les six prochains chapitres sont consacrés au développement et à l’étude des différents types de modèles de transport à l’échelle de Darcy. Le chapitre 3 a pour objet le modèle d’équilibre de masse local, le chapitre 4 le modèle MTLC et le chapitre 5 le modèle RRLC. Dans le chapitre 6, nous présentons, à titre d’illustration, un exemple d’application de ces modèles de transport à une équation. Le chapitre 7 aborde le développement du modèle à deux équations. Enfin, dans le chapitre 8, nous discutons de l’extension des quatre types de modèles précédemment présentés aux cas du transport couplé de deux espèces chimique A et B. Ceci clôt la partie théorique et numérique de cette thèse.

## **CHAPITRE 3 : MODÈLE D'ÉQUILIBRE DE MASSE LOCAL**

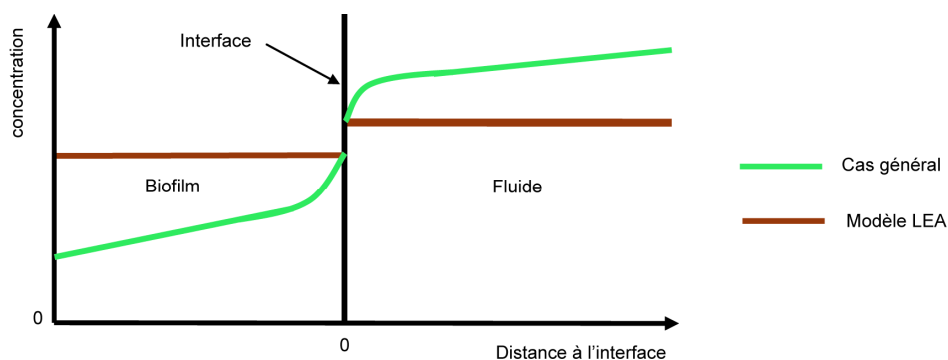
Nous ne présenterons qu'assez brièvement le modèle d'équilibre de masse local (LEA). En effet, le développement de ce modèle n'a pas été effectué à proprement parler au cours de cette thèse, seule l'étude des paramètres de l'équation de transport à l'échelle de Darcy associée à ce modèle a été menée dans ce travail. Nous ne présenterons donc ce modèle que par un souci de complétude du présent document. Plus de détails à propos de ce modèle peuvent être trouvés dans Golfier *et al.* (2009). Le lecteur peut également consulter Lasseux *et al.* (2004), où un modèle similaire dans l'esprit a été développé pour le transport dans les tissus osseux.

### 3.1 Développement théorique du modèle LEA

Le modèle LEA est basé sur l'hypothèse de l'existence d'un équilibre de masse local entre les phases fluide et biofilm, ou du moins d'une situation proche de cet équilibre. Cette hypothèse peut être formulée ainsi :

$$\langle c_{A\omega} \rangle^\omega \approx K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (34)$$

Sur la Figure 9, on peut voir le profil de concentration microscopique autour de l'interface biofilm-fluide typique d'un cas d'équilibre de masse local.



**Figure 9 : Profils de concentration microscopique autour de l'interface fluide-biofilm dans le cas de l'équilibre de masse local**



Il y a donc absence de gradient important de concentration à l'échelle microscopique quelle que soit la phase considérée. Dans ces conditions, on peut définir la concentration moyenne pondérée  $\{c_A\}$  comme suit

$$\{c_A\} = \frac{\varepsilon_\gamma}{\varepsilon_\gamma + K_{Aeq}\varepsilon_\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \frac{\varepsilon_\omega}{\varepsilon_\gamma + K_{Aeq}\varepsilon_\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (35)$$

de telle sorte que cette concentration moyenne pondérée possède la propriété suivante

$$\{c_A\} \approx \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \approx K_{Aeq}^{-1} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (36)$$

On peut alors additionner les deux équations macroscopiques ouvertes (équations (32) et (33)) pour arriver à un modèle de transport à une équation, gouvernant la concentration moyenne pondérée, et qui prend la forme :

*Equation macroscopique de transport (ouverte)*

$$\begin{aligned} \underbrace{\frac{\partial}{\partial t} \left( (\varepsilon_\gamma + K_{Aeq}\varepsilon_\omega) \{c_A\} \right)}_{\text{Accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \{c_A\})}_{\text{Convection}} = \\ \underbrace{\nabla \cdot [(\varepsilon_\gamma \mathbf{D}_{A\gamma} \mathbf{I} + K_{Aeq}\varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega}) \cdot \nabla \{c_A\}]}_{\text{Terme de diffusion classique}} + \underbrace{\nabla \cdot [\mathbf{f}_{A\omega} + \mathbf{f}_{A\gamma}]}_{\text{Dispersion hydrodynamique}} + \underbrace{\varepsilon_\omega \{R_{A\omega}\}}_{\text{Reaction}} \end{aligned} \quad (37)$$

Ici  $\mathbf{f}_{A\omega}$  et  $\mathbf{f}_{A\gamma}$  sont des grandeurs vectorielles définissant le flux associé à la dispersion hydrodynamique, et elles s'expriment :

$$\mathbf{f}_{A\gamma} = \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} \cdot \left( \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) - \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle \quad (38)$$

$$\mathbf{f}_{A\omega} = \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \quad (39)$$

et  $\{R_{A\omega}\}$  est la notation pour le taux de réaction moyenné :

$$\{R_{A\omega}\} = - \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{A,eq} \{c_A\}}{K_{A,eq} \{c_A\} + K_{A\omega}} \quad (40)$$

Pour obtenir une équation de transport macroscopique ne dépendant plus que des grandeurs macroscopiques, il suffit d'évaluer les grandeurs  $\mathbf{f}_{A\omega}$  et  $\mathbf{f}_{A\gamma}$ , qui, pour le moment, dépendent encore des champs de déviations microscopiques  $\tilde{c}_{A\gamma}$ ,  $\tilde{c}_{A\omega}$  et  $\tilde{\mathbf{v}}_\gamma$ . Pour cela, on établit le système d'équations gouvernant les déviations en soustrayant les équations macroscopiques ouvertes (équations (32) et (33)) aux équations de transport microscopiques (équations (26) à (31)). Ensuite, en suivant une démarche classique de fermeture, on suppose au vu des conditions aux limites du problème de déviations que :

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (41)$$

$$\tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{b}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (42)$$

Ce sont les hypothèses de fermeture, et les champs vectoriels  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  et  $\mathbf{b}_{A\omega}$  sont appelés champs de fermeture. Si on injecte ces hypothèses de fermeture dans l'équation macroscopique de transport ouverte du modèle LEA (équation (37)), on aboutit à une équation où n'interviennent que les grandeurs macroscopiques et les champs de fermeture. La connaissance de ceux-ci ferme donc le problème. Or l'injection des hypothèses de fermeture dans le problème gouvernant les champs de déviation conduit à un système d'équations explicitant ces champs de fermeture. En résolvant ce problème de fermeture sur une cellule unitaire représentative du milieu poreux considéré à l'échelle du pore, on arrive à paramétrer complètement le modèle LEA. On trouvera ci-dessous l'expression finale du modèle d'équilibre de masse local, ainsi que le problème de fermeture qui lui est associé :

*Forme fermée de l'équation de transport à l'échelle de Darcy associé au modèle LEA*

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\gamma + K_{A,eq} \varepsilon_\omega) \{c_A\} = & -\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \{c_A\}) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \{c_A\}) \\ & - \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{A,eq} \{c_A\}}{K_{A,eq} \{c_A\} + K_{A\omega}} \end{aligned} \quad (43)$$

où le seul paramètre dépendant des propriétés de l'échelle du pore est le tenseur de dispersion

effectif,  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$ , donné par :

$$\begin{aligned}
\mathbf{D}_{A,eff}^* &= (\boldsymbol{\varepsilon}_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} + K_{A,eq} \boldsymbol{\varepsilon}_\omega \mathbf{D}_{A\omega}) \\
&+ \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) \\
&+ K_{A,eq} \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega} dA \right) \Bigg] \\
&- (\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \rangle)
\end{aligned} \tag{44}$$

On calcule les champs  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  et  $\mathbf{b}_{A\omega}$  par résolution du problème suivant sur une cellule unitaire représentative des propriétés du milieu à l'échelle du pore. Cette cellule ne doit pas nécessairement rendre compte de la totalité des données géométriques disponibles à l'échelle microscopique (le gain en terme de temps de calcul par rapport à une modélisation directe à l'échelle microscopique serait alors nul voir négatif), mais plutôt être représentative de ces données du point de vue de leurs diverses propriétés statistiques (fraction volumique, longueurs de corrélations, tortuosité, ...).

*Problème de fermeture associé au modèle LEA (forme adimensionnée)*

*Phase  $\omega$*

$$0 = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega}) - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega}) dA - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega}) dA \tag{45}$$

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma + \mathbf{v}'_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} dA \tag{46}$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_\Gamma, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \tag{47}$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \tag{48}$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \tag{49}$$

$$\text{C.L.4} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega} = -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_\Gamma - \mathbf{I}), \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (50)$$

$$\text{C.L.5} \quad \mathbf{b}'_{A\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (51)$$

$$\text{C.L.6} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (52)$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (53)$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (54)$$

où  $A_{\omega e}$  et  $A_{\gamma e}$  représentent les surfaces d'entrée et de sortie des phases  $\omega$  et  $\gamma$  aux frontières de la cellule unitaire considérée. Les vecteurs  $\mathbf{l}_i$ , ( $i = 1, 2, 3$ ), sont les vecteurs de périodicité de la cellule unitaire selon les trois directions de l'espace (on considère que la cellule unitaire est un parallélépipède rectangle et que le repère est cartésien). On considère des conditions de périodicité aux limites de la cellule unitaire car en règle générale elles imposent des contraintes moins fortes sur les solutions du problème que, par exemple, des conditions de Dirichlet (*cf.* Golfier *et al.*, 2009). En outre, pour clore le problème de fermeture, chaque champ étant défini à une constante près, il faut introduire deux conditions supplémentaires (une sur chaque champ) afin de fixer les valeurs des solutions. On prend donc en compte des conditions de moyennes nulles par phase. Bien que le développement théorique de ce problème de fermeture ne soit pas le sujet de ce travail de thèse, il est intéressant de noter que le terme de réaction disparaît à ce stade dans les équations microscopiques (*cf.* équation. (45)) en raison des hypothèses associées au modèle d'équilibre local et d'une analyse des ordres de grandeur des différents termes de l'équation (Golfier *et al.*, 2009) Dans ces expressions, les expressions adimensionnées suivantes ont été utilisées :

$$\mathbf{b}'_{A\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega}}{l_\gamma} \quad (55)$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (56)$$

$$\mathbf{D}_\Gamma = \frac{K_{A,eq} \mathbf{D}_{A\omega}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (57)$$

$$Pe_A = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| l_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (58)$$

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{1/2} \quad (59)$$

$Pe_A$  est le nombre de Péclet de pore associé au phénomène de transport étudié.  $l_\gamma$  est la longueur caractéristique utilisée pour l'adimensionnement, généralement la longueur caractéristique associée à la phase fluide. Pour plus de détails sur ce développement, le lecteur est invité à se référer à Golfier *et al.* (2009). Y sont présentés notamment les validations analytiques et numériques du modèle, les contraintes sur la vitesse d'écoulement et le taux de réaction associés à l'hypothèse d'équilibre de masse local, une étude de l'impact des propriétés du milieu poreux à l'échelle microscopique sur le tenseur de diffusion effectif, et l'établissement du domaine de validité du modèle en fonction des conditions de transport. Dans la suite de cette partie consacrée au modèle LEA, on se limite à la présentation du calcul des tenseurs de diffusion effectifs pour une géométrie de pore réaliste et à celle du domaine de validité du modèle, auxquelles le début de ce travail de thèse a été consacré.

### 3.2 Tenseur de dispersion effectif pour une géométrie de pore réaliste

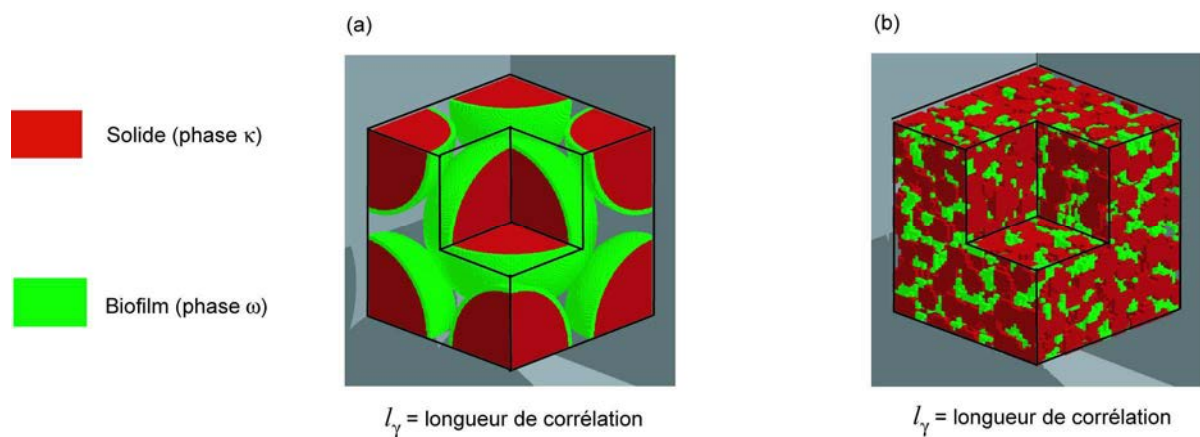
Le problème de fermeture associé au modèle LEA est résolu à l'aide d'un code de calcul numérique. Ce code permet d'évaluer les coefficients du tenseur de dispersion effectif à l'échelle de Darcy à partir des données physico-chimiques et géométriques de l'échelle du pore. Ces données sont synthétisées par une cellule unitaire représentative de la structure du milieu à l'échelle microscopique, sur laquelle est résolu le problème de fermeture. Cette

cellule unitaire est représentée par une grille cartésienne uniforme dans laquelle on assigne une nature - fluide, biofilm ou solide - à chaque nœud.

La procédure numérique utilisée pour la résolution de ce problème de fermeture a déjà été décrite dans la littérature (*e.g.*, : Quintard et Whitaker, 1994). On utilise un schéma de discrétisation aux volumes finis, avec un maillage régulier de maille cubique. Le champ des vitesses, gouverné par l'équation de Stokes, est calculé préalablement à la résolution selon une méthode classique, par l'utilisation d'un algorithme d'Uzawa (Glowinski, 1984). La partie convective des équations de fermeture est discrétisée selon un schéma amont du premier ordre avec antidiffusion (Rasetarinera, 1995), et la partie dispersive est discrétisée par un schéma implicite centré du premier ordre (Quintard, 1993). Les difficultés posées par les termes intégral-différentiels ont été surmontées par l'utilisation d'une méthode de décomposition des variables (Quintard et Whitaker, 1994). Les systèmes linéaires obtenus sont en général résolus par un solveur de type Gradient Bi-Conjugué Stabilisé. Le critère de convergence retenu pour le calcul de l'écoulement est la norme L2 de la divergence du champ de vitesse ; pour la résolution du problème de fermeture c'est la norme L2 du résidu. L'ordre de grandeur théorique de l'erreur d'un schéma de discrétisation du premier ordre étant égal au carré de la taille de maille, la valeur de la précision retenue pour les calculs numériques est égale au carré de la taille de maille divisé par 100, afin de limiter au maximum les erreurs d'origine purement numérique. Les contraintes de moyenne nulle par phases ont été implémentées directement dans le solveur, ce qui pose parfois des problèmes de convergence, en particulier lors de la résolution de problèmes de fermeture associés à des problèmes de transports caractérisés par des grands nombres de Péclet. L'utilisation d'un solveur de type SOR (*Successive Over Relaxation*) permet de limiter partiellement ce problème, mais cela conduit à une augmentation importante des temps de calculs. Cette faiblesse du code de calcul

ne pose néanmoins pas de difficulté majeure, étant donné que le modèle LEA n'est valide qu'à faible nombre de Péclet (*cf* paragraphe 3.1.3).

On présente ici le calcul du tenseur de dispersion effectif pour deux géométries différentes, afin d'étudier l'impact de la morphologie du biofilm et de la complexité de la géométrie du milieu sur la dispersion. La Figure 10 présente les différentes cellules unitaires considérées pour cette comparaison.



**Figure 10 : Cellules unitaires tridimensionnelles considérées pour l'étude de l'impact de la géométrie poreuse sur le tenseur de dispersion effectif dans le cadre du modèle LEA (a) Géométrie simplifiée en quinconce ; (b) géométrie réaliste.**

La cellule unitaire (b) représente un milieu tridimensionnel réaliste : la phase solide a été obtenue par tomographie d'un milieu poreux réel constitué de billes de verre de 250 micromètres de diamètre (Majors *et al.*, 2005), et la phase biofilm a été simulée par l'usage d'un programme de développement de biofilm par automate cellulaire (Picioreanu *et al.*, 1998). La cellule unitaire (a) est une représentation simplifiée du même milieu poreux, équivalente à la cellule unitaire (b) du point de vue de la taille des billes et des fractions volumiques de chaque phase ( $\varepsilon_\omega = 0.11$  ;  $\varepsilon_\gamma = 0.31$ ). Notons que sur la Figure 10 les cellules unitaires ne sont pas représentées à l'échelle (les billes ont le même diamètre dans chacune des configurations). On utilise une grille cartésienne de 400\*400\*400 mailles pour discrétiser

cette géométrie, afin d'obtenir des résultats indépendant du maillage. En effet ne étude de convergence, préalablement effectuée, a montré qu'un tel raffinement du maillage était suffisant. Le tenseur de diffusion du substrat  $A$  dans le biofilm est sphérique de terme courant égal à la moitié du coefficient de diffusion du substrat  $A$  dans l'eau. La longueur caractéristique  $l_\gamma$  est la longueur de corrélation  $l_{xx}$  associée à la géométrie de la cellule dans la direction principale de l'écoulement (cette direction étant choisie arbitrairement). Cette longueur de corrélation est définie par :

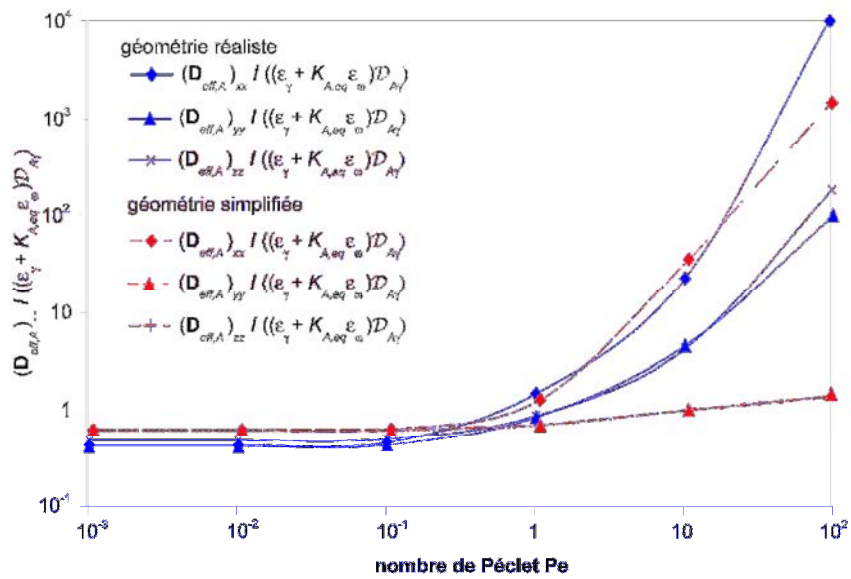
$$l_{xx} = \int_{\lambda=0}^{\lambda=\infty} C_{xx}(x, x+\lambda) d\lambda \quad (60)$$

où  $C_{xx}$  est la fonction de covariance (supposée stationnaire spatialement)) de l'indicatrice de phase de la phase  $\gamma$ ,  $\chi_\gamma(\mathbf{r})$ , définie par

$$\chi_\gamma(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & \text{si } \mathbf{r} \text{ appartient à la phase } \gamma \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (61)$$

La Figure 11 présente l'évolution des composantes longitudinales et transversales du tenseur de dispersion effectif dans chacune des deux configurations en fonction du nombre de Péclet de pore défini par rapport à cette longueur de corrélation. Le but de cette comparaison est de déterminer si une cellule unitaire simplifiée par rapport au milieu réel mais contenant des informations intégrées telles que les fractions volumiques ou la longueur de corrélation de la phase fluide permet d'obtenir une approximation satisfaisante des propriétés dispersives d'un milieu complexe.





**Figure 11 : Dispersion effectives longitudinales et transversales en fonction du nombre de Peclet de pore pour la géométrie tridimensionnelle réaliste et pour la géométrie tridimensionnelle simplifiée.**

Quelques remarques peuvent être formulées à partir de l'analyse de cette figure. Premièrement, on constate qu'à faible nombre de Peclet, le régime de dispersion est gouverné par la diffusion (indépendante du nombre de Peclet), alors qu'à fort nombre de Peclet on retrouve la forme classique d'une dispersion convective ayant une dépendance en loi puissance par rapport au nombre de Peclet. En régime diffusif, un écart de 31% pour la dispersion longitudinale peut être constaté entre les deux configurations étudiées. Cela suggère que la seule donnée des fractions volumiques et de la longueur de corrélation de la phase fluide à l'échelle microscopique ne suffit pas à définir de manière précise la dispersion effective. La forme des interfaces, l'épaisseur locale du biofilm, ... jouent aussi un rôle important dans les propriétés diffusive du milieu à l'échelle de Darcy. De même en régime convectif, on obtient des valeurs de dispersions sensiblement différentes entre les deux configurations. Néanmoins, en ce qui concerne la dispersion longitudinale, on obtient le même comportement général et des ordres de grandeur identiques au moins jusqu'à un nombre de Peclet de 100. Des différences plus accusées sont constatées entre les dispersions

transversales de chaque configuration. En effet, comme attendu, le milieu réaliste, étant plus désordonné donc plus isotrope, présente de moins grands écarts entre dispersions transversales et longitudinales que le milieu simplifié (Souto et Moyne, 1997). Ainsi les rapports entre dispersion longitudinale et transversale pour un nombre de Péclet égal à 100 sont d'environ 6 en configuration réaliste et 30 en configuration simplifié. On aboutit ainsi à mettre en évidence un comportement quasi-monodimensionnel dans le cas de la configuration simplifiée. Cette comparaison permet de mettre en lumière l'importance des propriétés microscopiques du milieu poreux incluant un biofilm sur ses caractéristiques dispersives à l'échelle macroscopique.

### 3.3 Domaine de validité du modèle d'équilibre de masse local

Le domaine de validité du modèle d'équilibre local a été identifié en fonction des deux nombres adimensionnels caractérisant le régime de transport bioréactif, le nombre de Péclet de pore  $Pe_A$  et le nombre de Damköhler de pore  $Da_A$ . Celui-ci est défini de la manière suivante :

$$Da_A = \frac{\mu_{A\omega} \rho_{\omega} l_{\omega}^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (62)$$

où  $l_{\omega}$  est une longueur caractéristique de la phase biofilm. Le nombre de Péclet représente le ratio des effets convectifs sur les effets diffusifs, tandis que le nombre de Damköhler de pore représente le ratio des effets réactifs sur les effets diffusifs. Pour simplifier, si tous les autres paramètres du système sont supposés constants, plus la vitesse du fluide est élevée, plus le nombre de Péclet est élevé et plus le taux de réaction est élevé, plus le nombre de Damköhler est élevé.

Afin d'établir le domaine de validité du modèle LEA dans l'espace nombre de Péclet - nombre de Damköhler, on compare les résultats de simulations de transport réactif effectuées par le modèle LEA sur un milieu poreux saturé bidimensionnel constitué d'inclusions solides cylindriques colonisées par un biofilm d'épaisseur uniforme avec les simulations de transport réactif équivalentes réalisées directement à l'échelle du pore. On procède donc par expérimentation numérique, en comparant quantitativement les résultats de simulations par le modèle LEA et par modélisation directement à l'échelle du pore. Le milieu poreux considéré à l'échelle microscopique est présenté sur la Figure 12. Il correspond à dix cellules unitaires nodulaires de dimension  $l_\gamma \times l_\gamma$ . Sur cette figure sont aussi représentés le milieu macroscopique équivalent utilisé dans le cadre du modèle LEA, et les conditions aux limites associées au problème de transport considéré.

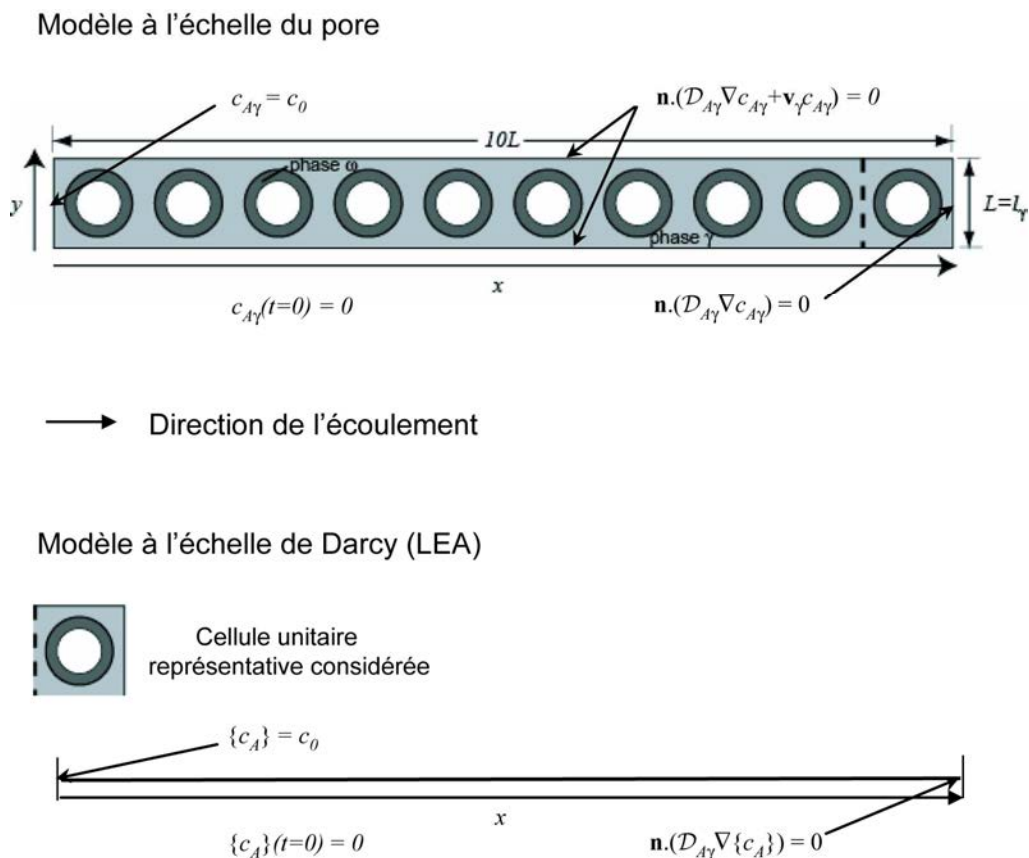


Figure 12 : Géométrie du milieu poreux et conditions aux limites/initiales considérées pour l'établissement du domaine de validité du modèle LEA ( $\varepsilon_x = 0.28$ ,  $\varepsilon_\omega = 0.22$ ,  $\varepsilon_\gamma = 0.5$ ).

A l'échelle du pore, le processus physique est transitoire et bidimensionnel alors qu'à l'échelle de Darcy, il est transitoire et monodimensionnel. On considère un très large excès de l'espèce B, qui conduit à avoir  $c_{B\omega}^* \approx 1$ . On suppose aussi qu'il n'y a pas de saut de concentration entre la phase fluide et la phase biofilm, *i.e.*  $K_{A,eq} = 1$ . Enfin, on a considéré que  $l_\omega = l_\gamma = L$ , afin de pouvoir effectuer les simulations directes et les simulations par changement d'échelle dans un même repère adimensionné (et obtenir ainsi des résultats directement comparable). Le champ de vitesses dans la simulation directe a été préalablement calculé en résolvant les équations de Stokes sur le domaine. On peut alors mettre le système d'équations du problème de transport à l'échelle du pore (équations (26) à (31)) sous la forme adimensionnelle suivante :

*Phase  $\omega$*

$$\frac{\partial c'_{A\omega}}{\partial t'} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla c'_{A\omega}) - Da_A \frac{c'_{A\omega}}{1 + \frac{c'_{A\omega}}{K'_{A\omega}}} \quad (63)$$

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{\partial c'_{A\gamma}}{\partial t'} + Pe_A \mathbf{v}'_\gamma \cdot \nabla c'_{A\gamma} = \nabla^2 c'_{A\gamma} \quad (64)$$

Avec

$$\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla c'_{A\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (65)$$

$$\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla c'_{A\gamma} = 0 \text{ sur } A_{\gamma\kappa} \quad (66)$$

$$c'_{A\gamma} = c'_{A\omega} \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (67)$$

$$\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla c'_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla c'_{A\gamma} \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (68)$$

$$c'_{A\gamma} = c'_{A\omega} = 1 \text{ en } x' = 0 \quad (69)$$

$$\mathbf{n}_y \cdot (\nabla c'_{A\gamma} + Pe_A \mathbf{v}'_\gamma c'_{A\gamma}) = 0 \text{ en } y' = 0; 1 \quad (70)$$

$$\mathbf{n}_x \cdot \nabla c'_{Ay} = \mathbf{n}_x \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla c'_{A\omega} = 0 \text{ en } x' = 10 \quad (71)$$

$$c'_{A\omega} = c'_{Ay} = 0 \text{ à } t' = 0 \quad (72)$$

Où

$$c'_{A\omega} = \frac{c_{A\omega}}{c_0} ; c'_{Ay} = \frac{c_{Ay}}{c_0} ; K'_{A\omega} = \frac{K_{A\omega}}{c_0} ; t' = \frac{t \mathcal{D}_{Ay}}{L^2} ; x' = \frac{x}{L} ; y' = \frac{y}{L} \quad (73)$$

Le système d'équation régissant le transport à l'échelle de Darcy peut quant à lui se mettre sous la forme adimensionnée suivante :

$$(\varepsilon_\gamma + \varepsilon_\omega) \frac{\partial \{c_A\}'}{\partial t'} + \varepsilon_\gamma Pe_A \frac{\partial \{c_A\}'}{\partial x'} = (\mathbf{D}_{A,eff}^*)_{xx} \frac{\partial^2 \{c_A\}'}{\partial x'^2} - \varepsilon_\omega Da_A \frac{\{c_A\}'}{\{c_A\}' + K'_{A\omega}} \quad (74)$$

Avec

$$\{c_A\}' = 1 \text{ en } x' = 0 \quad (75)$$

$$(\mathbf{D}_{A,eff}^*)_{xx} \frac{\partial^2 \{c_A\}'}{\partial x'^2} = 0 \text{ en } x' = 10 \quad (76)$$

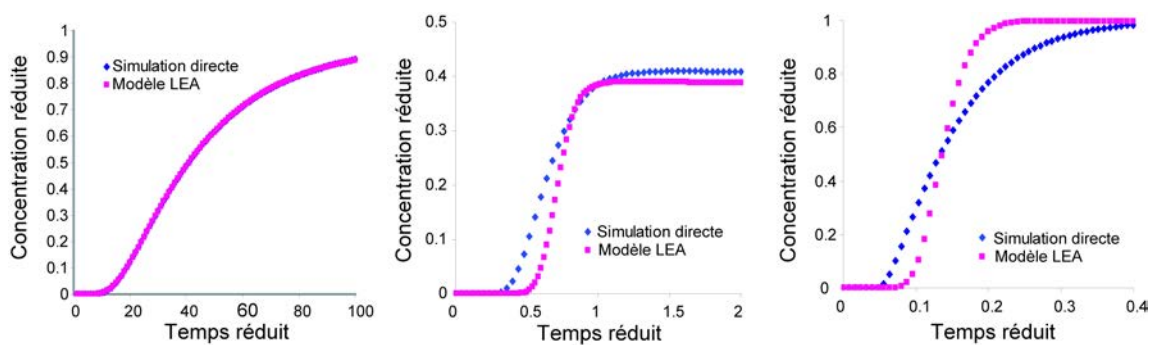
$$\{c_A\}' = 0 \text{ à } t' = 0 \quad (77)$$

Où

$$\{c_A\}' = \frac{\{c_A\}}{c_0} ; \mathbf{D}_{A,eff}^* = \frac{\mathbf{D}_{A,eff}}{\mathcal{D}_{Ay}} \quad (78)$$

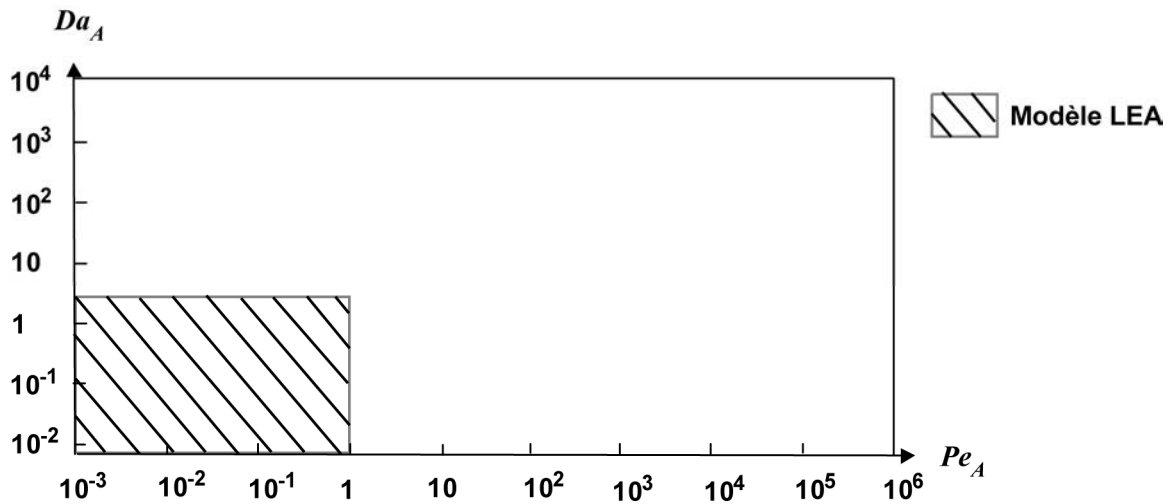
$\mathbf{D}_\Gamma$  est considéré comme sphérique, de terme courant fixé à 0.25 et  $K'_{A\omega}$  est fixé à 0.5. Sous ces hypothèses, le nombre de Péclet et le nombre de Damköhler sont les seuls paramètres gouvernant le transport et la biodégradation du soluté A dans le système. On effectue les simulations de transport direct et par changement d'échelle sous le code commercial de calcul aux éléments finis COMSOL Multiphysics 3.3 pour différents couples de valeurs  $(Pe_A ; Da_A)$ . On compare ensuite les courbes de percées adimensionnées obtenues par chaque méthode en calculant les moments d'ordre 0, 1 et 2 des distributions dérivées (e.g.

Buès et Zilliox, 1990). Le critère de validité du modèle LEA a été arbitrairement fixé à une différence relative inférieure à 1,5% entre les moments des distributions obtenues par le modèle LEA et les moments de celles données par les simulations directes (la référence étant la simulation directe). On peut voir sur la Figure 13 trois exemples de comparaisons qualitatives entre les courbes de percées obtenues par chacun des modèles, dans les cas  $Pe_A = 10^{-1} - Da_A = 10^{-2}$ ,  $Pe_A = 10 - Da_A = 10$  et  $Pe_A = 50 - Da_A = 10^{-1}$ .



**Figure 13 : Comparaison qualitative entre modèle LEA et modèle microscopique, (a)  $Pe_A = 10^{-1} - Da_A = 10^{-2}$ , (b)  $Pe_A = 10 - Da_A = 10$ , (c)  $Pe_A = 50 - Da_A = 10^{-1}$ .**

Ces résultats suggèrent que le modèle LEA est valide pour  $Pe_A < 1$  et  $Da_A < 1$ . Un diagramme présentant une représentation schématique de la topologie du domaine de validité du modèle LEA est présentés en Figure 14. Plus de détails sur les expériences numériques menées pour obtenir ce diagramme peuvent être consultés dans Golfier *et al.* (2009). On peut remarquer que si la topologie globale des domaines de validité obtenues par de telles expériences numériques est généralisable, il n'en va pas de même des valeurs des seuils et des pentes des limites de ces domaines de validité, qui dépendent évidemment de la configuration géométrique considérée.



**Figure 14 : Domaine de validité du modèle LEA dans un diagramme nombre de Damköhler - nombre de Péclet.**

On peut constater que les résultats de cette série d'expériences numériques sont en accord avec les contraintes de validité de l'hypothèse d'équilibre de masse local établies dans Golfier *et al.* (2009) (à savoir  $Pe_A < 1$  et  $Da_A < 1$ ). On peut noter que pour  $Pe_A > 1$  et  $Da_A < 1$ , même si on est hors des conditions d'équilibre de masse local, le modèle LEA donne un comportement correct des moments d'ordre zéro et d'ordre un des courbes de percées. Dans ces cas, l'utilisation du modèle d'équilibre de masse peut être pertinente selon le degré de précision nécessaire à l'application considérée. Le domaine de validité du modèle LEA correspond par exemple aux phénomènes de bioremédiation de polluants organiques en formations argileuses à sablo-argileuses, situations où les vitesses d'écoulement et les taux de réactions sont relativement faibles.





## **CHAPITRE 4 : MODÈLE DE BIODÉGRADATION LIMITÉE PAR LA CINÉTIQUE DE RÉACTION**



Dans le cas où la concentration de substrat dans la phase fluide est supposée homogène à l'échelle microscopique, il n'y a pas de limitation du taux de réaction effectif par le transfert de masse externe, c'est-à-dire depuis le fluide vers le biofilm. Le taux de réaction effectif n'est plus alors contrôlé que par le taux de réaction microscopique et le flux diffusif au sein de la phase biofilm. Dans ce cas particulier, un modèle de transport hors équilibre à une équation peut être développé : le modèle RRLC (Reaction Rate Limited Consumption).

#### 4.1 Développement théorique du modèle RRLC

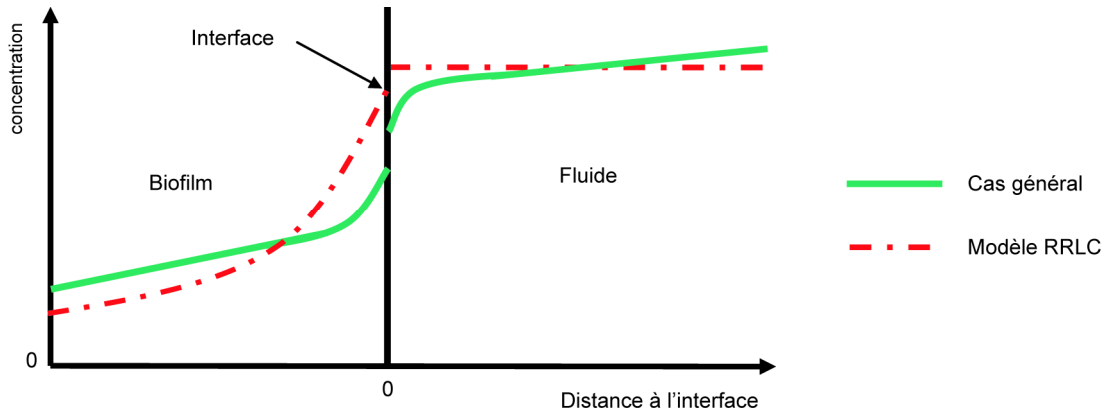
L'hypothèse d'une phase fluide homogène (en terme de concentration) à l'échelle microscopique peut être exprimée de la manière suivante :

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \gg \tilde{c}_{A\gamma} \quad (79)$$

Cette relation nous permet de réécrire la condition aux limites (30) du problème microscopique sous la forme :

$$K_{A,eq} c_{A\omega} \simeq \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{at } A_{\gamma\omega} \quad (80)$$

Le profil schématique de concentration autour de l'interface biofilm-fluide associée aux hypothèses du modèle RRLC est présenté en Figure 15. On voit que dans ce cas de figure la formation de gradients de concentration à l'échelle microscopique est limitée à la phase biofilm. Le taux de réaction effectif ne dépend donc que des caractéristiques géométriques et biochimiques du biofilm et de la concentration moyenne dans la phase fluide.



**Figure 15 : Profils de concentration microscopique autour de l'interface fluide-biofilm dans le cas de la biodégradation limitée par la cinétique de réaction**

En ingénierie chimique de très nombreux cas de ce type ont été étudiés, et l'approche couramment adoptée pour estimer le taux de réaction effectif (généralement difficile à mesurer) est l'évaluation d'un facteur d'efficacité qui le relie à la concentration moyenne de la phase fluide (voir par exemple une introduction générale à l'ingénierie chimique dans Fogler, 1999). Ce type de modèle a été exploré de manière approfondie dans de nombreux travaux (e.g., : Atkinson et Davies, 1974, Taylor et Jaffe, 1990, Kim *et al.*, 2004), et il correspond au cas du faible gradient de transfert de masse selon la terminologie de Rittman et McCarty (1981). Dans notre cas de figure, cela revient à chercher un réel positif  $\eta_A$  compris entre 0 et 1 tel que :

$$\varepsilon_{\omega} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + K_{A\omega}} = \eta_A \varepsilon_{\omega} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + K_{A\omega}} \quad (81)$$

En ingénierie chimique, l'évaluation de ce facteur d'efficacité repose sur des démarches heuristiques. Nous proposons dans le développement suivant une approche qui prend en compte les propriétés géométriques et biochimiques du biofilm dans l'évaluation de  $\eta_A$  par la résolution d'un problème à l'échelle microscopique sur une cellule unitaire représentative du milieu poreux. Afin de découpler les deux problèmes, on adopte l'approximation de quasi-stationnarité du problème microscopique, ce qui revient à dire que le temps caractéristique des

variations de concentrations à l'échelle microscopique est très petit par rapport à celui des variations de concentrations à l'échelle macroscopique. Cette hypothèse est la plupart du temps satisfaite si la contrainte de séparation des échelles est respectée.

#### 4.1.1 Fermeture partielle de l'équation de transport macroscopique

La forme ouverte de l'équation de transport macroscopique pour la phase fluide présentée en fin de chapitre 2 (équation (33)) constitue le point de départ de notre développement. Nous établissons l'équation gouvernant le champ de déviation en concentration dans la phase fluide  $\tilde{c}_{A\gamma}$  classiquement, par soustraction de l'équation de transport macroscopique ouverte (équation (33)) à l'équation de transport microscopique (équation (19)). Nous montrons ainsi (Annexe B), en tenant compte de la nouvelle forme de la condition aux limites (équation (80)), que le système d'équations gouvernant le champ  $\tilde{c}_{A\gamma}$  (et par là même, implicitement, la dispersion au sein de la phase fluide) dans le cas du modèle RRLC est de la forme :

$$\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma w}} \mathbf{n}_{\gamma w} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA \quad (82)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \underbrace{\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (83)$$

$$\text{C.L.2} \quad \tilde{c}_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma w} \quad (84)$$

Où, le terme source du champ  $\tilde{c}_{A\gamma}$  est le gradient macroscopique  $\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ . Ce problème est en fait équivalent au problème de dispersion réactive décrit par Quintard et Whitaker (1994) dans le cas d'un équilibre de masse local (*i.e.*, dans le cas où la concentration est supposée instantanément consommée à la paroi). Etant donnée la structure du problème et la forme du terme source, nous exprimons le champ de déviation  $\tilde{c}_{A\gamma}$  par l'hypothèse de fermeture suivante

:

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (85)$$

où  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  est un champ vectoriel dit champ de fermeture défini sur la phase  $\gamma$ . En introduisant l'hypothèse de fermeture (équation (85)) dans le problème en déviation (équations (82) à (84)), on obtient un problème de fermeture explicitant le champ  $\mathbf{b}_{A\gamma}$ . La résolution de ce problème de fermeture sur une cellule unitaire représentative du milieu poreux permet donc d'établir les propriétés effectives du milieu. Il faut noter aussi que dans l'équation macroscopique ouverte (équation (33)), le champ de déviation  $\tilde{c}_{A\gamma}$  apparaît seulement dans les termes intégraux. Ceci implique une faible sensibilité des propriétés effectives du milieu aux conditions aux limites du problème de fermeture tant que le volume de prise de moyenne  $\mathcal{V}$  est suffisamment grand pour qu'il contienne un nombre élevé de longueurs caractéristiques microscopiques ( $l_\omega$  et  $l_\gamma$ ) (cf. Ochoa-Tapia *et al.*, 1994). Par conséquent, toute solution locale pour  $\tilde{c}_{A\gamma}$  qui fournit des valeurs acceptables pour les intégrales surfaciques peut être utilisée pour calculer les propriétés effectives du milieu.

Considérons des conditions de périodicité aux limites de la cellule unitaire car elles imposent en général des contraintes moins fortes sur les solutions que, par exemple, des conditions de Dirichlet. (cf. Golfier *et al.*, 2009). En outre, pour résoudre le problème de fermeture, qui est défini à une constante près, il est nécessaire d'introduire une condition qui fixe la valeur de cette constante. Pour cela, une contrainte de moyenne nulle par phase peut être formulée. On peut maintenant écrire le problème de fermeture partielle, défini sur une cellule unitaire représentative du milieu, et donné sous forme adimensionnelle :

*Problème de fermeture RRLC (forme adimensionnelle)*

$$\text{Pe}(\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma + \mathbf{v}'_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} dA \quad (86)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (87)$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega}(t) \quad (88)$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = \mathbf{b}'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (89)$$

$$\text{C.L.4} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (90)$$

où  $A_{\gamma e}$  représentent les surfaces d'entrées et de sorties de la phase  $\gamma$  aux limites de la cellule unitaire. Dans ces expressions, les variables et paramètres adimensionnels suivants ont été utilisés :

$$\mathbf{b}'_{A\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma}}{l_\gamma} \quad (91)$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (92)$$

$$Pe = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| l_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (93)$$

avec la notation :

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (94)$$

Et en injectant l'hypothèse de fermeture (équation (85)) dans l'équation macroscopique ouverte (équation (33)) nous obtenons l'équation de transport macroscopique partiellement fermée suivante :

*Equation de transport macroscopique partiellement fermée*

$$\underbrace{\frac{\partial (\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Convection}} = + \underbrace{\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Dispersion}} \quad (95)$$

$$+ \underbrace{\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA}_{\text{Flux Interfacial}}$$

Où le tenseur de dispersion effectif pour le soluté A,  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$ , est donné par

$$\mathbf{D}_{A,eff}^* = \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} + \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \rangle \quad (96)$$

On parle ici d'équations de transport macroscopiques partiellement fermée car le champ de concentration microscopique apparaît encore dans le terme de flux interfacial. Pour clore complètement le modèle RRLC, il faut exprimer ce terme en fonction des grandeurs macroscopiques.

#### 4.1.2 Calcul du flux interfacial

Considérons maintenant les flux diffusifs de soluté A à travers l'interface fluide-biofilm définis dans l'équation macroscopique partiellement fermée (équation (95)). Etant donnée la condition aux limites du problème microscopique (29), ce flux interfacial peut être réécrit de la manière suivante :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA \quad (97)$$

Puis, en tenant compte de la condition aux limites (31), on peut exprimer cette quantité sous la forme :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \quad (98)$$

Comme le taux de réaction est supposé faible comparé au transfert de masse externe, nous pouvons négliger les gradients de concentration dans la phase fluide. On peut donc découpler les deux équations de transport à l'échelle du pore (équations (26) et (27)) et exprimer le problème gouvernant  $c_{A\omega}$  sous la forme :

*Equation de transport de la phase  $\gamma$*



$$c_{A\gamma} = \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (99)$$

Equation de transport de la phase  $\omega$

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) - \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \quad (100)$$

$$\text{C.L.1} \quad c_{A\omega} = K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (101)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = 0 \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (102)$$

À ce stade, introduisons l'hypothèse que le champ de concentration microscopique  $c_{A\omega}$  se met quasi-instantanément à l'équilibre avec le champ de concentration macroscopique  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ , *i.e.* : que le temps caractéristique de variation du champ  $c_{A\omega}$  est très petit comparé à celui du champ  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ , ce qui est généralement le cas lorsque la contrainte de séparation des échelles est respectée. On suppose ainsi que le problème précédent peut être considéré comme quasi-stationnaire, et le champ  $c_{A\omega}$  peut alors être directement exprimé comme une fonction de la concentration moyenne intrinsèque dans la phase fluide et d'un champ scalaire  $S_{A\omega}$  stationnaire défini dans la phase  $\omega$ , *i.e.* :

$$c_{A\omega} = K_{A,eq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (103)$$

Nous pouvons maintenant réécrire le flux interfacial sous la forme :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA = \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla S_{A\omega}) dA \quad (104)$$

ce qui mène finalement à (voir Annexe C) :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA = \eta_A \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \quad (105)$$

où le facteur d'efficacité  $\eta_A$  est défini comme suit :

$$\eta_A = \frac{(K_{eff,A} + 1)}{c_{B\omega}^* \mathcal{E}_\omega Da_A K_{eff,A}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{A\omega} dA \quad (106)$$

Le facteur d'efficacité, utilisé couramment en génie chimique, (*e.g.* : Bischoff, 1965; Fink *et al.*, 1973), est compris entre 0 et 1 car il représente le ratio entre le taux de réaction effectif observé et le taux de réaction effectif maximal, *i.e.* : le taux de réaction observé si la totalité du volume du biofilm était exposée à la concentration moyenne intrinsèque du fluide. Dans ces expressions, les grandeurs adimensionnées suivantes sont utilisées :

$$Da_A = \frac{\ell_\omega^2 \mu_{A\omega} \rho_\omega}{K_{A\omega} \mathcal{D}_{A\omega}} \quad (107)$$

$$K_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma K_{A,eq}} \quad (108)$$

On rappelle que  $\ell_\omega$  est une longueur caractéristique de la phase biofilm et que  $Da_A$  est le nombre de Damköhler associé à la réaction de biodégradation du soluté A. Classiquement, le facteur d'efficacité est exprimé dans la littérature (Blanch et Clark, 1996) comme une fonction du nombre de Damköhler.

Toutefois, comme la cinétique de réaction considérée dans notre problème est hyperbolique, un nombre adimensionnel supplémentaire apparaît. Il s'agit de la demi-saturation effective  $K_{eff,A}$ . Si  $K_{eff,A}$  tend vers l'infini (pour une très faible concentration macroscopique par exemple), la cinétique de réaction apparente est une cinétique du premier ordre, tandis que si  $K_{eff,A}$  est proche de zéro (*e.g.* : dans le cas d'une concentration macroscopique très élevée), la cinétique apparente de la réaction est d'ordre 0. Il est important de noter que  $K_{eff,A}$  dépend de la variable macroscopique  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ . Ceci introduit un couplage entre le calcul du facteur d'efficacité et la résolution du problème de transport macroscopique.

Afin de calculer le champ scalaire  $S_{A\omega}$ , nous injectons l'équation (103) dans le

problème de calcul du champ  $c_{A\omega}$  dans le cas du modèle RRLC (équations (99) à (102)), en tenant compte de l'hypothèse de stationnarité du champ  $S_{A\omega}$ . On obtient ainsi le problème microscopique adimensionné suivant, qui détermine le champ  $S_{A\omega}$ ,

*Problème microscopique de détermination du facteur d'efficacité  $\eta_A$*

$$\nabla^2 S_{A\omega} = c_{B\omega}^* Da_A \frac{S_{A\omega}}{1 + \frac{S_{A\omega}}{K_{eff,A}}} \quad (109)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla S_{A\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (110)$$

$$\text{C.L.2} \quad S_{A\omega} = 1 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (111)$$

En résolvant ce problème sur la phase  $\omega$  de la cellule unitaire représentative de la microstructure du milieu (utilisée également pour le calcul du champ de fermeture  $\mathbf{b}_{A\gamma}$ , cf. paragraphe 4.1.1), il est possible d'évaluer le facteur d'efficacité  $\eta_A$ , et donc le terme de flux interfacial de l'équation macroscopique partiellement fermée (équation (95)). Il est important de garder à l'esprit que le calcul du facteur d'efficacité est couplé à l'équation de transport macroscopique. Une tabulation de  $\eta_A$  en fonction des valeurs possibles  $K_{eff,A}$  peut permettre de surmonter ce problème.

Notons que cette approche se situe dans le même esprit que celle présentée dans Rao *et al.* (1980) pour le transport d'un soluté passif en milieu poreux bimodal. Ils ont développé une solution transitoire dans le cas simplifié suivant : le transport dans les inclusions (milieu poreux moins perméables que la matrice poreuse environnante) est contrôlé uniquement par la diffusion, les gradients spatiaux de concentrations sont négligeables dans la phase fluide et les inclusions sont de forme sphérique (ou cylindrique) de perméabilité uniforme et non réactives. Avec ces hypothèses, le problème de fermeture obtenu est similaire dans sa formulation à celui obtenu pour le calcul du facteur d'efficacité.

Chacune de ces deux approches peuvent être considérés comme appartenant à la classe des modèles dits mixtes (Bibby, 1981; Golfier *et al.*, 2007a). Le principe de tels modèles, pour un système à deux phases, est de décrire le transport par une équation macroscopique pour la phase connectée, couplé avec un modèle à plus petite échelle pour les inclusions (dans notre cas, la couche de biofilm adhérente aux grains). On peut aussi remarquer que l'expression du tenseur de dispersion effectif dans le cadre du modèle RRLC est aussi typique d'un modèle mixte (*cf.* équations (57) à (62) du problème de fermeture en transport passif dans Golfier *et al.*, 2007a).

#### 4.1.3. Equation de transport macroscopique fermé du modèle RRLC

En conclusion, l'équation fermée de transport macroscopique du modèle RRLC s'écrit sous la forme:

$$\underbrace{\frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Convection}} = \underbrace{\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Dispersion}} - \underbrace{\eta_A \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}}}_{\text{Flux Interfacial}} \quad (112)$$

où le tenseur de dispersion effectif pour le soluté A,  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$ , est donné par :

$$\mathbf{D}_{A,eff}^* = \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} + \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \rangle \quad (113)$$

Tandis que le facteur d'efficacité de la réaction de biodégradation du soluté A est exprimé de la manière suivante :

$$\eta_A = \frac{(K_{eff,A} + 1)}{c_{B\omega}^* \varepsilon_\omega K_{eff,A} Da_A} \int_{A_{\gamma\omega}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{A\omega} dA \quad (114)$$

## 4.2 Calculs des paramètres effectifs de l'équation de transport macroscopique du modèle RRLC

Nous considérons dans ce paragraphe, sauf mention contraire, des milieux bidimensionnels constitués d'inclusions solides cylindriques colonisées par un biofilm d'épaisseur uniforme. La topologie de ce type de milieu et les longueurs microscopiques caractéristiques associées  $l_\gamma$  et  $l_\omega$  sont présentées en Figure 16.

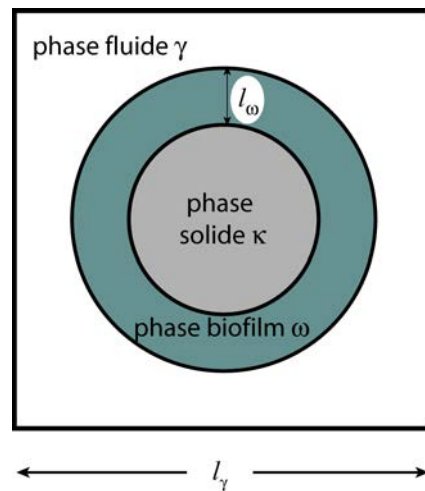


Figure 16 : Exemple de cellule unitaire bidimensionnelle.

Nous utilisons une grille cartésienne de  $250 \times 250$  mailles pour discrétiser ce type de cellule unitaire, afin d'obtenir des résultats indépendants du maillage. En effet, une étude de convergence préalable a montré qu'un tel raffinement du maillage était suffisant. On présente, dans la suite de ce paragraphe, divers calculs de coefficients effectifs associés à l'équation macroscopique du modèle RRLC pour de telles cellules unitaires, afin de mener une étude de sensibilité des paramètres macroscopiques aux propriétés microscopiques du milieu.

#### 4.2.1 Tenseur de dispersion effectif du modèle RRLC

Pour la résolution du problème de fermeture, nous utilisons une méthode numérique semblable à celle mise en oeuvre dans le cadre du modèle d'équilibre de masse local. Deux différences sont à souligner :

- Premièrement, comme le problème n'est résolu que dans la phase fluide, la méthode de décomposition des variables utilisée (Quintard et Whitaker, 1994) permet de prendre directement en compte la condition de moyenne nulle dans la phase fluide, et il n'est donc pas nécessaire de l'implémenter directement dans le solveur. Cela améliore notablement la robustesse du calcul à grands nombres de Péclet.
- Deuxièmement, une condition de Dirichlet est imposée à l'interface fluide-biofilm (*cf* équation (88)). Afin de prendre en compte cette condition, la stratégie adoptée revient à pénaliser la matrice du système de manière à ce que le champ de fermeture prenne la valeur de la condition aux limites sur toute la phase biofilm. Nous utilisons un schéma décentré vers la phase fluide de discrétisation du terme diffusif au niveau de l'interface biofilm-fluide.

La Figure 17 présente l'évolution des composantes longitudinale et transversale du tenseur de dispersion effectif en fonction du nombre de Péclet de pore  $Pe_A$  pour une cellule unitaire du type de celle présentée en Figure 16. Les résultats obtenus dans le cadre du modèle RRLC sont comparés avec ceux obtenus dans le cadre du modèle LEA par Golfier *et al.* (2009) en dispersion passive (*i.e.* :  $\mathcal{D}_T = 0.001$  - il n'y a pas de diffusion dans la phase biofilm, qui est considérée comme une phase passive, *i.e.* : similaire à une phase solide du point de vue du transfert de masse). Par conséquent, dans les deux cas, la dispersion n'intervient que dans la phase fluide. La différence principale entre ces deux calculs est que l'impact de la réaction de biodégradation sur la dispersion est négligé dans le cas du modèle LEA tandis qu'elle

intervient à travers l'écriture de la condition limite aux frontières fluide-biofilm dans le modèle RRLC.

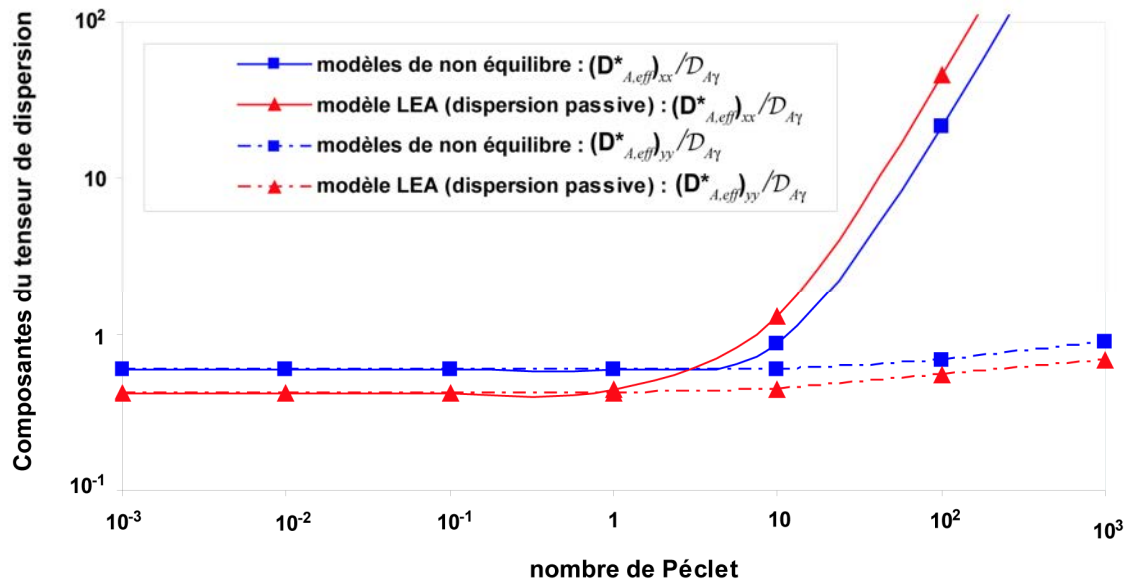


Figure 17 : Composantes du tenseur de dispersion en fonction du nombre de Péclet prédit par le modèle LEA dans le cas de la dispersion passive et par le modèle RRLC pour une géométrie de pore circulaire ( $\varepsilon_\gamma = 0.59$  et  $\varepsilon_\omega = 0.11$ .)

Les résultats obtenus mettent en évidence un régime diffusif à faibles nombres de Péclet, suivi d'un régime dispersif. Les gradients de concentration dans la phase fluide sont augmentés par la réaction au sein de la phase biofilm. En régime diffusif, la diffusion apparente aussi bien pour les directions longitudinale que transversale est donc légèrement plus importante dans le cas des conditions de non équilibre de type RRLC. Au contraire, dans le régime dispersif, vu le réseau cubique d'inclusions considéré, la dispersion longitudinale est dominée par les effets convectifs tandis que la dispersion transversale reste principalement contrôlée par la diffusion. Sous l'effet de la réaction, le transport de soluté dans la direction principale d'écoulement est ralenti (effet retard classique en transport réactif dominé par la convection), tandis que les gradients de concentrations selon la direction perpendiculaire à l'écoulement sont augmentés. Par conséquent, la composante transversale de la dispersion reste plus importante dans le

modèle RRLC que dans le modèle LEA, alors que la dispersion longitudinale devient plus faible que celle observée en situation d'équilibre. Encore une fois (*cf.* Figure 11), il y a un tel écart entre les dispersions longitudinale et transversale à fort nombre de Péclet (avec un ratio supérieur à 1000 pour un nombre de Péclet égal à 1000 dans les deux cas examinés) que nous sommes en droit de parler de comportement quasi monodimensionnel sur cette plage.

#### 4.2.2 Calcul du facteur d'efficacité associé à la réaction

Comme souligné précédemment, le concept de facteur d'efficacité d'une réaction est largement utilisé en génie chimique. Classiquement, l'influence du transfert de masse interne au biofilm - qui dépend de ses propriétés géométriques et biochimiques - est exprimée par un nombre adimensionnel appelé module de Thiele (*e.g.* Fogler, 1999). Ce nombre adimensionnel est analogue au nombre de Damköhler  $Da_A$  défini précédemment, qui détermine la valeur du facteur d'efficacité. Le transfert de masse externe - qui dépend du régime hydrodynamique du transport dans la phase fluide (caractérisé par le nombre de Péclet  $Pe_A$ ) et de l'organisation spatiale du milieu poreux - peut aussi avoir un impact sur la valeur du facteur d'efficacité (Edwards *et al.*, 1993; Wood *et al.*, 2007). Cependant, dans le cas présent, une telle dépendance ne peut être considérée puisque l'hypothèse de départ du modèle RRLC est de négliger la limitation de la réaction par le transfert de masse externe. Nous commencerons par présenter une validation analytique du calcul du facteur d'efficacité dans un cas simplifié, puis nous analyserons la sensibilité du facteur d'efficacité à différentes caractéristiques du biofilm (paramètres biochimiques, fraction volumique en particulier). Pour la résolution numérique du problème aboutissant au facteur d'efficacité, nous utilisons un schéma de discrétisation similaire à celui utilisé pour le calcul du tenseur de dispersion. En effet on a encore une condition de Dirichlet à l'interface biofilm-fluide. On décentre ici la



discrétisation du terme diffusif à l'interface biofilm fluide vers la phase biofilm, puisque c'est la phase de résolution. En outre, nous n'avons pas besoin d'utiliser de méthode de décomposition des variables puisque aucun terme intégral n'apparaît dans les équations. Le système obtenu est finalement linéarisé à l'aide d'une méthode de Picard afin de résoudre la non linéarité engendrée par la forme du terme de réaction. Les systèmes linéaires ainsi générés sont résolus par un solveur de type Gradient Bi-Conjugué Stabilisé. Enfin, le champ de solution n'étant pas défini à une constante près, on n'a pas besoin de contrainte de moyenne nulle par phase.

#### a) Cas limite d'une cinétique d'ordre 1 pour une configuration monodimensionnelle

En premier lieu, nous présentons dans ce paragraphe une validation de la méthode de calcul du facteur d'efficacité utilisée. Cette validation repose sur la comparaison des résultats de cette méthode pour une configuration monodimensionnelle en prenant en compte une cinétique réactionnelle d'ordre 1 avec la solution analytique qui peut être développée dans ce cas très simple.

La Figure 18 illustre cette représentation simplifiée d'un milieu poreux colonisé par un biofilm, couramment adopté dans la littérature (*e.g.* : Kindred et Celia, 1989) pour l'analyse des cas d'équilibre. Le milieu poreux est divisé en une phase fluide supposée parfaitement mélangée et une phase biofilm dans laquelle des gradients de concentration peuvent apparaître dus aux phénomènes de diffusion et de réaction. Contrairement aux théories du film stagnant ou de la couche limite (*e.g.* : Jennings *et al.*, 1976, Baveye et Valocchi, 1989), on ne considère aucune couche limite avec résistance diffusives au transport. Afin d'être capable de développer une solution analytique, la cinétique de réaction pour la biodégradation du soluté dans le biofilm est linéarisée et supposée du premier ordre (hypothèse valable si  $c_{A\omega} \ll K_{A\omega}$ ).

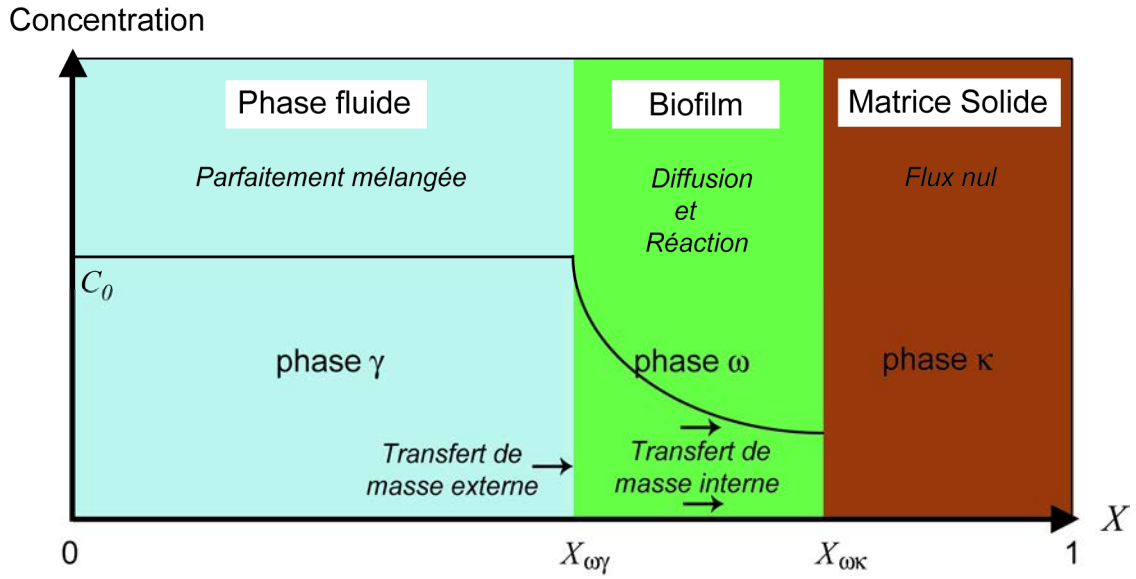


Figure 18 : Modèle conceptuel à l'échelle du pore d'un milieu poreux colonisé par un biofilm

Le problème de transport à l'échelle du pore s'écrit donc :

*Phase fluide  $\gamma$*

$$c_{A\gamma} = \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (115)$$

*Phase biofilm  $\omega$*

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \mathcal{D}_{A\omega} \frac{\partial^2 c_{A\omega}}{\partial x^2} - k_{A\omega} c_{A\omega} \quad (116)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathcal{D}_{A\omega} \frac{\partial c_{A\omega}}{\partial x} = 0 \quad \text{en } X_{\omega\kappa}, \quad (117)$$

$$\text{C.L.2} \quad c_{A\omega} = c_{A\gamma} = \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{en } X_{\omega\gamma} \quad (118)$$

où  $k_{A\omega}$  est le taux de réaction du premier ordre de la biodégradation du soluté A. Un rapide calcul conduit à l'expression analytique du facteur d'efficacité dans cette configuration :

$$\eta_{analytic} = \frac{1}{\sqrt{Da_1} (X_{\omega\kappa} - X_{\omega\gamma})} \frac{\sinh(\sqrt{Da_1} X_{\omega\kappa} (1 - \frac{X_{\omega\gamma}}{X_{\omega\kappa}}))}{\cosh(\sqrt{Da_1} X_{\omega\kappa} (1 - \frac{X_{\omega\gamma}}{X_{\omega\kappa}}))} \quad (119)$$

où le nombre de Damköhler noté  $Da_1$  est défini par :

$$Da_1 = \frac{k_{A\omega} l_\omega^2}{\mathcal{D}_{A\omega}} \quad (120)$$

où  $l_\omega$  est pris égal à la longueur totale de la cellule représentant le milieu, *i.e.* :  $l_\omega = 1$ . Ce résultat analytique, classique en génie chimique, est comparé avec les valeurs du facteur d'efficacité données par le modèle RRLC (modifié pour prendre en compte une cinétique d'ordre 1). Ces résultats sont présentés en fonction des valeurs du nombre de Damköhler en Figure 19. Un très bon accord est obtenu entre les solutions analytiques et numériques, avec une erreur relative absolue inférieure à 1%.

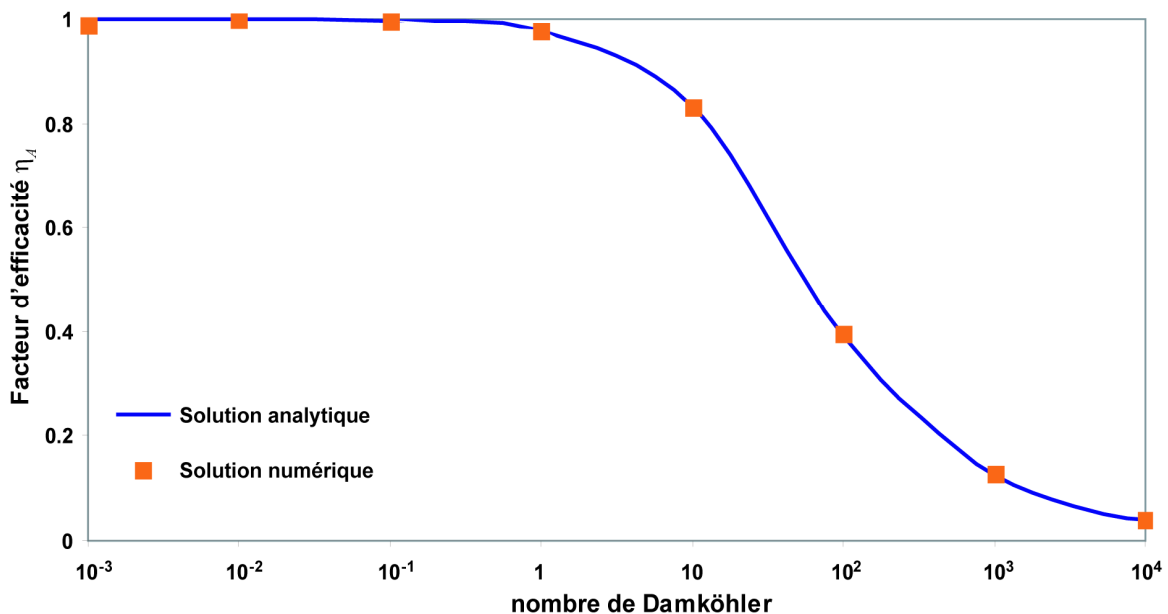


Figure 19 : Comparaison entre calcul numérique et analytique dans le cas d'une cinétique d'ordre 1.

#### b) Impact du nombre de Damköhler et de la demi-saturation effective

Revenons maintenant à l'étude du modèle RRLC avec une cinétique réactionnelle plus réaliste de type Monod. Nous considérons toujours le même milieu poreux bidimensionnel (Figure 16, avec  $\varepsilon_\gamma = 0.59$  et  $\varepsilon_\omega = 0.11$ ). Comme la cinétique de réaction est hyperbolique, deux nombres adimensionnels sont requis pour caractériser l'influence de la limitation

diffusive sur le facteur d'efficacité, le nombre de Damköhler  $Da_A$  et la constante de demi-saturation  $K_{eff,A}$ . L'évolution du facteur d'efficacité dans la configuration considérée en fonction de  $Da_A$  et de  $K_{eff,A}$  est présentée en Figure 20 pour cette géométrie.

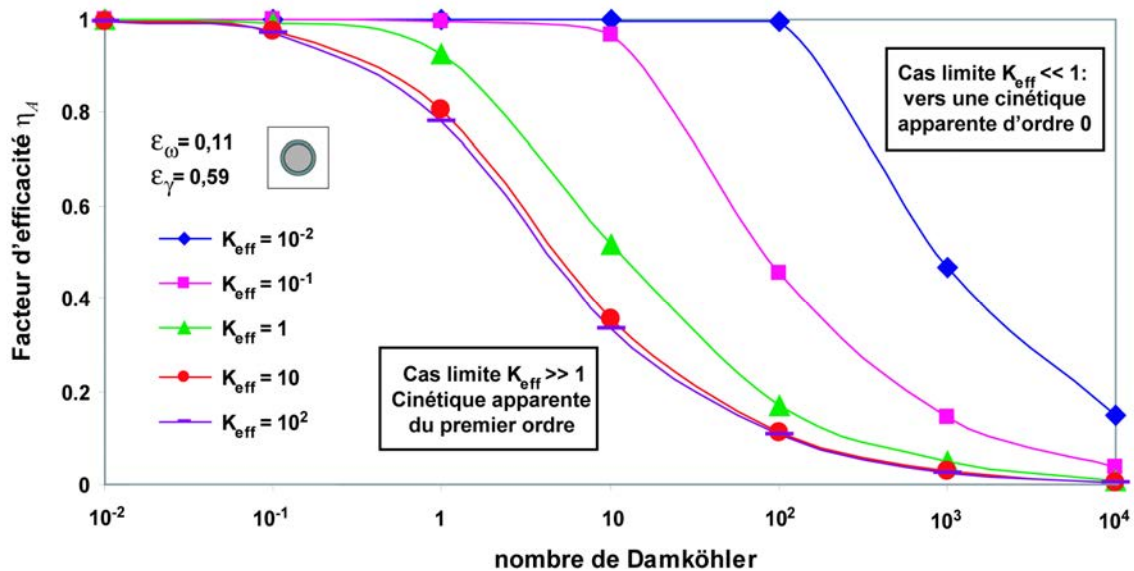


Figure 20 : Influence du nombre de Damköhler et de la demi-saturation effectif sur le facteur d'efficacité pour une géométrie circulaire avec  $\varepsilon_\gamma = 0.59$  et  $\varepsilon_\omega = 0.11$ .

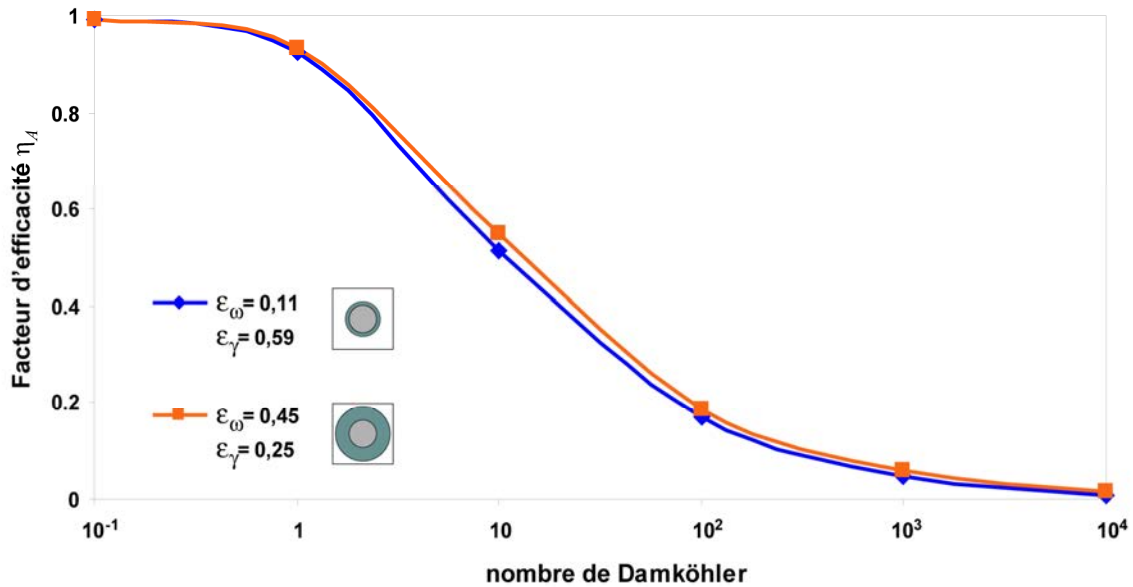
Premièrement, on peut noter que, par définition, les valeurs du facteur d'efficacité sont comprises dans l'intervalle  $[0, 1]$ . Le facteur d'efficacité est à la fois une fonction décroissante de  $Da_A$  et de  $K_{eff,A}$ .

Un grand nombre de Damköhler implique une importante limitation de la réaction par le transfert diffusif au sein du biofilm, et par conséquent un fort gradient de concentration dans la phase biofilm. Le facteur d'efficacité tend alors vers 0. Au contraire, le facteur d'efficacité se rapproche de 1 quand le nombre de Damköhler décroît vers 0, car le taux de réaction devient petit devant le flux diffusif et nous n'avons donc que de très faibles gradients de concentration dans la phase biofilm.

La valeur de  $K_{eff,A}$  contrôle la non linéarité de la réaction : pour  $K_{eff,A}$  tendant vers 0, la cinétique apparente est d'ordre 0, et pour  $K_{eff,A}$  tendant vers l'infini, la cinétique apparente est d'ordre 1. Quand la cinétique apparente de la réaction tend vers une cinétique d'ordre 1, le facteur d'efficacité ne dépend plus de la concentration en substrat. Par conséquent, les courbes de facteur d'efficacité en fonction du nombre de Damköhler se superposent sur une courbe limite au-delà d'une certaine valeur de  $K_{eff,A}$ , qui dépend des propriétés géométriques du milieu considéré (ici, cette valeur limite de  $K_{eff,A}$  est environ égale à 10). Au contraire, quand la cinétique de réaction apparente tend vers une cinétique d'ordre 0, *i.e.* : si la concentration intrinsèque de la phase fluide  $\langle c_{Ay} \rangle^\gamma$  est suffisamment grande, certaines régions du biofilm peuvent ne pas être atteintes par le soluté. En d'autres termes,  $\eta_A$  devient une fonction croissante de  $\langle c_{Ay} \rangle^\gamma$ , et donc une fonction décroissante de  $K_{eff,A}$ , puisque  $K_{eff,A}$  est inversement proportionnel à  $\langle c_{Ay} \rangle^\gamma$ .

### c) Impact de la fraction volumique de biofilm

Dans cette section, deux milieux poreux différents sont considérés. Tous deux sont bidimensionnels avec une géométrie cylindrique similaire à celle présentée sur la Figure 16, mais différent par leur fraction volumique de biofilm : 0.11 dans un cas et 0.45 dans l'autre. Nous avons représenté sur la Figure 21 la variation du facteur d'efficacité en fonction du  $Da_A$  dans chaque cas, avec  $K_{eff,A}$  fixé à 1.



**Figure 21 : Influence de la fraction volumique de biofilm sur le facteur d'efficacité en fonction du nombre de Damköhler pour une géométrie circulaire avec  $K_{eff,A} = 1$ .**

La représentation étant faite sous forme adimensionnelle, nous observons une évolution similaire de  $\eta_A$  en fonction du  $Da_A$  pour les deux configurations. En effet, comme la longueur caractéristique  $l_\omega$  considérée pour l'adimensionnement est égale à l'épaisseur du biofilm et donc différente dans chaque configuration, une même valeur de  $Da_A$  signifie que les temps caractéristiques de diffusion sont différents pour chaque configuration. Par conséquent, on voit bien que pour un taux de diffusion donné au sein du biofilm, un biofilm plus épais implique un facteur d'efficacité plus bas. Cependant, il est assez surprenant que les deux évolutions soient similaires à ce point, étant donnée la forte différence de fraction volumique entre les deux configurations. Il est probable que cette invariance est due au caractère isotrope des configurations retenues (inclusions circulaires)<sup>2</sup>.

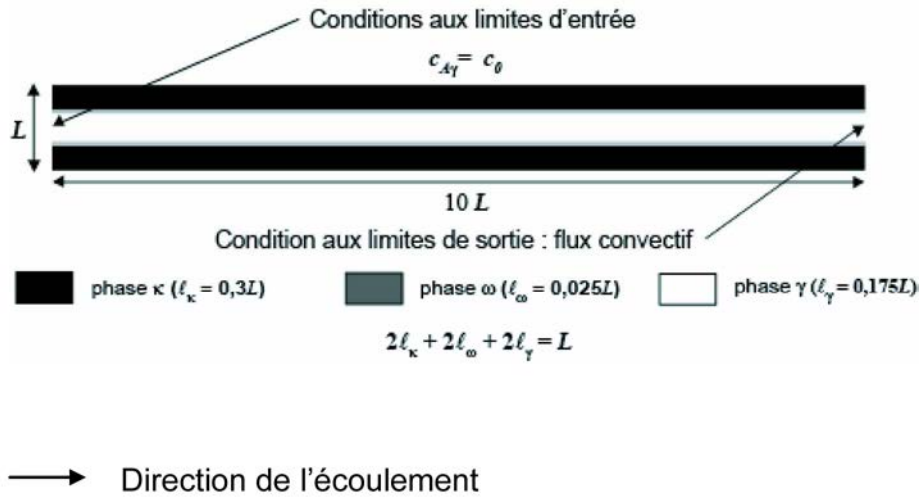
### 4.3. Domaine de validité du modèle RRLC

Nous établissons dans ce paragraphe le domaine de validité du modèle RRLC en terme de conditions hydrodynamique et biochimique de transport (*i.e.* dans un plan nombre de Péclet - nombre de Damköhler), selon une démarche analogue à celle adoptée pour l'établissement du domaine de validité du modèle LEA. Dans ce but, nous comparons les résultats de simulations directes effectuées à l'échelle du pore (sous COMSOL Multiphysics) pour un milieu poreux simple avec les résultats obtenus par des simulations équivalentes effectuées par changement d'échelle. Dans le cas de l'établissement du domaine de validité du modèle RRLC, nous avons opté pour une géométrie 2D stratifiée afin de tester le modèle. En effet, en conditions trop extrêmes (en particulier  $Da_A$  trop élevé), le milieu nodulaire (utilisé dans l'analyse du modèle LEA) est d'emploi malaisé car la consommation du substrat dans le milieu est trop rapide. Néanmoins le problème microscopique considéré est le même, avec les mêmes conditions initiales et aux limites. La géométrie considérée est présentée sur la Figure 22. Sur cette figure sont aussi représentés le milieu macroscopique équivalent (milieu poreux homogène 1D) utilisé dans le cadre du modèle RRLC et les conditions aux limites associées au problème de transport considéré. En ce qui concerne les paramètres du problème microscopique, les mêmes hypothèses que pour l'établissement du domaine de validité du modèle LEA sont utilisées. On arrive donc à une expression identique du problème de transport microscopique adimensionné (voir équations (63) à (72)).

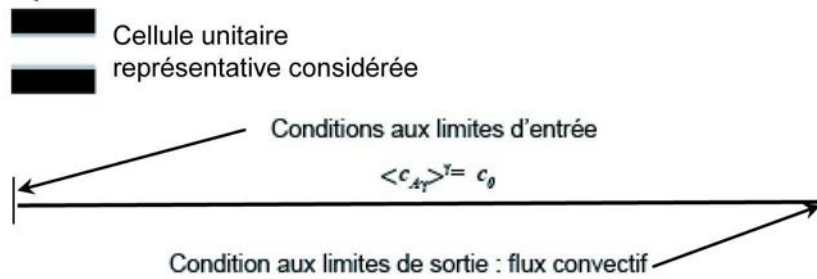
---

<sup>2</sup> Les simulations réalisées pour des géométries de grain rectangulaire (non montrées ici), par exemple, ne présentent pas une superposition aussi exacte.

### Modèle à l'échelle du pore



### Modèle à l'échelle de Darcy



**Figure 22 : Illustration de la géométrie et des conditions aux limites du système stratifié utilisé pour l'établissement du domaine de validité du modèle**

Le problème de transport macroscopique adimensionné associé au modèle RRLC peut être écrit sous la forme suivante :

$$\varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial t'} + \varepsilon_\gamma Pe_A \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} = (\mathbf{D}_{A,eff}^*)_{xx} \frac{\partial^2 \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'^2} - \eta_A \varepsilon_\omega Da_A' \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} + K_{A\omega}} \quad (121)$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = 1 \text{ en } x' = 0 \quad (122)$$

$$(\mathbf{D}_{A,eff}^*)_{xx} \frac{\partial^2 \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'^2} = 0 \text{ en } x' = 10 \quad (123)$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = 0 \text{ à } t' = 0 \quad (124)$$

Où



$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}{c_0} \quad (125)$$

$$Da_A' = \frac{\mu_{A\omega} \rho_{\omega} l_{\gamma}^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (126)$$

Afin de pouvoir comparer les domaines de validité obtenus pour le modèle LEA et RRLC, il est important de noter la différence entre l'adimensionnement spatial choisi ici et celui considéré pour le modèle d'équilibre local ( $l_{\gamma} = L$  dans le cas du modèle LEA et  $l_{\gamma} = 0,175L$  pour le modèle RRLC).

Un problème s'est toutefois posé au cours de cette analyse : pour des taux de réaction trop élevé (c'est-à-dire pour de trop fort  $Da_A'$ ), le substrat est totalement consommé durant son transport dans le milieu et on ne peut donc pas comparer les courbes de percées. Pour contourner ce problème, nous avons décidé, lorsque les conditions hydrodynamiques l'exigeaient, de ne plus comparer les courbes de percées, mais plutôt les profils longitudinaux de concentrations obtenus en régime stationnaire. Néanmoins cette solution conduit à d'autres difficultés comme :

- La zone de concentration non nulle doit être plus longue que la longueur d'établissement du régime asymptotique de transport pour que les comparaisons entre simulations directe et moyennée soient pertinentes. Dans le cas contraire, le problème est non-homogénéisable. Ce comportement non-homogénéisable se rencontre principalement à faible nombre de Péclet et fort nombre de Damköhler (*cf.* chapitre 5).
- Dans le même ordre d'idée, la longueur d'établissement du régime de transport asymptotique, qui est une fonction croissante du nombre de Péclet, doit être plus courte que la longueur totale du milieu (fixée en général à  $10L$ , *cf.* Figure 22). Pour les nombres de Péclet supérieurs à 1000, un milieu poreux de longueur  $30L$  a donc dû être utilisé.
- Enfin, une comparaison restreinte aux régimes stationnaires conduit à ne prendre en compte

que le comportement asymptotique du modèle, alors qu'une évaluation effectuée en condition transitoire aurait pu donner des résultats différents. En particulier, l'hypothèse de quasi-stationnarité du problème d'évaluation du facteur d'efficacité ne peut pas être testée par une comparaison en régime stationnaire. Il est d'ailleurs probable qu'à grand nombre de Péclet, cette hypothèse de stationnarité soit mise en défaut (*cf.* paragraphe 7.3). Le modèle ne serait alors précis que pour les situations de régime établi.

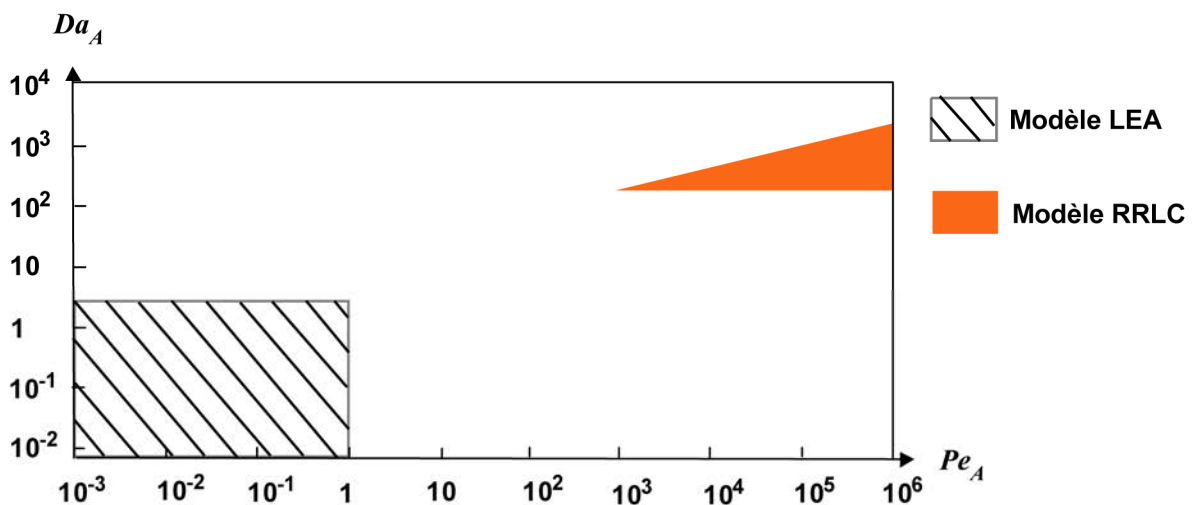
Malgré tous ces désavantages, les conditions de transport extrêmes qui ont été rencontrées dans cette étude du domaine de validité ne nous ont pas permis d'éviter d'avoir parfois recours à ces comparaisons en régime permanent.

Cette étude comparative montre que pour satisfaire les hypothèses du modèle RRLC, un grand nombre de Damköhler et un nombre de Péclet encore plus élevé sont requis. En effet, le modèle RRLC n'est pertinent que si des gradients de concentrations existent dans la phase fluide (un modèle RRLC avec un facteur d'efficacité égal à 1 est équivalent à un modèle LEA avec deux hypothèses restrictives supplémentaires : quasi-stationnarité du transport dans le biofilm, dispersion forcée dans la phase fluide). D'autre part, l'hypothèse de base du modèle RRLC est l'homogénéité de la phase fluide, qui ne peut être assurée, pour un grand nombre de Damköhler, que par un nombre de Péclet encore plus grand.

Cependant, il faut noter que pour des nombres de Péclet supérieur à une valeur d'environ  $10^3$ , les effets inertiels devraient être pris en compte dans le calcul des champs des vitesses (le nombre de Reynolds dans ce cas peut être égal ou supérieur à 1). Cette simplification (utilisation de l'équation de Stokes pour les calculs d'écoulement) conduit probablement à sous-estimer le domaine de validité du modèle RRLC, puisque les effets inertiels iront dans le sens du mélange de la phase fluide.

Le domaine de validité du modèle RRLC est présenté sur la Figure 23, où l'on a également fait figurer, pour mémoire, le domaine de validité du modèle LEA. La comparaison quantitative

entre les courbes de percées ou les profils établis par simulations directes et simulations par changement d'échelle est effectué là encore en comparant les moments d'ordres 0, 1 et 2 de chacune des distributions associées (distributions dérivées pour les courbes de percées, distributions directes pour les profils de concentration). Le critère de validité retenu est un écart relatif absolu inférieur à 10% pour les moments d'ordre 0 et d'ordre 1, et un écart relatif absolu inférieur à 25% pour le moment d'ordre 2 (la référence étant la simulation directe). Ces critères de validité sont sensiblement plus tolérants que ceux utilisés pour le modèle LEA. En effet, dans les conditions de transport extrêmes où le modèle RRLC est supposé valide, l'ensemble des autres modèles testés présente des écarts encore bien plus importants avec les simulations directes. On peut consulter en Annexe D les tableaux donnant les résultats complets de cette comparaison quantitative.



**Figure 23 : Domaine de validité du modèle RRLC dans un diagramme nombre de Péclet - nombre de Damköhler**

À titre de remarque, il faut noter que les valeurs des seuils et des pentes associées aux limites de ces domaines de validité dépendent évidemment de la géométrie du milieu poreux considéré. Les résultats pourraient donc être légèrement différents pour un autre type de milieu,

mais nous pensons que la topologie générale des domaines serait néanmoins globalement la même.

En conclusion, il ressort de cette analyse que le domaine de validité du modèle RRLC est particulièrement restreint et correspond à des conditions hydrodynamiques très spécifiques. Ce modèle semble plus approprié à l'étude des bio-process, comme par exemple le traitement de l'eau en bioréacteur à lit fixe (Vayenas and Lyberatos, 1995; Vayenas *et al.*, 1997). Un exemple d'application pratique est présenté dans le chapitre 6. Une telle formulation peut également être considérée pour le transport dans les milieux poreux fracturés incluant un biofilm (*e.g.* : Charbonneau *et al.*, 2006) où des biofilm épais (1 à 2 cm ; un biofilm épais implique une longueur  $l_w$  importante et donc un nombre de Damkhöler important) et des hautes vitesses d'écoulement sont courants. Un tel résultat doit être gardé à l'esprit si l'on s'intéresse aux nombreux modèles de ce type développés dans la littérature (Kim *et al.*, 2004, Taylor et Jaffe, 1990), généralement sous des hypothèses *ad hoc*.

## **CHAPITRE 5 : MODÈLE DE BIODÉGRADATION LIMITÉE PAR LE TRANSFERT DE MASSE EXTERNE**



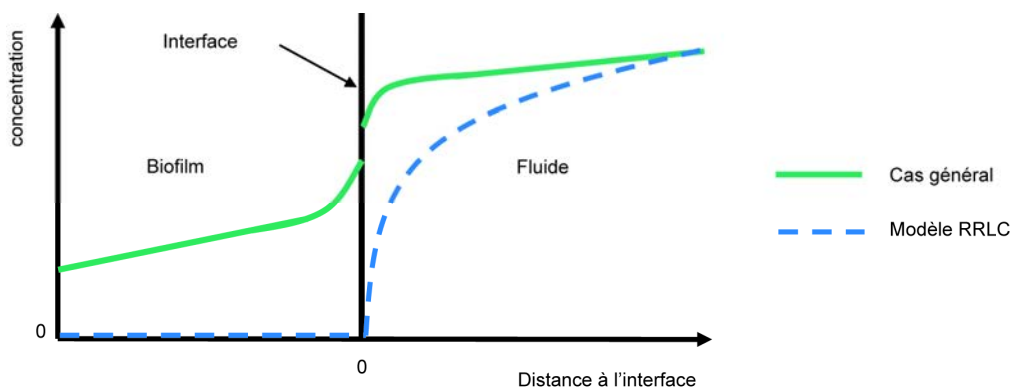
Dans le cas où la réaction de biodégradation est uniquement limitée par le transfert de masse depuis la phase fluide vers la phase biofilm, il est possible de développer un modèle de non-équilibre à une équation, auquel nous ferons référence par la suite en tant que modèle MTLC (Mass Transfer Limited Consumption). Des modèles de transport réactif reposant sur ce type d'hypothèse ont déjà été formulés (*e.g.* : Maier *et al.*, 1967 ; Hunt *et al.*, 1995 ; Wolfrum et Watt, 2002). Nous nous intéressons ici à l'application de ce type d'hypothèse au cas du changement d'échelle en transport en milieu poreux incluant un biofilm.

### 5.1 Développement théorique du modèle MTLC

D'un point de vue mathématique, l'hypothèse formulée ci-dessus peut s'exprimer de la manière suivante :

$$c_{A\gamma} = K_{A,eq} c_{A\omega} = 0, \text{ at } A_{\gamma\omega} \quad (127)$$

Ceci revient à supposer une consommation instantanée du soluté à l'interface biofilm-fluide : autrement dit, le flux de substrat apporté par la phase fluide est très largement inférieur au taux de réaction dans la phase biofilm. Un tel profil de concentration à l'échelle microscopique autour de l'interface est schématiquement représenté sur la Figure 24 :



**Figure 24 : Profils de concentration microscopique autour de l'interface fluide-biofilm dans le cas de la biodégradation limitée par le transfert de masse**

On peut donc voir que l'on a une concentration identiquement nulle dans toute la phase biofilm. Seuls existent des gradients de concentrations dans la phase fluide. La résolution du problème de transport est alors limitée à la phase fluide, en ne considérant les interactions entre les deux phases qu'à travers l'estimation du flux de soluté sortant du fluide à l'interface biofilm-fluide. L'équation (127) remplace ainsi dans le problème de transport à l'échelle du pore la condition aux limites (30). En outre, comme la concentration dans la phase biofilm est identiquement nulle, on peut éliminer l'équation de transport dans le biofilm (équation (26)) et les autres conditions aux limites qui lui sont associées. Le problème microscopique à considérer se ramène dans ces conditions à la formulation suivante :

$$\frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) \quad (128)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} = 0, \quad \text{at } A_{\gamma\kappa} \quad (129)$$

$$\text{C.L.2} \quad c_{A\gamma} = 0, \quad \text{at } A_{\gamma\theta} \quad (130)$$

Soulignons que l'analogie entre le système d'équations microscopiques présenté ci dessus, et le système d'équation associé à n'importe quel système réactionnel contrôlé par le transfert de masse est clairement évident (voir par exemple le problème de dissolution en milieu poreux avec une cinétique contrôlée par le transfert de masse étudié par Quintard et Whitaker, 1994 et Golfier *et al.*, 2002a). Par conséquent, le développement théorique de ce modèle est analogue à celui présenté dans ces travaux. Une telle résolution étant loin d'être immédiate, néanmoins, un rappel des différentes étapes et hypothèses s'imposent, afin que les limitations et les problèmes associés à cette analyse apparaissent clairement. Plus de détails sur le développement de tels modèles peuvent être trouvés dans Quintard et Whitaker (1994).



Tout d'abord, le développement de l'équation en déviation effectué pour le modèle RRLC (voir Annexe B) est aussi valable pour le modèle MTLC. Néanmoins, pour le modèle MTLC, la seconde condition aux limites (*cf.* équation (84)) prend une forme différente. À ce point de l'analyse, le problème en déviation pour le modèle MTLC peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\partial \tilde{c}_{A\gamma}}{\partial t} + \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V_{\gamma}^{A_{\omega\gamma}}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_{\gamma}^{A_{\omega\kappa}}} \int \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \quad (131)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \underbrace{\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (132)$$

$$\text{C.L.2} \quad \tilde{c}_{A\gamma} = \underbrace{-\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (133)$$

On peut voir que  $\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}$  et  $\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}$  sont les termes sources du champ  $\tilde{c}_{A\gamma}$ . Ceci conduit à exprimer la solution de ce problème sous la forme (*e.g.* Golfier *et al.*, 2002a) :

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} - s_{A\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \quad (134)$$

ce qui constitue l'hypothèse de fermeture du modèle MTLC.  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  représente un champ de fermeture vectoriel et  $s_{A\gamma}$  un champ de fermeture scalaire. Si on injecte l'hypothèse de fermeture dans le problème de déviation (équations (131) à (133)), nous obtenons les deux problèmes de fermeture suivants, tous deux définis dans la phase  $\gamma$  :

*Problème de fermeture I*

$$Pe_A \left( \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} + \mathbf{v}'_{\gamma} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} \right) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma} - \frac{1}{V_{\gamma}^{A_{\omega\gamma}}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} dA - \frac{1}{V_{\gamma}^{A_{\omega\kappa}}} \int \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} dA \quad (135)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma} \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (136)$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = 0 \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (137)$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = \mathbf{b}'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (138)$$

$$\text{C.L.4} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (139)$$

*Problème de fermeture II*

$$Pe_A \mathbf{v}'_\gamma \cdot \nabla s_{A\gamma} = \nabla^2 s_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma w}} \mathbf{n}_{\gamma w} \cdot \nabla s_{A\gamma} dA \quad (140)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla s_{A\gamma} = 0 \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (141)$$

$$\text{C.L.2} \quad s_{A\gamma} = 1 \quad \text{sur } A_{\gamma w} \quad (142)$$

$$\text{C.L.3} \quad s_{A\gamma} = s_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (143)$$

$$\text{C.L.4} \quad \langle s_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (144)$$

Dans ces équations, les variables et paramètres adimensionnels sont définis de la même manière que pour le modèle RRLC (équations (86) à (94)). De même, on utilise une approche identique pour clore les problèmes de fermeture (conditions de périodicités et de moyenne nulle). On peut déjà noter que le problème de fermeture I du modèle MTLC est formellement identique au problème de fermeture du modèle RRLC. Nous reviendrons sur ce point plus tard mais il faut déjà souligner ici que cette similarité entre les deux modèles n'est pas inhérente aux hypothèses associées à ces deux cas limites (réaction limitée par la cinétique ou le transfert de masse), mais est partiellement due à certaines hypothèses de changement d'échelle. En particulier, on suppose de manière classique - pour des raisons de séparation d'échelle - que les variations spatiales des variables macroscopiques ( $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  et  $\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ ) à l'échelle du pore sont négligeables dans le développement des problèmes de fermetures (*e.g.* Whitaker, 1999). Cependant, pour certaines configurations comme, par exemple, dans le cas du problème de Graetz (transport de masse entre deux plaques ou au sein d'un tube dont les parois sont à concentration imposée) pour lequel une solution analytique de l'expression du coefficient de transfert de masse fluide-paroi existent (Jakob, 1949), plusieurs études (Kechagia *et al.*, 2001 ;

Golfier *et al.*, 2002b) montrent qu'abandonner cette hypothèse pouvait mener à une amélioration de la précision de la solution. Dans notre cas, cet abandon générerait en fait des termes supplémentaires (relatifs aux dérivées spatiales des grandeurs macroscopiques) dans les problèmes de fermeture. Dans le cas du modèle MTLC, on aurait alors un couplage entre les deux problèmes de fermeture. Les problèmes de fermeture du modèle RRLC et le problème de fermeture I du modèle MTLC ne seraient donc plus identiques. Néanmoins, étant donné le champ d'application de nos modèles et par souci de simplification, nous conserverons l'hypothèse d'invariance spatiale à l'échelle microscopique des grandeurs macroscopiques. Il faut en effet insister sur le fait que si la contrainte de séparation des échelles est suffisamment bien respectée (ce qui est le cas de manière générale en milieu poreux), l'hypothèse précitée est dans la grande majorité des cas largement satisfaite.

Si l'on en revient à notre problème, en injectant l'hypothèse de fermeture (134) dans l'équation macroscopique ouverte (33), nous obtenons finalement l'équation de transport macroscopique associée au modèle MTLC :

*Modèle MTLC (forme fermée)*

$$\begin{aligned} \frac{\partial \left( \varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right)}{\partial t} + \nabla \cdot \left( \varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) = \\ \nabla \cdot \left( \mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) - \alpha_A \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \nabla \cdot \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) + \left( \mathbf{u}_{A\gamma}^* - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \right) \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \end{aligned} \quad (145)$$

dont les différents paramètres macroscopiques sont définis comme suit :

$$\mathbf{D}_{A,eff}^* = \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} + \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \rangle \quad (146)$$

$$\alpha_A = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla s_{A\gamma} dA \quad (147)$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma}^* = -\mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} S_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} S_{A\gamma} dA \right) + \langle \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} S_{A\gamma} \rangle \quad (148)$$

$$\mathbf{u}_{A\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma} dA \quad (149)$$

$\mathbf{D}_{A,eff}^*$  représente le tenseur de dispersion effectif,  $\alpha_A$  est le coefficient d'échange entre la phase  $\gamma$  et la phase  $\omega$  et  $\mathbf{d}_{A\gamma}^*$  et  $\mathbf{u}_{A\gamma}^*$  sont des termes convectifs non classiques. En l'absence de variations spatiales brutales de porosité à l'échelle macroscopique, nous pouvons introduire l'hypothèse supplémentaire :

$$\nabla \varepsilon_{\gamma} \approx 0 \quad (150)$$

et donc arriver à une première expression simplifiée du modèle MTLC

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\varepsilon_{\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma})}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_{\gamma} \langle \mathbf{v}_{\gamma} \rangle^{\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}) - \alpha_A \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \end{aligned} \quad (151)$$

En raison de la formulation identique du problème de fermeture I (qui contrôle l'expression du tenseur de dispersion) dans les deux modèles, nous pouvons observer ici que le tenseur de dispersion effectif calculé par le modèle MTLC est strictement équivalent au tenseur de dispersion effectif donné par le modèle RRLC. En dépit des remarques précédentes liant cette analogie au processus de changement d'échelle, il peut paraître assez surprenant d'un point de vue physique - du moins au premier abord - que deux cas limites aussi opposés puissent conduire aux mêmes hypothèses concernant le processus de dispersion. En fait, dans le modèle MTLC, il est supposé que le soluté est entièrement consommé à l'interface biofilm-fluide ce qui revient à dire que les processus de transport dans la phase  $\omega$  n'ont pas d'impact sur le tenseur de dispersion. De même, dans le cadre du modèle RRLC, les processus de diffusion et de réaction dans la phase biofilm sont implicitement pris en compte à travers le facteur d'efficacité, et ne jouent donc non plus aucun rôle dans le calcul du tenseur de

dispersion effectif. Ce découplage du processus de dispersion dans la phase fluide des phénomènes de transport dans la phase biofilm, effectué dans chacun des modèles de non équilibre à une équation, explique au final cette similarité dans la formulation de ces deux tenseurs de dispersion effectifs.

Il faut aussi garder à l'esprit que le coefficient d'échange de masse  $\alpha_A$  introduit ci dessus correspond à une approximation au premier ordre des phénomènes de transfert de masse dans le système. Ces phénomènes sont par nature transitoires et requerraient une convolution spatio-temporelle pour être rigoureusement décrits. Les limitations associées à cette approximation et les conditions de transport pour lesquelles une telle formulation pourrait ne pas être acceptable sont discutées (dans le cadre du transport passif en milieu poreux hétérogène) dans Cherblanc *et al.* (2007) et Golfier *et al.* (2007a).

Enfin, il apparaît que les termes convectifs additionnels  $\nabla \cdot (\mathbf{d}_\gamma^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)$  et  $(\mathbf{u}_\gamma^* - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  ont une influence complexe sur la solution. En règle générale, pour des milieux géométriquement simples, ils ne peuvent pas être négligés. En revanche, pour des milieux plus réalistes, les résultats sont contradictoires et le manque actuel d'information empêche de trancher définitivement la question (*cf.* Quintard *et al.*, 1997 ; Golfier *et al.*, 2002a ; Golfier *et al.*, 2002b). Les résultats obtenus durant le développement du modèle MTLC montrent toutefois qu'on ne peut pas *a priori* les négliger dans le cas général. Néanmoins, pour certaines configurations particulières (*e.g.* en 2D, à basse vitesse et avec une faible fraction volumique de fluide), ces termes additionnels se révèlent négligeables et l'équation de transport macroscopique associée au modèle MTLC peut être mise sous la forme simplifiée suivante :

*Modèle MTLC (forme fermée simplifiée)*

$$\frac{\partial \left( \varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right)}{\partial t} + \nabla \cdot \left( \varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) = \nabla \cdot \left( \mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) - \alpha \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (152)$$

On reviendra plus en détails sur l'importance de ces termes additionnels dans le paragraphe suivant.

## 5.2 Calculs des paramètres effectifs de l'équation de transport macroscopique du modèle MTLC

Sous réserve d'indication contraire, nous considérerons par la suite des milieux bidimensionnels constitués d'inclusions solides cylindriques colonisées par un biofilm d'épaisseur uniforme (*cf.* Figure 16). Une grille cartésienne de 250\*250 mailles est utilisée pour discrétiser ce type de cellule unitaire, une étude de convergence préalable ayant montré qu'une telle grille donnait des résultats indépendants du raffinement du maillage. Nous présenterons dans la suite divers calculs de coefficients effectifs associés à l'équation macroscopique du modèle MTLC pour de telles cellules unitaires. Le but est de mener une étude de sensibilité de ces paramètres macroscopiques aux propriétés microscopiques du milieu. Il faut souligner que nous ne nous intéresserons pas au tenseur de dispersion effectif, car il est formellement analogue à celui obtenu pour le modèle RRLC (*cf.* paragraphe 4.2.1.). Les méthodes numériques utilisées pour résoudre le problème de fermeture scalaire sont identiques à celles utilisées pour la résolution du problème de fermeture vectoriel (*cf.* paragraphe 4.2.1.).

### 5.2.1 Influence des effets d'entrée sur le coefficient d'échange de masse

Un coefficient d'échange de masse constant comme celui calculé par la méthode de prise de moyenne volumique ne peut pas rendre compte de toute la complexité des phénomènes mis en jeu, qui dépendent à la fois de l'espace et du temps (Kechagia *et al.*, 2001, Golfier *et al.*, 2007a). Par exemple, la dérivation des problèmes de fermeture qui contrôlent  $\tilde{c}_{A\gamma}$  implique l'hypothèse d'une faible variation des gradients macroscopiques à l'échelle microscopique. Par conséquent, les effets associés aux régions d'entrée ne sont pas considérés. Afin de mieux comprendre l'impact de ce type d'effets sur le modèle MTLC, considérons le cas d'un milieu poreux simplifié : le modèle du tube capillaire, dans lequel l'espace poral est représenté par un faisceau de tubes cylindriques parallèles entre-eux. On supposera que le biofilm se développe de manière uniforme sur les parois de chaque tube. Compte-tenu du caractère axisymétrique du problème, le champ des vitesses est tel que  $\mathbf{v}_\gamma = v_\gamma(r)\mathbf{e}_z$ , avec  $r$  la coordonnée radiale et  $\mathbf{e}_z$  le vecteur unitaire dans la direction axiale. La géométrie de pore représentative d'un tel système est représentée sur la Figure 25 (et est similaire à celle étudiée par Graetz d'un point de vue du transfert de chaleur). L'écoulement et les conditions aux limites utilisées pour calculer le coefficient d'échange  $\alpha_A$  dans le cadre du modèle MTLC sont aussi représentés sur cette figure.

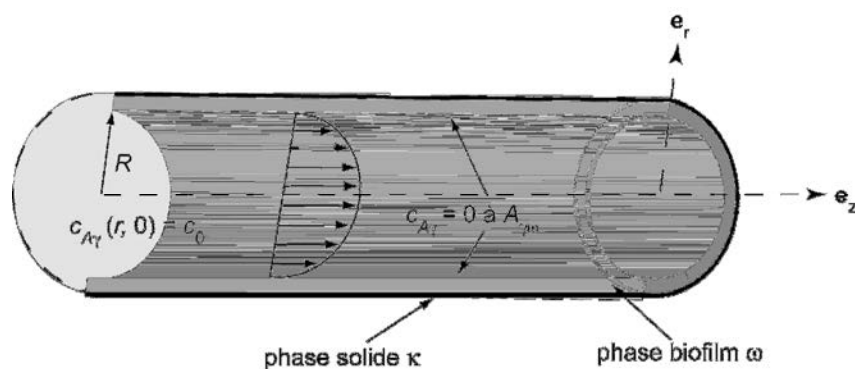


Figure 25 : Illustration de la géométrie et des conditions aux limites d'un problème de type problème de Graetz.

Tout d'abord, il faut noter que le coefficient d'échange  $\alpha_A$  peut être adimensionné sous la forme d'un nombre de Sherwood  $Sh_A$  défini comme suit :

$$Sh_A = \frac{\alpha_A D}{a_v \mathcal{D}_{Ay}}, \quad (153)$$

où  $D$  est le diamètre interne du tube et  $a_v$  est la surface spécifique du milieu (*i.e.* : la surface totale d'échange entre la phase fluide et la phase biofilm par unité de volume du milieu). Dans la configuration axisymétrique considérée, ce nombre de Sherwood peut être réécrit sous la forme :

$$Sh_A = \frac{\alpha_A l_\gamma^2}{\mathcal{D}_{Ay}}, \quad (154)$$

Où  $l_\gamma = R_t$  est le rayon interne du tube. Le modèle conceptuel ainsi défini est analogue au problème classique de Graetz pour le transfert de chaleur (ou de masse) (Jakob, 1949) qui conduit à une équation macroscopique du type :

$$\frac{\partial \langle c_{Ay} \rangle^\gamma}{\partial t} + \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \nabla \langle c_{Ay} \rangle^\gamma = \mathcal{D}_{Taylor}^* \nabla^2 \langle c_{Ay} \rangle^\gamma - \alpha_{Graetz} \langle c_{Ay} \rangle^\gamma \quad (155)$$

Une solution transitoire semi-analytique est connue pour ce type de problème, dans lequel  $\mathcal{D}_{Taylor}^*$  représente le coefficient de dispersion axial caractéristique de la dispersion de Taylor (Taylor, 1953) et  $\alpha_{Graetz}$  le coefficient d'échange prédit par l'analyse de Graetz. L'expression transitoire de ce coefficient d'échange obtenue par Graetz est habituellement exprimée en fonction de la concentration moyenne pondérée par le champ des vitesses ("bulk average concentration", qui est la moyenne de la concentration sur un plan perpendiculaire à l'axe z pondérée par le champ des vitesses dans ce plan). Néanmoins, un calcul similaire peut être aisément effectué pour  $\langle c_{Ay} \rangle^\gamma$ . Enfin, cette solution analytique a été obtenue pour des fortes valeurs du nombre de Péclet (supérieure à 100) de sorte que l'on puisse négliger la dispersion axiale.



Pour pouvoir comparer ces deux expressions du coefficient d'échange de masse, la formulation de l'équation macroscopique du modèle MTLC doit être modifiée de la manière suivante :

$$\frac{\partial (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_{eff} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \nabla \cdot (\boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) - \alpha'_A \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (156)$$

avec

$$\alpha'_A = \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \alpha_A \quad (157)$$

et

$$\mathbf{v}_{eff} = \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma - \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \mathbf{d}_{A\gamma}^* - \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \mathbf{u}_{A\gamma}^* \quad (158)$$

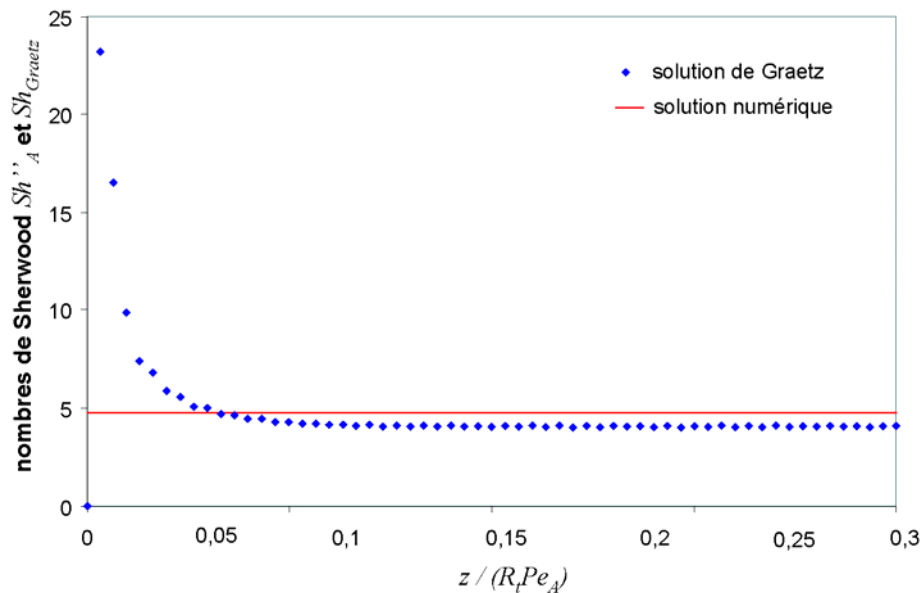
où  $\mathbf{v}_{eff}$  est la vitesse effective associée au terme convectif. Comme nous pouvons le voir dans les équations (équations (155) et (156)), les flux de masse convectifs ne sont pas les mêmes. Cependant, en se plaçant en régime permanent et en négligeant la dispersion axiale (hypothèses toutes deux utilisées pour le calcul de  $\alpha_{Graetz}$ ) le coefficient  $\alpha'_A$  peut être réécrit sous une forme similaire à celle de  $\alpha_{Graetz}$ , en fonction de la vitesse moyenne intrinsèque du fluide  $\langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma$  :

$$\alpha'_{A'} = \frac{\alpha'_A \left\| \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right\|}{\left\| \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma - \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \mathbf{d}_{A\gamma}^* - \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \mathbf{u}_{A\gamma}^* \right) \right\|} \quad (159)$$

À ce stade de l'analyse, les expressions de  $\alpha'_{A'}$  et  $\alpha_{Graetz}$  sont exactement analogues. Dans les deux cas, le flux de substrat à travers l'interface fluide-biofilm est égal au produit du coefficient d'échange et de la différence entre la concentration macroscopique de la phase fluide  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  et la concentration sur les parois du tube, *i.e.* : 0.

Par conséquent, les nombres de Sherwood  $Sh'_{A'}$  et  $Sh_{Graetz}$ , associés respectivement à  $\alpha'_{A'}$  et  $\alpha_{Graetz}$ , peuvent être directement comparés. La Figure 26 représente les variations de ces deux

groupements adimensionnels en fonction de la distance réduite (rapportée au rayon du tube) à l'entrée du tube.



**Figure 26 : Comparaison entre la solution semi-analytique de Graetz et la solution par changement d'échelle pour l'évolution du nombre de Sherwood le long d'un tube axisymétrique**

Une première remarque évidente est que la solution par changement d'échelle est constante selon  $z$  tandis que la solution de Graetz tend vers une valeur asymptotique. La solution donnée par le modèle MTLC, en effet, est invariante dans l'espace (et le temps) de par l'hypothèse des petites variations des grandeurs macroscopiques à l'échelle microscopique, ce qui conduit à négliger les effets non locaux (voir Annexe B). Par conséquent, en fonction de la distance de l'entrée du tube, on peut distinguer deux zones :

- Une zone d'établissement, dans laquelle le transfert de masse est très sensible au nombre de Péclet et à la position spatiale. Un changement d'échelle conventionnel est impossible dans cette zone. On a affaire à un comportement typiquement non local. La longueur de cette zone d'établissement, selon la solution de Graetz, est égale  $0,11R_t Pe_A$ .

- Une zone asymptotique où le coefficient d'échange devient constant (et indépendant du nombre de Péclet, dans le cadre de l'hypothèse d'un nombre de Péclet suffisamment grand) et prend une valeur inférieure à celles qui étaient les siennes dans la zone d'établissement.

L'existence de cette zone d'établissement doit être prise en considération dans l'utilisation du modèle par transfert de masse. Ce problème s'est ainsi posé durant l'établissement du domaine de validité du modèle MTLC (*cf.* paragraphe 5.3).

Notons qu'il existe, même dans la zone asymptotique, une différence d'environ 15% entre le nombre de Sherwood théorique (valeur : 4.07) et le nombre de Sherwood analytique (valeur : 4.75). Deux raisons principales, découlant toutes deux des hypothèses initiales, expliquent cette différence résiduelle :

- Dans la solution de Graetz, la diffusion dans la direction  $z$  est négligée par rapport à la diffusion radiale (*cf.* Golfier *et al.*, 2002b pour une étude par changement d'échelle du problème de Graetz où cette hypothèse a été faite).
- La perte d'information entre l'échelle microscopique et l'échelle macroscopique inhérente à l'emploi de la méthode de prise de moyenne volumique (dû en particulier à l'hypothèse des faibles variations des grandeurs macroscopiques à l'échelle microscopique - *cf.* Kechagia *et al.*, 2001 pour une discussion sur les limites imposées par une telle hypothèse).

En conclusion nous estimons que l'accord peut être jugé raisonnablement bon entre la solution de Graetz et celle donnée par le modèle MTLC lorsque le régime asymptotique est atteint.

## **5.2.2 Impact du nombre de Péclet et des propriétés de l'écoulement sur le coefficient d'échange de masse**

Dans ce paragraphe, nous considérons deux cellules unitaires différentes. Toutes deux sont bidimensionnelles avec des inclusions cylindriques, et présentent les mêmes fractions volumiques de chaque phase ( $\varepsilon_\gamma = 0.59$ ,  $\varepsilon_\omega = 0.11$ ). Néanmoins, elles diffèrent par la direction de l'axe d'écoulement par rapport à l'axe du réseau cubique d'inclusion : confondue dans le premier cas, à 45 degrés dans le second. Ceci conduit en principe à de plus grands effets de tortuosité dans le second cas. La Figure 27 représente l'évolution du nombre de Sherwood en fonction du nombre de Péclet pour chacune des deux configurations.

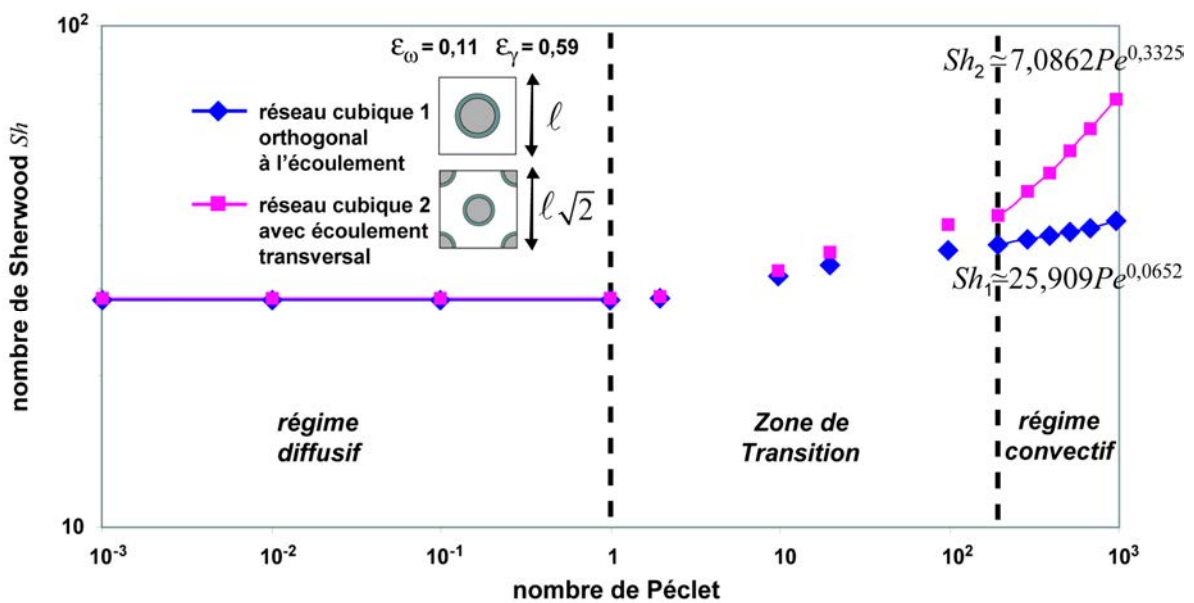


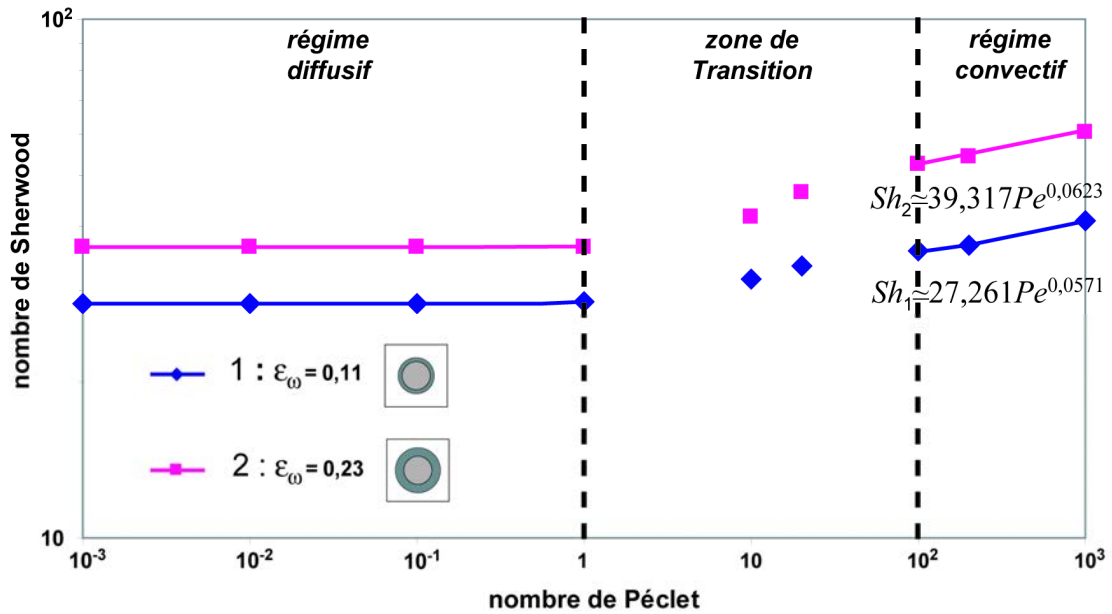
Figure 27 : Variation du nombre de Sherwood en fonction du nombre de Péclet pour deux configurations bidimensionnelles différant par l'orientation de l'écoulement qui les traverse (milieu bidimensionnel d'inclusion cylindrique avec  $\varepsilon_\gamma = 0.59$  et  $\varepsilon_\omega = 0.11$ ).

Classiquement, on identifie deux régimes de transfert de masse entre le biofilm et la phase fluide. Dans le régime de transport diffusif, pour un nombre de Péclet inférieur à 1, la direction de l'écoulement n'a pas d'impact sur le transfert de masse entre phases. Celui ci dépend uniquement des fractions volumiques de chaque phase et de la forme de l'interface. Dans la zone de transition, le comportement du nombre de Sherwood est assez complexe et ne peut pas

être représenté par des corrélations simples. En régime de transport convectif, avec des nombres de Péclet supérieurs à 100, le nombre de Sherwood devient une fonction croissante du nombre de Péclet (avec une dépendance en loi puissance), et l'influence de la direction d'écoulement devient significative. La norme (*i.e.* : la valeur du nombre de Péclet) comme la direction du champ des vitesses sont des paramètres influençant le transfert de masse. En particulier, le coefficient d'échange de masse est plus important quand l'axe de l'écoulement est à 45 degrés par rapport à l'axe du réseau d'inclusions. Ceci s'explique sans doute par un meilleur mélange au sein de la phase fluide favorisant l'accroissement des gradients de concentration à l'interface fluide-biofilm. D'une manière générale, plus la structure de la géométrie se rapproche d'une structure désordonnée, plus le transfert de masse entre phase est important en régime convectif.

### **5.2.3 Impact de la fraction volumique de biofilm sur le coefficient d'échange de masse**

Considérons maintenant deux cellules unitaires différentes. Toutes deux sont bidimensionnelles avec des inclusions cylindriques, présentant une géométrie similaire à celle illustrée sur la Figure 16. Elles diffèrent par les fractions volumiques de chaque phase ( $\varepsilon_\gamma = 0.59$ ,  $\varepsilon_\omega = 0.11$  pour la première, et  $\varepsilon_\gamma = 0.47$ ,  $\varepsilon_\omega = 0.23$  pour la seconde). La Figure 28 présente les évolutions du nombre de Sherwood en fonction du nombre de Péclet pour chacune de ces deux configurations.



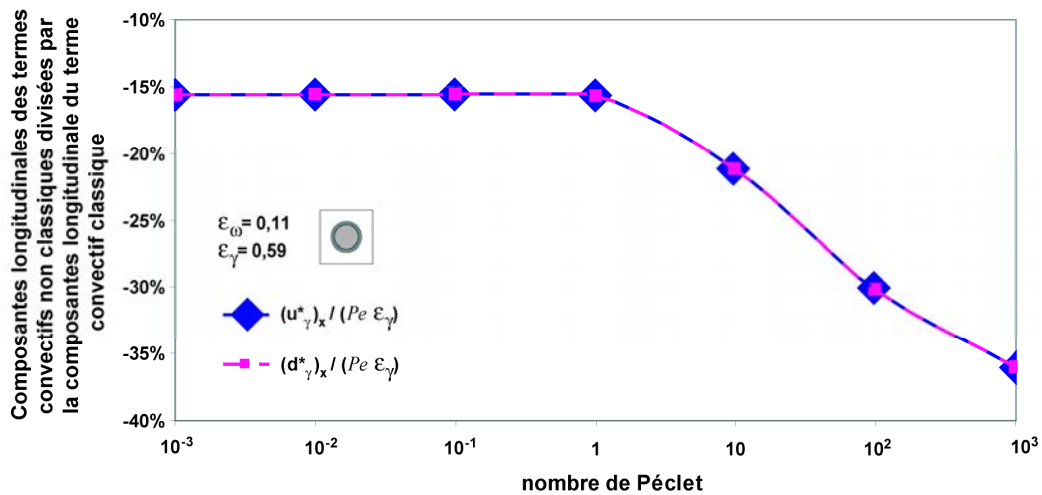
**Figure 28 : Influence de la fraction volumique sur le coefficient d'échange de masse en fonction du nombre de Péclet pour deux géométries circulaires différant par leur fraction volumique de biofilm**

Comme prévu, le nombre de Sherwood est une fonction croissante de la fraction volumique de biofilm. En effet, le nombre de Sherwood caractérisant un flux de masse à travers l'interface fluide-biofilm par unité de volume fluide, plus la fraction volumique de fluide diminue et plus la surface spécifique de l'interface fluide-biofilm (*i.e.*, la surface d'échange par unité de volume fluide) augmente, plus le nombre de Sherwood est élevé.

#### 5.2.4 Termes convectifs non classiques

Les deux termes convectifs vectoriels non classiques  $\mathbf{d}_{A\gamma}^*$  et  $\mathbf{u}_{A\gamma}^*$  définis dans le modèle MTLC dépendent fortement de la configuration dimensionnelle et de la géométrie du milieu, ainsi que du champ des vitesses. De tels coefficients issus du processus de prise de moyenne ont déjà été obtenus dans des modèles moyennés mais pour d'autres types d'application - concernant la dissolution des roches carbonatées (Golfier, 2001) ou le transport de NAPL dans les eaux

souterraines (Quintard *et al.*, (1997) - et ces études ont montré que dans certains cas particuliers, ils pouvaient être négligés. Une étude plus exhaustive sur l'importance de ces termes a été menée pour diverses géométries de pore dans le cadre du modèle MTLC. Ce travail a permis de mettre en évidence que ces termes sont très sensibles aux différentes propriétés du transport considéré, et que, par conséquent, ils ne pouvaient généralement pas être négligés dans les cas que nous étudions. Afin de caractériser leur influence sur le transport convectif, l'évolution de la contribution de ces termes par rapport au terme convectif classique (i.e. :  $\varepsilon_\gamma Pe$ ) en fonction du nombre de Péclet est présentée en Figure 29. Les contributions sont exprimées en pourcentage : le signe - indiquant une augmentation du transport convectif, le signe + une réduction (voir équation (145)). Ces ratios ont été calculés pour une cellule unitaire bidimensionnelle du type de celle présentée en Figure 16.



**Figure 29 : Variation du rapport des composantes longitudinales des termes convectifs non classiques et classique en fonction du nombre de Péclet dans le cas d'un milieu bidimensionnel nodulaire avec  $\varepsilon_\gamma = 0.59$  et  $\varepsilon_\omega = 0.11$ .**

Tout d'abord, on peut noter que les termes  $(\mathbf{u}^*_{A\gamma})_x$  et  $(\mathbf{d}^*_{A\gamma})_x$  sont égaux, et cela a été observé dans toutes les configurations étudiées. On ne dispose pas pour l'instant d'explication physique

à cette égalité. Deuxièmement, il est intéressant de constater que pour la configuration étudiée en Figure 29, ces deux termes contribuent au moins à hauteur de 15% au flux convectif classique. D'une manière générale, il apparaît que ces termes convectifs additionnels se comportent d'une manière complexe (pour certaines configurations, une réduction du terme convectif a été observée) et ne peuvent pas être négligés *a priori*. Cela confirme les résultats analytiques obtenus par Golfier *et al.* (2001).

### 5.3. Domaine de validité du modèle MTLC

Abordons maintenant le domaine de validité du modèle MTLC établi en fonction des conditions hydrodynamique et biochimique de transport (*i.e.* : dans un plan nombre de Péclet - nombre de Damköhler). Nous suivrons la démarche adoptée précédemment pour le modèle RRLC, et ce, pour la même configuration géométrique (milieu stratifié) et sous les mêmes hypothèses quant aux paramètres de transport ( $\mathbf{D}_r = 0,25$  et  $K'_{A\omega} = 0,5$ ).

Le problème de transport microscopique est donc identique à celui utilisé pour l'établissement du domaine de validité du modèle RRLC (équations (63) à (72)). Le problème de transport macroscopique adimensionné associé au modèle MTLC est présenté ci-dessous :

$$\varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial t'} + \varepsilon_\gamma (Pe_A - Pe_{d,A} - Pe_{u,A}) \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} = (\mathbf{D}_{A,eff}^*)_{xx} \frac{\partial^2 \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'^2} - Sh_A \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} \quad (160)$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = 1 \text{ en } x' = 0 \quad (161)$$

$$(\mathbf{D}_{A,eff}^*)_{xx} \frac{\partial^2 \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'^2} = 0 \text{ en } x' = 10 \quad (162)$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = 0 \text{ à } t' = 0 \quad (163)$$

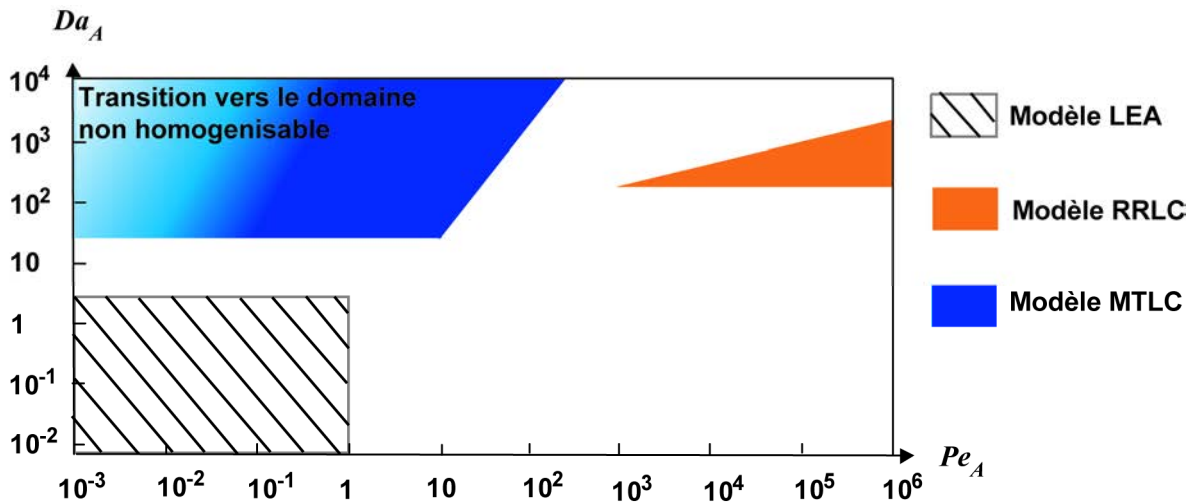
où



$$Pe_{d,A} = \frac{(\mathbf{d}_{A\gamma}^*)_x L}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; Pe_{u,A} = \frac{(\mathbf{u}_{A\gamma}^*)_x L}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; Sh_A = \frac{\alpha_A L^2}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (164)$$

Cette étude comparative montre que pour satisfaire les hypothèses du modèle MTLC, un grand nombre de Damköhler et un faible nombre de Péclet sont requis. En effet, le modèle MTLC n'est pertinent que si l'apport de soluté par la phase fluide est suffisamment faible par rapport aux taux de réaction dans la phase biofilm.

La Figure 30 cartographie le domaine de validité du modèle MTLC. Les domaines de validité des modèles LEA et RRLC sont également représentés, pour mémoire. La comparaison quantitative entre les courbes de percée ou les profils établis par simulations directes et simulations à l'échelle de Darcy est effectuée comme précédemment en comparant les moments d'ordres 0, 1 et 2 de chacune des distributions associés (distributions dérivées pour les courbes de percées, distributions directes pour les profils spatiaux de concentration). Le critère de validité choisi est un écart relatif absolu inférieur à 20% pour les moments d'ordre 0, un écart relatif absolu inférieur à 30% pour le moment d'ordre 1, et un écart relatif absolu inférieur à 50% pour le moment d'ordre 2. Ces critères de validité sont beaucoup moins contraignants que ceux utilisés pour le modèle LEA. Toutefois, cette plus grande « tolérance » doit être relativisée. En effet, dans les conditions de transport extrêmes où le modèle MTLC est valide, l'ensemble des autres modèles testés présente des écarts encore bien plus importants avec les simulations directes. On peut consulter en Annexe D les tableaux donnant les résultats complets de cette comparaison quantitative.



**Figure 30 : Domaine de validité du modèle MTLC dans un diagramme nombre de Damköhler - nombre de Péclet**

Rappelons aussi que les valeurs des seuils et des pentes associés aux limites des domaines de validités présentés ci-dessus peuvent légèrement varier en fonction des propriétés du milieu poreux considéré (forme des grains, tortuosité).

Dans son domaine de validité, le modèle MTLC génère quand même d'importantes erreurs sur le transport. Néanmoins, il est de très loin le modèle le plus représentatif des phénomènes de transport dans ces conditions extrêmes, les autres modèles présentant des écarts relatifs couramment supérieurs à 100% aux niveaux des divers moments considérées (voire annexe D). On peut donc être satisfait de ce comportement en insistant sur le fait que le domaine de validité du modèle MTLC est proche de la zone de transport non-homogénéisable (cf Figure 30).

## **CHAPITRE 6 : EXEMPLE D'APPLICATION DES MODÈLES À UNE ÉQUATION - CAS D'UN BIORÉACTEUR À LIT FIXE**



Les trois modèles à une équation présentés dans les chapitres 3, 4 et 5 sont valables pour différentes conditions de transport, et sont donc destinés à des applications différentes. Ainsi, le modèle LEA est plutôt destiné à être utilisé en écoulements souterrains (faible nombre de Péclet) avec des taux de biodégradation bas, classiquement rencontrés pour la métabolisation des composés organiques de type HAP ou solvant chlorés. Le domaine d'application du modèle d'équilibre est donc a priori plutôt celui de la bioremédiation. Les domaines de validités des modèles RRLC et MTLC sont caractéristique de conditions plus extrêmes, qu'on rencontrera plus fréquemment en systèmes industriels qu'en milieu naturel. Considérons, par exemple, le problème de nitrification étudié par Vayenas *et al.*, 1997. Dans le procédé de nitrification, la bactérie *Nitrobacter* ( $\rho_\omega = 1000 \text{ mg/cm}^3$ ;  $\mu_{A\omega} = 0.55 \text{ j}^{-1}$  et  $K_{A\omega} = 1.2 \cdot 10^{-3} \text{ mg/cm}^3$ ) converti le nitrite (venant de l'oxydation des ions ammonium par *Nitrosomas*) en nitrate ( $\mathcal{D}_{A\omega} = 6 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{d}$ ) dans un réacteur à lit fixe utilisé comme support pour la croissance de biofilm ( $\ell_\gamma = 5 \cdot 10^{-1} \text{ cm}$ ;  $\ell_\omega = 1.5 \cdot 10^{-2} \text{ cm}$ ). Étant donné les débits caractéristiques dans le réacteur (de 1 à 3 l/min pour un réacteur de 9cm de diamètre avec une porosité de 0.35), un rapide calcul conduit à des nombres de Péclet et de Damköhler de l'ordre de  $10^5 - 10^6$  et 1720, respectivement, pour lesquels les hypothèses du modèle RRLC sont vérifiées. Cet exemple pratique illustre la capacité d'un tel modèle de non-équilibre à rendre compte de la dynamique d'un système réel en adéquation avec les besoins des procédés industriels et de la bio-ingénierie. Le modèle MTLC quant à lui est adapté par exemple aux applications concernant des biofilms multi-populations pour lesquels l'activité hétérotrophe est limité à la surface du biofilm (*e.g.* : Horn et Hempel, 1997, Cole *et al.*, 2004). Un autre exemple d'application serait le transport d'agent antimicrobien comme les biocides oxydants (chlorine, peroxyde d'hydrogène) qui sont connu pour être neutralisés dans les

premières couches de biomasse, plus vite qu'ils ne diffusent à l'intérieur du biofilm (*e.g.* : Stewart *et al.*, 2000, Roberts et Stewart, 2005).

Avant de s'attaquer au problème plus complexe du développement d'un modèle à deux équations, nous présentons dans la suite de ce chapitre l'analyse détaillée de l'application de ces modèles à une équation à la dynamique d'un bio-réacteur à lit fixe. Dans cette partie sont présentés le texte intégral de l'article «Upscaling of Transport processes in porous Media with Biofilms in Equilibrium and Non-Equilibrium Conditions» (L. Orgogozo, F. Golfier, M.A. Buès) paru en 2009 dans *Applicable Analysis*, suivi d'un extrait de l'acte de la 4<sup>ème</sup> conférence Biot intitulé «Numerical approach of bioreactive transport in porous medium including a biofilm phase» (L. Orgogozo, F. Golfier, C. Oltean, M.A. Buès, B. Wood et M. Quintard) paru également en 2009.

ORGOGOZO L., GOLFIER F., BUÈS M.A. (2009). - Upscaling of Transport processes in porous Media with Biofilms in Equilibrium and Non-Equilibrium Conditions. *Applicable Analysis*, (DOI:101080/00036810902913862).





## Upscaling of transport processes in porous media with biofilms in equilibrium and non-equilibrium conditions

L. Orgogozo\*, F. Golfier and M.A. Buès

*Laboratoire Environnement, Géomécanique et Ouvrages, Nancy-Université, Rue du Doyen  
Roubault-BP 40 F-54501, Vandœuvre-lès-Nancy, France*

Communicated by R.P. Gilbert

*(Received 16 January 2009; final version received 11 March 2009)*

Transport of biologically reactive dissolved solutes in a saturated porous medium including a biofilm-phase occurs in various technological applications such as in biochemical or environmental engineering. It is a complex process involving a wide variety of scales (from the bacteria-scale to the aquifer-heterogeneities-scale in the case of groundwater remediation) and processes (hydrodynamic, physicochemical and biochemical). This work is devoted to the upscaling of the pore-scale description of such processes. Firstly, one-equation macroscopic models for bio-reactive transport at the Darcy-scale have been developed by using the volume averaging method; they will be presented below. These one-equation models are valid for different limit cases of transport; their validity domains in terms of hydrodynamic and biochemical conditions will also be discussed. Finally, in order to illustrate such a theoretical development, an example of application to the operation of a packed bed reactor will be studied.

**Keywords:** biofilm; porous media; transport; upscaling; volume averaging

**AMS Subject Classifications:** 74Q15; 76S05; 92C45

### 1. Introduction

Modelling transport in saturated porous media of organic chemical species in presence of a bacterial population growing in the form of biofilms is an important area of research to environmental and industrial applications, e.g. treatment and remediation of groundwater contaminated by organic pollutants (bio-sparging, bio-barriers, ... ) or industrial processes (waste water treatment, bio-fouling elimination, ... ). Biofilms, which are composed of bacterial populations and extracellular organic substances, grow on the grains of a porous medium, in which three phases are present: fluid, solid and biofilm. In the biofilm-phase, bacterial metabolism converts the dissolved organic chemical species into biomass or other organic compounds. In order to optimize various applications involving such

---

\*Corresponding author. Email: Laurent.Orgogozo@ensg.inpl-nancy.fr

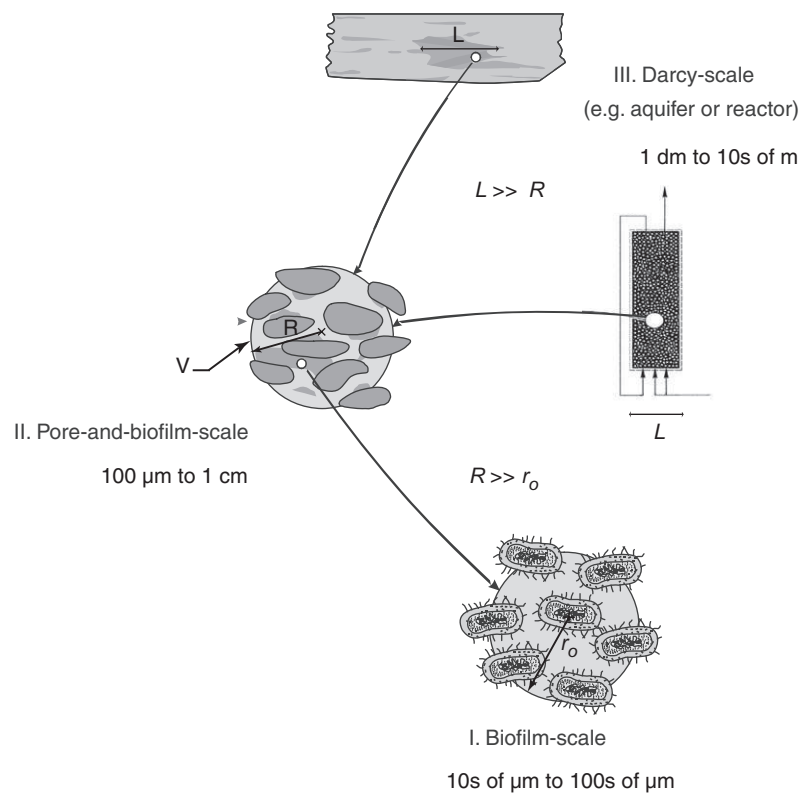


Figure 1. The different scales involved in transport phenomena in a porous medium with a biofilm-phase.

phenomena, we need to carry out accurate numerical models of transport of organic solute in a porous medium including a biofilm-phase. The pursuit of this objective has led to an extensive literature (see, e.g. [1]). One of the difficulties in the development of such models is the multi-scale aspect of these problems. Figure 1 shows the different scales under consideration in this work. The upscaling of transport phenomena from the bacteria-scale (I) to the pore-and-biofilm-scale (II) has been already studied (e.g. [2]). In this work we focus on the second level of upscaling, i.e. from the pore-scale (II) to the Darcy-scale (III). We consider an organic solute  $A$ , which is transported by convection and diffusion in the fluid-phase (the  $\gamma$ -phase) and by diffusion within the biofilm-phase (the  $\omega$ -phase) where it is consumed by the bacterial metabolism. A classical Monod kinetics will be adopted to describe the consumption reaction (e.g. [3]). In the general case, biodegradation kinetics involves two chemical species: the source of carbon – our organic solute  $A$  – and the electron acceptor, e.g. dioxygen or nitrate, denoted  $B$ . For the simplicity of the exposure, we will assume in this study that the electron acceptor is in large excess so that its concentration can be considered to be constant and thus the consumption of solute  $A$  is governed by a simple Monod reaction kinetics. The fluid- and biofilm-phases are assumed each to be continuous and homogeneous except at the phase boundaries whereas the solid-phase (the  $\kappa$ -phase) is considered to be passive

(no reaction) relative to transport. We will consider also that there is no concentration jump at the fluid-biofilm interface: there is continuity between the concentration fields in each phase. Finally, we uncouple the solute transport and bacterial growth processes by considering that the characteristic time-scale of the first one is very small compared to the characteristic time-scale of the second one. Under these assumptions, the pore-scale transport problem for species  $A$  takes the following form (all the presented equations are dimensionless):

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (D_A \cdot \nabla c_{A\omega}) - Da_m \frac{c_{A\omega}}{1 + \frac{c_{A\omega}}{K_{A\omega}}} \quad \text{in the } \omega\text{-phase,} \quad (1)$$

$$\frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} + Pe_m \nabla(v_\gamma c_{A\gamma}) = \nabla^2 c_{A\gamma} \quad \text{in the } \gamma\text{-phase} \quad (2)$$

$$-n_{\omega\kappa} \cdot D_A \cdot \nabla c_{A\omega} = 0 \quad \text{at } A_{\omega\kappa} \quad (3)$$

$$-n_{\gamma\kappa} \cdot \nabla c_{A\gamma} = 0, \quad \text{at } A_{\gamma\kappa} \quad (4)$$

$$-n_{\gamma\omega} \cdot D_A \cdot \nabla c_{A\omega} = -n_{\gamma\omega} \cdot \nabla c_{A\gamma} \quad \text{at } A_{\gamma\omega} \quad (5)$$

$$c_{A\gamma} = c_{A\omega}, \quad \text{at } A_{\gamma\omega}. \quad (6)$$

Here,  $c_{A\gamma}$  and  $c_{A\omega}$  represent the concentration of the organic solute  $A$  in the  $\gamma$ - and  $\omega$ -phases, respectively;  $D_A$  is the effective diffusion tensor of species  $A$  in the biofilm;  $v_\gamma$  is the fluid velocity;  $K_{A\omega}$  is the effective half-saturation of the solute  $A$ . We have used the terminology  $A_{\gamma\kappa}$  to indicate the interface between  $\gamma$ - and  $\kappa$ -phases, and  $A_{\gamma\omega}$  and  $A_{\omega\kappa}$  to indicate the interface between  $\gamma$ - and  $\omega$ -phases and between  $\kappa$ - and  $\omega$ -phases, respectively. The term  $n_{\gamma\kappa}$  indicates the unit normal pointing outward from the  $\gamma$ -phase towards the  $\kappa$ -phase;  $n_{\gamma\omega}$  and  $n_{\omega\kappa}$  are similarly defined.  $Pe_m$  and  $Da_m$  are, respectively, the Péclet number and the Damköhler number associated to the pore-scale.

The upscaling of transport equations from the pore-scale to the Darcy-scale is done by using the volume averaging method (e.g. [4]). Briefly, microscale equations are averaged over a volume  $V$  of the medium which is representative of its microscopic structure (Figure 1) and which satisfies the assumption of separation of scales: its characteristic length must be large compared to the characteristic lengths of the microscale and small compared to the characteristic lengths of the macroscale. The upscaling process leads to equations of transport at macroscale, which govern averaged concentrations. These averaged quantities, the so-called intrinsic averaged concentrations, defined as

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma = \frac{1}{V_\gamma} \int_{V_\gamma} c_{A\gamma} dV \quad \text{in the } \gamma\text{-phase} \quad (7)$$

$$\langle c_{A\omega} \rangle^\omega = \frac{1}{V_\omega} \int_{V_\omega} c_{A\omega} dV \quad \text{in the } \omega\text{-phase} \quad (8)$$

where  $V_\gamma$  and  $V_\omega$  represent, respectively, the volume of the  $\gamma$ -phase and the volume of the  $\omega$ -phase contained in the averaging volume  $V$ .

The macroscopic conservation equations which result from this upscaling cause the appearance of some effective coefficients that remain dependant of the microscopic features. These effective parameters are computed by solving closure problems on a unit cell which is representative of the microscopic geometry of the medium. In the general case, the averaging of the microscale transport equations leads to a two-equation model at the macroscale, since transport occurs in two phases. Such a formulation has never been derived yet for this kind of system and the counterpart of this improved description would be the high number of macroscopic effective coefficients that have to be computed. As a consequence, it is interesting in using simplified models of transport at the macroscale whenever it is possible. Thus, three one-equation models have been developed by considering relationships between averaged solute concentrations in each phase in various limit cases: the Local Equilibrium Assumption model (later referred to as LEA model), the Mass Transfer Limited Consumption model (MTLC model) and the Reaction Rate Limited Consumption Model (RRLC model). For further information on the development of these one-equation models, one can refer to [5] for the LEA model and to [6] for the MTLC and RRLC models. In the following section we will present these three models and their domain of validity in a  $Pe_m - Da_m$  diagram. In the last part we will show an example of application to the packed bed reactor (PBR) clogging.

## 2. One-equation models of transport at the Darcy-scale

We present three different one-equation models under a dimensionless form for describing mass transport at the macroscale: one local equilibrium model and two non-equilibrium models. The main common parameters of these models are the macroscale Péclet number  $Pe$  and Damköhler number  $Da$ . Some parameters remain dependant of microscopic features; they are computed by solving closure problems. The formulations of these models are briefly described below.

### 2.1. The local equilibrium assumption model

The first class of one-equation models is based on the assumption that the averaged concentrations of chemical in the fluid and biofilm can be considered to be in equilibrium so that we have  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega \simeq \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ . Consequently, averaged governing equations can be summed up and one can obtain a Darcy-scale description of solute transport in terms of a single averaged equation. The final closed form can be written as follows:

$$(\varepsilon_\gamma + \varepsilon_\omega) \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + Pe \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle v_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \nabla \cdot \left( D_{A,\text{eff}}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) - \varepsilon_\omega Da \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{1 + \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A\omega}}}, \quad (9)$$

where the effective dispersion tensor  $D_{A,\text{eff}}^*$  remain dependant of the microscopic features.

**2.2. The mass transfer limited consumption model**

If one assumes that the reaction rate is limited by the external mass transfer from the fluid-phase to the biofilm-phase, the solute is instantaneously consumed as soon as it penetrates inside the biofilm-phase. Thus, the concentration field in the  $\omega$ -phase is identically zero and concentration gradients occur only in the  $\gamma$ -phase, i.e.  $c_{A\gamma} = c_{A\omega} = 0$  at the fluid–biofilm interface and  $c_{A\omega} = 0$  in the  $\omega$ -phase. Under this assumption, the upscaled transport equation is the one shown below:

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + Pe \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle v_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) &= \nabla \cdot (D_{A,\text{eff}}^* \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) - \alpha_A \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \\ &+ \nabla \cdot (d_{A\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + (u_{A\gamma}^* - \nabla \varepsilon_\gamma) \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma). \end{aligned} \tag{10}$$

Four parameters still depend on the microscopic features: the effective dispersion tensor  $D_{A,\text{eff}}^*$ , the mass exchange coefficient  $\alpha_A$  and the two non-classical convective terms  $d_{A\gamma}^*$  and  $u_{A\gamma}^*$ .

**2.3. The reaction rate limited consumption model**

At last, if the reaction rate is limited by biodegradation kinetics and mass transfer inside the  $\omega$ -phase, which implies relatively low concentration gradients in the fluid-phase, we have  $c_{A\omega} = \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  at  $A_{\gamma\omega}$ . In such a situation, the microscopic concentration field in the biofilm can be directly related to the intrinsic averaged concentration in the  $\gamma$ -phase and the averaged transport equation is the following:

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + Pe \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle v_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \\ = \nabla \cdot (D_{A,\text{eff}}^* \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) - \eta_A \varepsilon_\omega Da \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{1 + \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A\omega}}}. \end{aligned} \tag{11}$$

Two parameters remain dependant on the microscopic features: the effective dispersion tensor  $D_{A,\text{eff}}^*$  and the effectiveness factor of the reaction  $\eta_A$ .

**2.4. Domains of validity of the one-equation models**

All these one-equation models are valid when the assumptions on which they are based are satisfied. The considered bio reactive transport phenomena in a porous medium including a biofilm-phase may be characterized by the two microscale dimensionless parameters defined by the porescale equations (Equations 1 and 2), namely, the microscale Péclet number  $Pe_m$  and the microscale Damköhler number  $Da_m$ . The first one characterizes the hydrodynamic conditions and the second one characterizes the biochemical conditions of the reactive transport. Figure 2 presents the domains of validity of each one-equation models in a  $Pe_m - Da_m$  diagram. These domain of validity have been established from the comparison between direct numerical simulations at the microscale and simulations performed with the one-equation models at the macroscale in a three-phase stratified system (see [6] for more details). One should note that even if the precise position of the frontiers of these

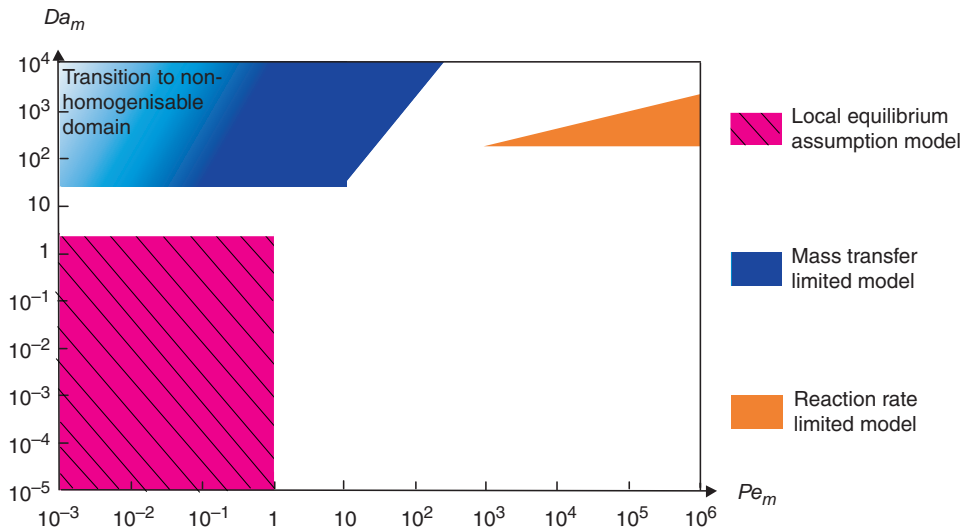


Figure 2. Domains of validity of the one-equation models of transport in a Péclet number–Damköhler number diagram.

domains are dependant on the porous medium geometry under consideration, the global repartition of these validity domains in the  $Pe_m - Da_m$  diagram is valid for any system. So the domains of validity of each model are the following:

- LEA model: The transport phenomena for which the local equilibrium conditions may be expected are the ones characterized by low values of  $Pe_m$  and  $Da_m$ .
- MTLC model: A high Péclet number  $Pe_m$  and a high Damköhler number  $Da_m$  with  $Da_m \gg Pe_m$  are required to verify the assumption on which this model is based. Indeed, in these conditions, the supply of substrate from the fluid-phase is very small compared to the solute consumption in the biofilm-phase.
- RRLC model: The model validity is assured for high Damköhler number  $Da_m$  and high Péclet number  $Pe_m$  with  $Pe_m \gg Da_m$  so that concentration gradients do occur in the biofilm-phase only, since in such cases fluid-phase is well-mixed in spite of the high reaction rate in the biofilm-phase.

Outside of these validity domains, the development of a two-equation model would be required for the modelling of the transport phenomena.

### 3. Application: operation of a PBR

In order to illustrate the use of such models, we study the case of a packed bed bioreactor with a column shape filled with regular beads on which a uniform biofilm is growing (such reactors are used in various applications, like denitrification and denitrification [7] or cell culture [8] for instance). The aim of this study is the modelling of concentration and biofilm volume fraction profiles both along the column when (i) the outlet concentration is stabilized (short time operation) and (ii) the clogging of the inlet is reached (long time operation). Figure 3 presents the

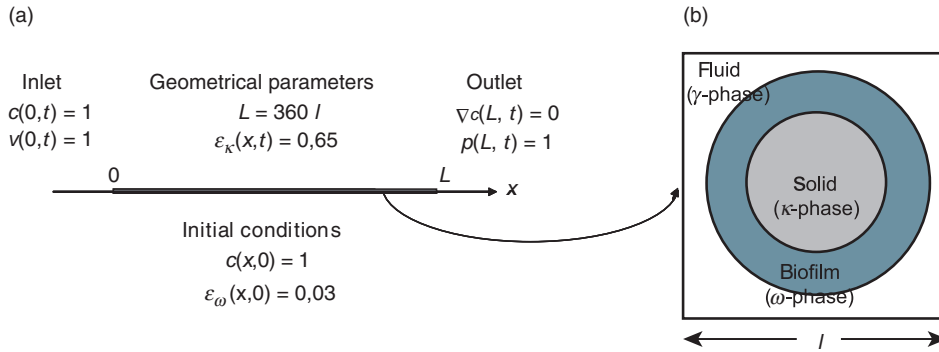


Figure 3. Features of the studied PBR (not to scale); (a) Macroscopic representation: one-dimensional column geometry; (b) Microscopic representation: two-dimensional cylindrical geometry.

main features of our problem, inspired by the case considered in [7]. We use the same reference length (namely  $l$ ) for the micro-scale and macro-scale dimensionless equations of transport, so here  $Pe_m = Pe$  and  $Da_m = Da$ . If at the pore-scale, the physical process will be two-dimensional as illustrated in Figure 3(b) (geometry used for solving the closure problems), at the column-scale associated to the one-equation models, it will be transient and one-dimensional. The time dependency of the PBR operation is analysed for various hydrodynamic and biochemical conditions (i.e. various Péclet numbers  $Pe$  and Damköhler numbers  $Da$ ). The following conditions of transport will be investigated: (i)  $Pe = 1$ ;  $Da = 1$  (LEA conditions), (ii)  $Pe = 10$ ;  $Da \gg 1$  (MTLC conditions) and (iii)  $Pe = 10^3$ ;  $Da = 10^6$  (RRLC conditions). For all these cases we will consider a large excess of substrate, i.e. a low dimensionless half saturation constant  $K_{A\omega} = 0.01$ .

We evolve the biofilm volume fraction along the reactor by coupling transport and biofilm growth equations. We consider an elementary heuristic growth model (inspired in [9]), which only takes into account growth and decay of bacteria, with a biomass density assumed to be constant. Note that there is one growth model associated to each transport model, since the growth rate is directly related to the consumption rate of the substrate.

$$\frac{\partial \varepsilon_\omega}{\partial t} = R_{A\omega}^i - F^i \varepsilon_\omega \tag{12}$$

$$\begin{aligned} \text{LEA} : R_{A\omega}^{\text{LEA}} &= \varepsilon_\omega G^{\text{LEA}} \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \\ G^{\text{LEA}} &= 10^{-6} Da; \quad F^{\text{LEA}} = 10^{-7} Da \\ \text{MTLC} : R_{A\omega}^{\text{MTLC}} &= G^{\text{MTLC}} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \\ G^{\text{MTLC}} &= 10^{-8} \alpha_A; \quad F^{\text{MTLC}} = 10^{-9} \alpha_A \\ \text{RRLC} : R_{A\omega}^{\text{RRLC}} &= \varepsilon_\omega \eta_A G^{\text{RRLC}} \frac{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \\ G^{\text{RRLC}} &= 10^{-6} Da \quad F^{\text{RRLC}} = 10^{-7} Da. \end{aligned} \tag{13}$$

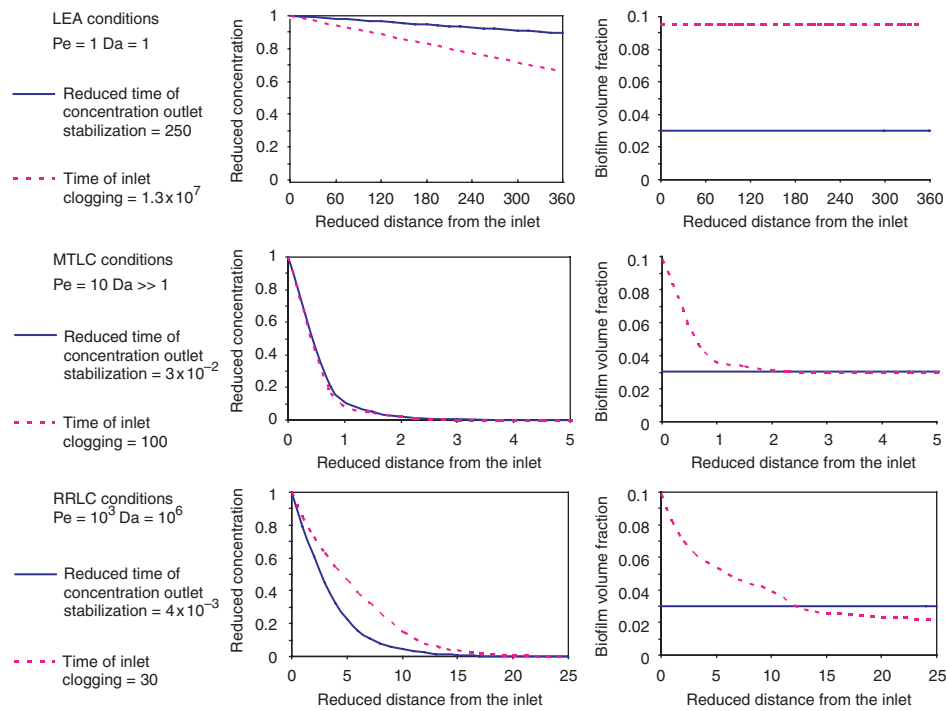


Figure 4. Concentration and biofilm volume fraction profiles in LEA, MTLC and RRLC conditions at the time of stabilization of the outlet concentration and at the time of clogging of the inlet.

The previous orders of magnitude are inspired by the data available in [6]. Then, we calculate the effective parameters of our one-equation models as functions of the biofilm volume fraction for the considered cylindrical unit cell. Once these correlations computed, we solve the coupled transient evolutions of the macroscopic substrate concentration and the biofilm volume fraction by using COMSOL Multiphysics. One can see in Figure 4 the concentration and volume fraction profiles computed in this way at the time of stabilization of the concentration at the reactor outlet and at the time of clogging. The time of stabilization of the outlet concentration is the time at which a quasi-steady state is reached relatively to the transport phenomena. One can note that in the LEA case the concentration at the outlet varies between the time of stabilization of outlet concentration and the time of clogging. In fact, before the stabilization time, the outlet concentration varies strongly in time. After this time, the time derivative of outlet concentration decreases of four order of magnitude: an asymptotical state is reached (data not shown), in which transport phenomena are in a quasi-steady state while biofilm volume fraction evolves in a larger time scale. In the non-equilibrium cases (RRLC and MTLC conditions), there is no decreasing of outlet concentration after the stabilization time since the stabilized outlet concentration is zero. The time of clogging of the inlet is arbitrarily fixed to the time at which 30% of the total porosity at the inlet is occupied by the biofilm-phase.



First, observation of the times required for reaching concentration stabilization or reactor clogging confirms that these strongly vary as a function of operating conditions. Between the LEA case and the RRLC case, for instance, the stabilization times of the concentration at the outlet differ of five orders of magnitude while the clogging times of the inlet differ of six orders of magnitude. These huge variations are due to the difference of magnitude of the convective effects (the Péclet number, which controls the supply of substrate  $A$ ) and the reactive effects (the Damköhler number, which controls the rate of conversion of substrate  $A$  into biomass) between the three considered cases.

When the outlet concentration is stabilized, the concentration variation between the inlet and the outlet is only of about 10% in the LEA case while it is of 100% in non-equilibrium cases, with a zero concentration at the outlet. At the inlet clogging time, we have the same kind of profiles, although the decreasing in the LEA case is more important, with about 20% of decreasing. From this point of view, the PBR seems to be more efficient in non-equilibrium regime, since the concentration drawdown is higher and quicker than in equilibrium conditions. But in non-equilibrium conditions, the concentration becomes zero very close to the inlet; so the operation of the PBR is far from its optimal point, and instabilities due to bacteria starvation might occur in long term operation. It should be emphasized also that there is no sensitive variation of biofilm volume fraction in the column for the different regimes at this point. This is due to the large difference of time scales between transport and growth processes.

When the reactor clogging is reached, on the contrary, biofilm volume fraction profiles are much more differentiated between the different operating conditions. In LEA case we have an almost constant increase of the volume fraction along the column, while in the MTLC case we have an increase only in the neighbourhood of the inlet, since further in the column there is no organic solute enough for feeding bacteria. In the RRLC case, we can even observe a decrease of the biofilm volume fraction after the inlet zone in which clogging occurs. This is due to the starvation of the bacteria. Such growth dynamics may involve instabilities in the operation of the system, and even lead to a complete disappearance of the bacterial population (data not shown).

As a conclusion, this numerical study suggests that if the more important concentration drawdown along the PBR is obtained for non-equilibrium transport conditions, the more stable operation is obtained in local equilibrium conditions.

#### 4. Conclusion

In this work, we have presented the development of one-equation models at the Darcy-scale for solute transport in a porous medium including a biofilm-phase, and their domain of validity in terms of hydrodynamic and biochemical conditions. Coupled with a model of biofilm growth, these models can be used for dimensioning and characterizing the optimal operating conditions of a system involving biofilms such as a bioreactor. Further work will be devoted to the development of a general two-equation transport model and to the rigorous upscaling of a more realistic biofilm growth equation.

## References

- [1] T.R. Ginn, B.D. Wood, K.E. Nelson, T.D. Scheibe, E.M. Murphy, and T.P. Clement, *Processes in microbial transport in the natural subsurface*, Adv. Water Resour. 25 (2002), pp. 1017–1042.
- [2] B.D. Wood and S. Whitaker, *Diffusion and reaction in biofilms*, Chem. Eng. Sci. 53-3 (1998), pp. 397–425.
- [3] R.D. Megee, S. Kinoshita, A.G. Fredrickson, and H.M. Tsuchiya, *Differentiation and product formation in molds*, Biotechnol. Bioeng. 12 (1970), pp. 771–801.
- [4] S. Whitaker, *The Method of Volume Averaging*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1999.
- [5] F. Golfier, B. Wood, L. Orgogozo, M. Quintard, and M.A. Buès, *Biofilms in Porous Media: Development of macroscopic transport equations via volume averaging with closure for local mass equilibrium conditions*, Adv. Water Resour. 32(3) (2009), pp. 463–485.
- [6] L. Orgogozo, F. Golfier, M.A. Buès, B.D. Wood, and M. Quintard, *Modelling of reactive transport processes in porous media including a biofilm phase in non equilibrium conditions*, Euromech colloquium 499 Nonlinear mechanics of multiphase flow in porous media, Nancy, 2008.
- [7] D.V. Vayenas, S. Pavlou, and G. Lyberatos, *Development of a dynamic model describing nitrification and nitritification in trickling filters*, Water Res. 31-5 (1996), pp. 1135–1147.
- [8] F. Meuwly, *Characterization of fibra-cel<sup>®</sup> packed-bed bioreactors for the culture of CHO cells*, Thesis report, Section of Chemistry and Chemical Engineering, cole Polytechnic Edrale de Lausanne, 2005.
- [9] P. Baveye and V.A. Valocchi, *An evaluation of mathematical models of the transport of biologically reacting solutes in saturated soils and aquifers*, Water Res. 25 (1989), pp. 1413–1421.

ORGOGOZO L., GOLFIER F., OLTEAN C., BUÈS M.A., WOOD B.D., QUINTARD M. (2009). - Numerical approach of bioreactive transport in porous medium including a biofilm phase. Poromechanics IV, Eds. H.I. Ling *et al.*, 71-76, DEStech Pub., ISBN 978-1-60595-006-8 (extrait).



## APPLICATION: DYNAMICS OF A PACKED BED BIOREACTOR

In order to illustrate the use of such models, we consider the case of a packed bed bioreactor (PBR) filled with regular beads on which a uniform biofilm is growing (such reactors are used in various applications, like denitrification or cell culture). The aim of this study is to model the breakthrough curve (BTC's) and the clogging of the PBR entrance as functions of time. Figure 2 presents the main features of our problem, inspired by the case studied in [5]. We consider the same reference length (namely  $l$ ) for the microscale and macroscale dimensionless equations of transport, so here  $Pe_m = Pe$  and  $Da_m = Da$ . If at the pore-scale, the physical process will be two-dimensional as illustrated in Figure 2b (geometry used for solving the closure problems), at the upper scale associated to the one-equation models, it will be transient and one-dimensional. The time-evolution of the PBR operation is analyzed for various hydrodynamic and biochemical conditions (*i.e.* various Péclet numbers  $Pe$  and Damköhler numbers  $Da$ ). The following conditions of transport will be investigated: (i)  $Pe = 1$  ;  $Da = 1$  (LEA conditions), (ii)  $Pe = 10$  ;  $Da \gg 1$  (MTLC conditions) and (iii)  $Pe = 10^3$  ;  $Da = 10^6$  (RRLC conditions).

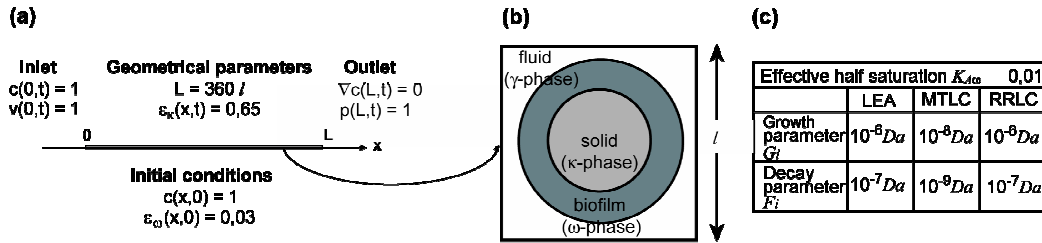


Figure 2. Features of the studied PBR (not to scale); (a) Macroscopic representation: 1D column geometry; (b) Microscopic representation: 2D cylindrical geometry (c) Parameters used for the calculations (inspired of the data available in [5])

We make evolve the biofilm volume fraction along the reactor by coupling our transport equations to the biofilm growth equation. We consider a simplified heuristic growth model (inspired of [6]), which only takes into account growth and decay of bacteria. The biomass density is assumed to be constant. The reaction term  $R_{A\omega}^i$  in Eq. (8) depends on the transport model under consideration.

$$\frac{\partial \epsilon_\omega}{\partial t} = G_i R_{A\omega}^i - F_{LEA} \epsilon_\omega \quad (0)$$

$$R_{A\omega}^{LEA} = \epsilon_\omega \frac{\langle c_{Ay} \rangle^y}{\langle c_{Ay} \rangle^y + K_{A\omega}} ; R_{A\omega}^{MTLC} = \langle c_{Ay} \rangle^y ; R_{A\omega}^{RRLC} = \epsilon_\omega \eta_A \frac{\langle c_{Ay} \rangle^y}{\langle c_{Ay} \rangle^y + K_{A\omega}} \quad (1)$$

Then, we calculate effective parameters of our models as a function of the biofilm volume fraction for the considered cylindrical unit cell. Once these correlations obtained, we solve the coupled transient evolutions of the macroscopic substrate concentration and the biofilm volume fraction by using COMSOL Multiphysics. One can see on Figure 3 the results of these calculations.

The stabilization times of the evolution of the BTC's differ of five orders of magnitude between the LEA case and the RRLC case, due to the difference of importance of convective and reactive effects in each case. One can note also that the concentration decrease is only of about 10% in the LEA case while it is of 100% in non-equilibrium cases. From this point of

view, the PBR seems to be more efficient in non-equilibrium regime, since the concentration drawdown is higher and quicker than in equilibrium conditions. However, in non-equilibrium conditions the solute concentration becomes equal to zero very close to the PBR inlet (data not shown), so we can expect a local starvation of bacterial population. It may induce instabilities in the PBR operation, since bacterial population may completely starve to death after a certain time. In a similar way, the time evolution of the permeability at the PBR inlet suggests that the clogging is far quicker in non-equilibrium conditions than in equilibrium conditions. That could be a severe drawback for the regular use of such a PBR.

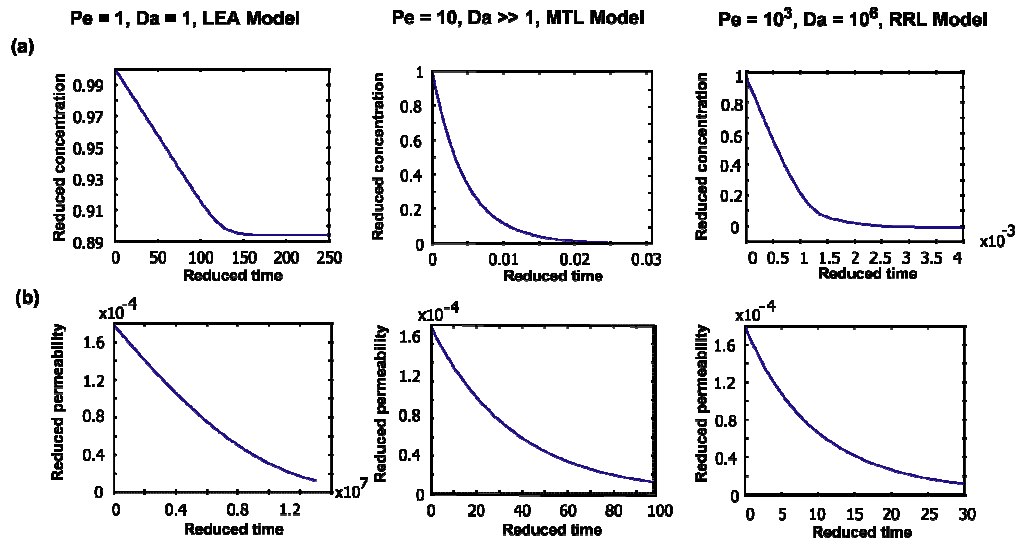


Figure 3. (a) Breakthrough curves in LEA, MTL and RRL conditions (b) Transient evolution of the permeability at the reactor inlet in LEA, MTL and RRL conditions in long term operation.

Due to the large difference between the time scales of transport and growth, BTC's presented in Figure 3 are obtained for almost constant volume fraction of biofilm (equal to 0.03).

As a consequence, if non-equilibrium conditions of use may lead to the highest concentration drawdown, the best process efficiency looks to be reached in equilibrium conditions.

## CONCLUSION

In this work, we have presented the development of one-equation macroscale models for solute transport in a porous medium including a biofilm phase. Coupled with a model of biofilm growth, it can be used to quantify the dynamics of a system involving biofilm in porous media. Further work will be dedicated to the development of a general two equation transport model and to the rigorous upscaling of a more realistic biofilm growth equation.

## REFERENCES (extract)

5. Vayenas, D.V., Pavlou, S., Lyberatos, G. 1996. "Development of a dynamic model describing nitrification and nitrification in trickling filters", *Wat. Res.*, 31(5): 1135-1147

## **CHAPITRE 7 : MODÈLE À DEUX ÉQUATIONS**

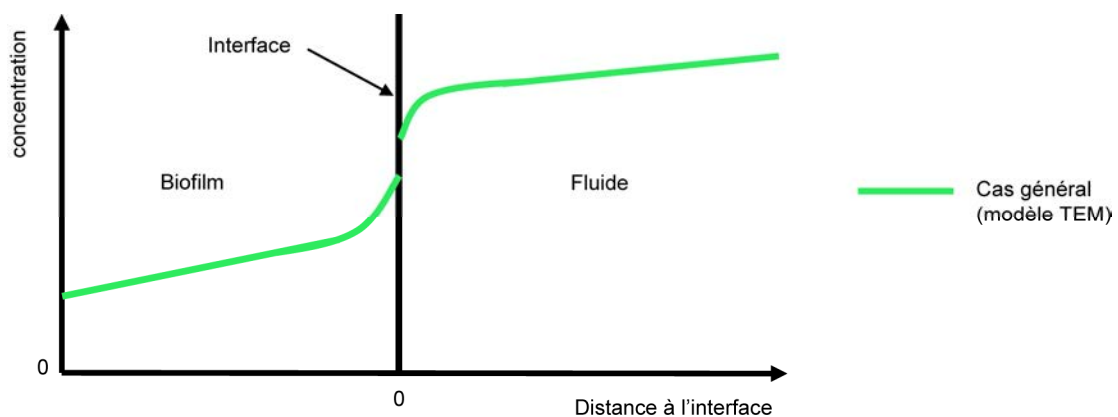




En absence d'hypothèses supplémentaires par rapport à celles formulées en 2.4 (du type limitation de la réaction par la cinétique ou le transfert de masse), le changement d'échelle conduit à développer un modèle à deux équations macroscopiques de transport, nommé le modèle TEM (Two Equation Model). Ce modèle, bien que plus complexe, devrait donner lieu en contrepartie à un domaine de validité plus étendu que ceux des modèles de non-équilibre à une équation.

## 7.1 Développement théorique du modèle TEM

Plaçons-nous dans le cas général, où des gradients de concentrations peuvent exister dans chacune des deux phases, fluide et biofilm. La Figure 31 présente le type de profil de concentration autour de l'interface fluide-biofilm qui sera considéré.



**Figure 31 : Profil de concentration microscopique autour de l'interface fluide-biofilm considéré pour le modèle TEM**

Le système d'équations gouvernant les champs de déviations  $\tilde{c}_{A\gamma}$  et  $\tilde{c}_{A\omega}$  s'obtient de manière classique, en soustrayant les équations macroscopiques de transport ouvertes (équations (32) et (33)) aux équations microscopiques (équations (26) et (27)). On montre ainsi (Annexe E) que ce système s'écrit :

Problème en déviation : phase  $\omega$

$$\begin{aligned} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} c_{B\omega}^* \frac{K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega}}{\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + K_{A\omega}\right)^2} = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) - \frac{1}{V_{\omega}} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) dA - \frac{1}{V_{\omega}} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) dA \end{aligned} \quad (165)$$

Problème en déviation : phase  $\gamma$

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \\ \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \frac{1}{V_{\gamma}} \int_{A_{\gamma\omega}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA - \frac{1}{V_{\gamma}} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA \end{aligned} \quad (166)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \underbrace{\nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (167)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \underbrace{\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (168)$$

$$\text{C.L.3} \quad \underbrace{\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} - K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}\right)}_{\text{source}} + \tilde{c}_{A\omega} = K_{A,eq} \tilde{c}_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (169)$$

$$\begin{aligned} \text{C.L.4} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \underbrace{\nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}_{\text{source}} = \\ \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \underbrace{\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \end{aligned} \quad (170)$$

Afin de linéariser le terme de réaction moyenné, l'hypothèse suivante, déjà utilisée dans les précédents modèles et l'obtention des équations macroscopiques ouvertes doit être formulée :

$$\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} \gg \tilde{c}_{A\omega} \quad (171)$$

Ce problème est tout à fait comparable à ceux étudiés par Cherblanc (1999) dans le cas du transport de polluant miscible en milieux poreux hétérogènes, ou par Ahmadi *et al.* (1998), dans le cas du transport en milieux poreux hétérogène avec adsorption si l'on fait abstraction du terme non linéaire de réaction. De manière similaire, on peut développer un modèle macroscopique à double-milieu (*e.g.* Lewandowska *et al.*, 2004), appelé aussi dans la

littérature des milieux hétérogènes modèles « mobile-immobile », la région immobile correspondant ici à la phase biofilm. Afin de conduire un tel développement, une hypothèse de fermeture prenant en compte les différents termes sources identifiés dans les équations (165) à (170) est formulée :

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\gamma} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (172)$$

$$\tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{b}_{A\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\omega} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (173)$$

On voit ici que la linéarisation du terme de réaction effectuée à l'aide de l'hypothèse (171) fait apparaître une difficulté non triviale pour l'écriture de l'hypothèse de fermeture puisqu'elle introduit un couplage direct entre le terme de déviation et le terme de concentration macroscopique dans le premier terme de l'équation (165). Afin de conserver une écriture du champ de déviation sous forme d'une décomposition linéaire dépendant des termes sources, nous introduirons l'hypothèse - forte - que les champs de fermeture  $\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}$ ,  $\mathbf{b}_{A\gamma\omega}$ ,  $\mathbf{b}_{A\omega\gamma}$ ,  $\mathbf{b}_{A\omega\omega}$ ,  $r_{A\gamma}$  et  $r_{A\omega}$  peuvent être considérés comme linéairement indépendants, malgré leur dépendance commune à  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$ , à travers les termes réactifs non-linéaires. En pratique, cela revient à supposer que les phénomènes réactifs ne sont pas trop importants comparés aux phénomènes convectifs et diffusifs. C'est la seule hypothèse supplémentaire effectuée pour l'établissement du modèle à deux équations, en plus de celles formulées pour arriver aux équations de transport macroscopiques ouvertes présentées dans le chapitre 2. En outre, un couplage avec les variables macroscopiques sera présent dans les problèmes de fermeture mais c'est le prix à payer pour traiter correctement la non linéarité. L'introduction des hypothèses de fermeture dans les équations de déviations (équations (165) à (170)) conduit à l'écriture de trois problèmes de fermeture (voir Annexe F) qui doivent être résolus sur une cellule unitaire représentative du milieu poreux et permet ainsi de donner une expression fermée des équations de transport macroscopiques. Pour l'établissement de ces problèmes de fermeture,

nous utilisons de manière classique des conditions de périodicité aux limites de la cellule et des conditions de moyennes nulles par phase (cf paragraphe 4.1).

*Problème de fermeture vectorielle I :*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A \left( \tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} \right) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} dA \quad (174)$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}'_{A\omega\gamma}}{\left( K_{eff,A}^{-1} + 1 \right)^2} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \quad (175)$$

$$C.L.1 \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (176)$$

$$C.L.2 \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (177)$$

$$C.L.3 \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (178)$$

$$C.L.4 \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (179)$$

$$C.L.5 \text{ (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (180)$$

$$C.L.6 \text{ (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (181)$$

$$C.L.7 \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (182)$$

$$C.L.8 \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (183)$$

*Problème de fermeture vectorielle II :*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (184)$$

Phase  $\omega$

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}'_{A\omega\omega}}{(K'_{eff,A}{}^{-1} + 1)^2} = \\ - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega} dA - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega} dA \end{aligned} \quad (185)$$

$$C.L.1 \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (186)$$

$$C.L.2 \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (187)$$

$$C.L.3 \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{D}_\Gamma + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (188)$$

$$C.L.4 \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (189)$$

$$C.L.5 \text{ (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (190)$$

$$C.L.6 \text{ (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (191)$$

$$C.L.7 \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (192)$$

$$C.L.8 \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (193)$$

Problème de fermeture scalaire

Phase  $\gamma$

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r'_{A\gamma}) = \nabla^2 r'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma} dA \quad (194)$$

Phase  $\omega$

$$\nabla^2 s_{A\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{(s_{A\omega} - 1)}{(K_{eff,A}^{-1} + 1)^2} = -\frac{1}{V_{\omega A_{\omega\gamma}(t)}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} dA \quad (195)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (196)$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r'_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (197)$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla s_{A\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (198)$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (199)$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (200)$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (201)$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (202)$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (203)$$

Avec

$$\begin{aligned} \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} &= \frac{\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}}{l_\gamma} \\ \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} &= \frac{\mathbf{b}_{A\omega\gamma}}{l_\gamma K_{A,eq}} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = \frac{K_{A,eq} \mathbf{b}_{A\gamma\omega}}{l_\gamma} \end{aligned} \quad (204)$$

$$s_{A\omega} = 1 + r_{A\omega} \quad ; \quad r'_{A\gamma} = K_{A,eq} r_{A\gamma} \quad (205)$$

$$K'_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega} \quad ; \quad \mathbf{D}_\Gamma = \frac{K_{A,eq} \mathbf{D}_{A\omega}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (206)$$

$$Da_A = \frac{\mu_{A\omega} \rho_\omega l_\omega^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (207)$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (208)$$

$$Pe = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| l_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (209)$$

avec la notation suivante :

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (210)$$

Il est important de noter que  $K'_{eff,A}$  dépend de la variable macroscopique  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$ . Comme cela été expliqué ci-dessus, ceci introduit un couplage entre le calcul du facteur d'efficacité et la résolution du problème de transport macroscopique. Si nous injectons maintenant les hypothèses de fermeture (172) et (173) dans les équations macroscopiques ouvertes (32) et (33), nous obtenons la forme suivante pour les équations macroscopiques fermées associées au modèle à deux équations :

*Équation de transport macroscopique fermée pour la phase biofilm  $\omega$  :*

$$\begin{aligned} \varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\ &- \alpha_A^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \\ &+ \nabla \cdot \left( \mathbf{d}_{A\omega}^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \right) - \left( \mathbf{u}_{A\gamma}^* + \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \right) \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{u}_{A\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \end{aligned} \quad (211)$$

*Équation de transport macroscopique fermée pour la phase fluide  $\gamma$  :*

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot \left( \varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\ &+ \nabla \cdot \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \right) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma - \left( \mathbf{u}_{A\omega}^* + \nabla \varepsilon_\omega \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \right) \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \\ &+ \alpha_A^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \end{aligned} \quad (212)$$

avec

$$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle + \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} \quad (213)$$

$$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle \quad (214)$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} r_{A\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} r_{A\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma r_{A\gamma} \rangle \quad (215)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\gamma}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA \right) - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \end{aligned} \quad (216)$$

$$\begin{aligned} \alpha_A^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega}) dA \right) \end{aligned} \quad (217)$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA \quad (218)$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \quad (219)$$

$$\mathbf{d}_{A\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA \quad (220)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\omega}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA \right) - \nabla \varepsilon_\omega \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \end{aligned} \quad (221)$$

$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*$ ,  $\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*$ ,  $\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^*$  et  $\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*$  représentent les tenseurs de dispersion effectifs associés aux concentrations  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  et  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$  dans les phases  $\gamma$  et  $\omega$ ,  $\alpha_A^*$  est le coefficient d'échange entre la



phase  $\gamma$  et la phase  $\omega$  et  $\mathbf{d}_{A\gamma}^*$ ,  $\mathbf{u}_{A\gamma}^*$ ,  $\mathbf{d}_{A\omega}^*$  et  $\mathbf{u}_{A\omega}^*$  sont des termes convectifs non-classiques. Il est important de garder à l'esprit que les calculs des coefficients effectifs sont couplés à l'équation de transport macroscopique à travers l'expression de  $K'_{eff,A}$ . Une tabulation des valeurs de ces coefficients en fonction des valeurs possibles de  $K'_{eff,A}$  peut permettre de surmonter ce problème.

*In fine*, on trouve un système d'équations de transport macroscopique présentant des ressemblances avec le modèle MTLC (coefficient d'échange interfacial du premier ordre, forme des termes non classiques) et le modèle LEA (terme de réaction macroscopique). De telles similitudes sont plus difficiles à établir dans le cas du modèle RRLC, car ce modèle est de type mixte (*cf.* paragraphe 4.1.2), et ne découle donc pas exclusivement d'une approche par prise de moyenne. Nous étudierons ces similitudes de manière plus approfondie en deuxième partie de ce chapitre. Tout comme dans le développement du modèle MTLC, notre approche conduit à une approximation du premier ordre pour les flux interfaciaux. Les remarques effectuées dans le paragraphe 5.1 concernant les limitations associées à une telle approximation sont également valables ici.

## **7.2 Calculs des paramètres effectifs de l'équation de transport macroscopique du modèle à deux équations**

Étudions brièvement les calculs des paramètres effectifs associés aux équations de transport macroscopiques dans le cadre du modèle TEM. En mettant en oeuvre des méthodes numériques similaires à celles utilisées pour la résolution du problème de fermeture associé au modèle LEA, des problèmes de convergence à fort Péclet peuvent apparaître. Ces difficultés ont nécessité une validation analytique et numérique rigoureuse des codes de calcul des

problèmes de fermeture, présentée en Annexe G. Dans la suite de ce paragraphe, les coefficients macroscopiques du modèle TEM et des modèles LEA et MTLC seront comparés, dans les domaines de validité de chacun de ces deux derniers modèles. Le dernier apport de ce chapitre est constitué par quelques calculs de coefficients effectifs dans le cadre du modèle TEM pour un milieu tridimensionnel simple de billes sphériques disposées en quinconce (géométrie analogue à celle utilisée pour le calcul du tenseur de dispersion du modèle LEA dans le paragraphe 3.2).

### 7.2.1 Comparaison avec le modèle MTLC

Plaçons nous dans les conditions de validité du modèle MTLC. Sous l'hypothèse de base de ce modèle, à savoir :

$$c_{A\gamma} = K_{A,eq} c_{A\omega} = 0, \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (222)$$

On a

$$c_{A\omega} = 0 \text{ dans } V_{\omega} \quad (223)$$

et il vient immédiatement :

$$\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} = \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} = 0 \quad (224)$$

Supposons de plus, par souci de simplification, que les gradients macroscopiques de concentrations soit négligeables, *i.e.* :

$$\nabla \varepsilon_{\gamma} = \nabla \varepsilon_{\omega} = 0 \quad (225)$$

Les équations macroscopiques de transport du modèle à deux équations deviennent alors :

Phase  $\omega$ : sans objet

Phase  $\gamma$

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \alpha_A^* K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \end{aligned} \quad (226)$$

On constate que le modèle TEM dégénéré conduit à une seule équation de transport macroscopique similaire dans sa forme à l'équation de transport du modèle MTLC simplifié (145). Afin de confirmer cette analogie, il reste à vérifier que les paramètres listés ci-dessous sont bien identiques, *i.e.* :

-  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$  <sup>MTLC</sup> et  $\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*$

-  $\mathbf{d}_{A\gamma}^*$  <sup>MTLC</sup> et  $\mathbf{d}_{A\gamma}^*$  <sup>TEM</sup>

-  $\mathbf{u}_{A\gamma}^*$  <sup>MTLC</sup> et  $\mathbf{u}_{A\gamma}^*$  <sup>TEM</sup>

-  $\alpha_A$  et  $-\alpha_A^* K_{A,eq}$

Les Figure 32, Figure 33 et Figure 34 décrivent l'évolution comparée de ces différents paramètres (ou de leurs composantes longitudinales dans le cas de vecteurs ou tenseurs) en fonction du nombre de Péclet pour une géométrie bidimensionnelle cylindrique du type de celle présentée en Figure 16 ( $\varepsilon_\gamma = 0.59$ ,  $\varepsilon_\omega = 0.11$ ). Afin que cette analyse ait un sens, on supposera une situation biochimique compatible avec l'hypothèse de base du modèle MTLC et permettant en outre une comparaison aisée des deux modèles ( $Da_A = 1000$ ,  $K_{eff,A} = 1000$ ,  $K_{A,eq} = 1$ ,  $\mathbf{D}_{A\omega} = 0.5\mathbf{I}$  et  $c_{B\omega}^* = 1$ ).

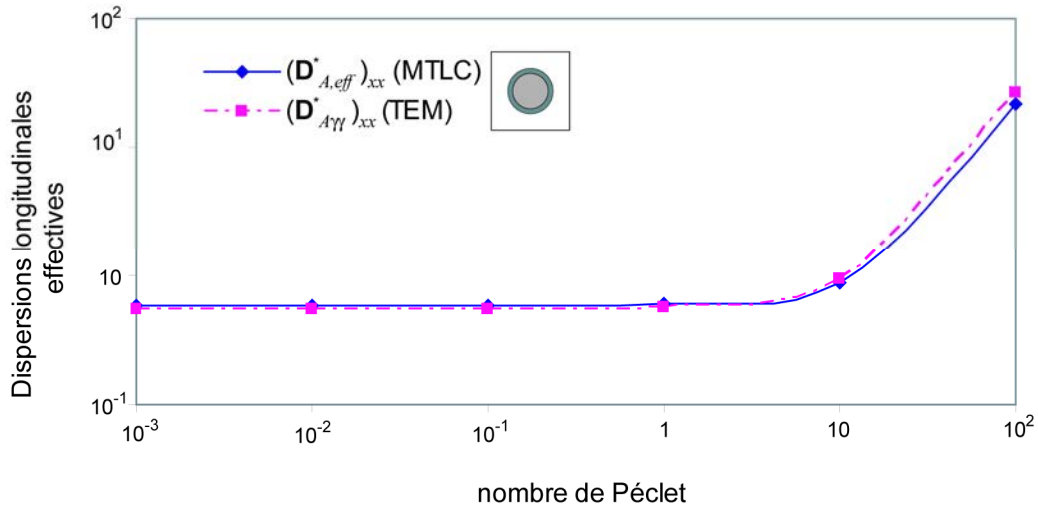


Figure 32 : Comparaison des dispersions longitudinales obtenues par le modèle MTLC et par le modèle TEM

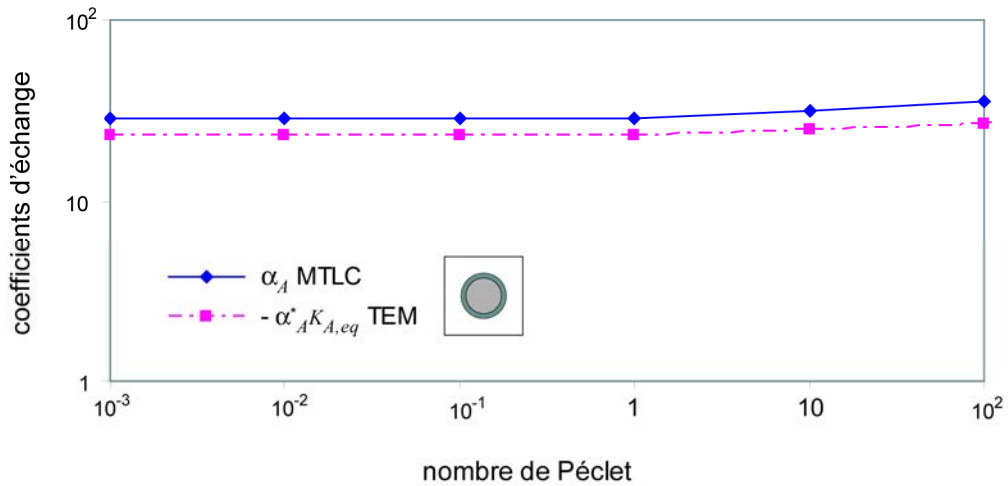
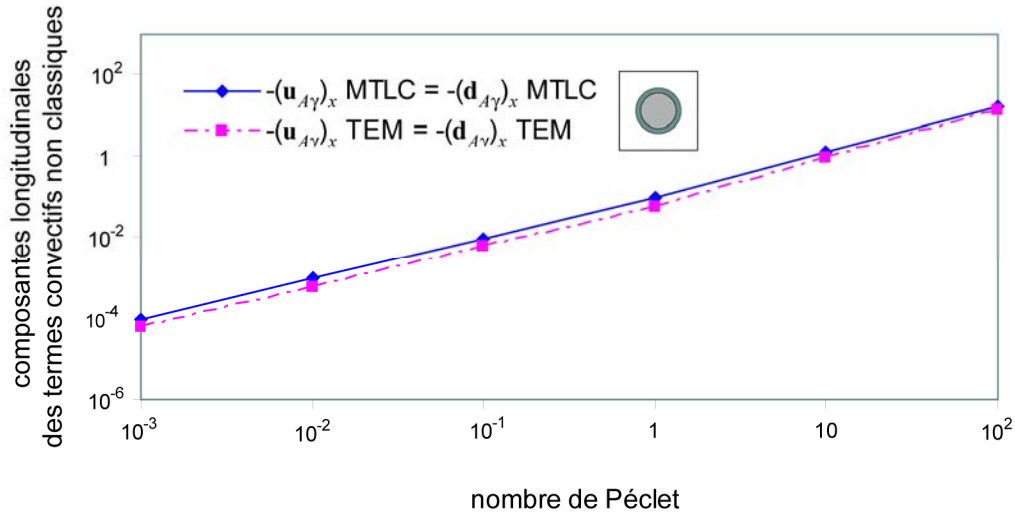


Figure 33 : Comparaison des coefficients d'échange obtenu par le modèle MTLC et par le modèle TEM



**Figure 34 : Comparaison des termes non classiques obtenus par le modèle MTLC et par le modèle TEM**

On constate que les valeurs des différents paramètres calculés par les deux modèles sont très proches, à l'exception du coefficient d'échange, pour lequel le modèle MTLC donne des valeurs légèrement supérieures à celles prédites par le modèle TEM. L'argument suivant peut toutefois être avancé pour justifier cette différence : le modèle MTLC se place dans le cas idéal où la totalité du soluté est consommée à l'interface ( $K_{A,eff} = \infty$ ), tandis que dans le modèle TEM subsiste toujours une couche limite dans la phase biofilm au niveau de l'interface où la concentration en soluté est non nulle ( $K_{A,eff} = 1000$ ). Les résultats ne sont présentés que sur une plage de nombre de Péclet de 1 à 100 car, pour cette configuration, à  $Pe_A = 1000$  et  $Da_A = 1000$  des problèmes de convergence apparaissent. Enfin on peut remarquer que dans les deux modèles les termes non classiques sont égaux ( $\mathbf{d}_{A\gamma}^{* MTLC} = \mathbf{u}_{A\gamma}^{* MTLC}$  et  $\mathbf{d}_{A\gamma}^{* TEM} = \mathbf{u}_{A\gamma}^{* TEM}$ ).

### 7.2.2 Comparaison avec le modèle LEA

Plaçons-nous maintenant dans le cadre du modèle LEA. Sous l'hypothèse d'équilibre de masse local, rappelée ci-dessous :

$$\{c_A\} \approx \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \approx K_{Aeq}^{-1} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (227)$$

Les deux équations macroscopiques de transport associées au modèle TEM peuvent être exprimées en fonction de la concentration moyenne  $\{c_A\}$  :

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} & \varepsilon_\omega K_{Aeq} \frac{\partial \{c_A\}}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{Aeq} \{c_A\}}{K_{Aeq} \{c_A\} + K_{A\omega}} \\ &= \nabla \left( (\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* + K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\omega\omega}^*) \cdot \nabla \{c_A\} \right) - \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \{c_A\} + \mathbf{u}_\omega^* \cdot K_{Aeq} \nabla \{c_A\} \end{aligned} \quad (228)$$

*Phase  $\gamma$*

$$\begin{aligned} & \varepsilon_\gamma \frac{\partial \{c_A\}}{\partial t} + \nabla (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \{c_A\}) \\ &= \nabla \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* + K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*) \cdot \nabla \{c_A\} \right) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \{c_A\} - \mathbf{u}_{A\omega}^* \cdot K_{Aeq} \nabla \{c_A\} \end{aligned} \quad (229)$$

En additionnant ces deux équations, on aboutit alors à une équation macroscopique similaire à l'équation de transport associée au modèle LEA, soit :

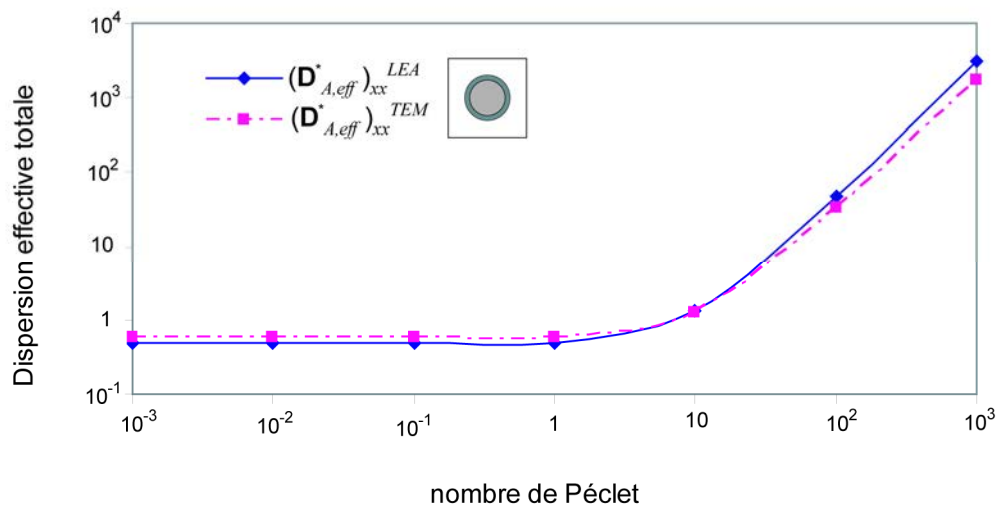
$$\begin{aligned} & (\varepsilon_\gamma + \varepsilon_\omega K_{Aeq}) \frac{\partial \{c_A\}}{\partial t} + \nabla (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \{c_A\}) \\ &= \nabla \left( \mathbf{D}_{A,eff}^{*TEM} \cdot \nabla \{c_A\} \right) - \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{Aeq} \{c_A\}}{K_{Aeq} \{c_A\} + K_{A\omega}} \end{aligned} \quad (230)$$

où le tenseur effectif  $\mathbf{D}_{A,eff}^{*TEM}$  est donné par :

$$\mathbf{D}_{A,eff}^{*TEM} = \mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* + K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\omega\omega}^* + \mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* + K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* \quad (231)$$

L'analogie est complète si le tenseur de dispersion du modèle LEA  $\mathbf{D}_{A,eff}^{*LEA}$  et le tenseur  $\mathbf{D}_{A,eff}^{*TEM}$  sont équivalents.

Afin de comparer ces deux tenseurs, les évolutions de leurs composantes longitudinales en fonction du nombre de Péclet pour la même configuration que précédemment sont tracées sur la Figure 35. On se place ici dans des conditions hydrodynamiques et de réactivité compatibles avec l'existence de l'équilibre de masse local ( $Da_A = 0.1$ ,  $K_{A,eff} = 1000$ ,  $K_{A,eq} = 1$ ,  $\mathbf{D}_{A\omega} = 0.5\mathbf{I}$  et  $c_{B\omega}^* = 1$ ).



**Figure 35 : Comparaison des dispersions longitudinales obtenues par le modèle LEA et par le modèle TEM**

Par rapport au modèle LEA, le modèle TEM prédit une dispersion longitudinale légèrement supérieure en régime diffusif, et légèrement inférieure en régime convectif. En effet, le modèle LEA minimise les échanges entre phases en régime diffusif puisque la situation d'équilibre est prise en compte directement dans le calcul du tenseur de dispersion. En revanche, en régime convectif, le modèle LEA surestime les échanges de la phase fluide vers la phase biofilm afin d'assurer le respect de la condition d'équilibre de masse local. Néanmoins, une correspondance satisfaisante entre les deux modèles peut être constatée.

### 7.2.3 Résultats pour une géométrie tridimensionnelle simplifiée

Les paramètres effectifs de transport du modèle TEM ont été calculés pour une géométrie tridimensionnelle simplifiée identique à celle considérée au paragraphe 3.2 : un réseau régulier de billes sphériques disposées en quinconce avec un biofilm d'épaisseur uniforme ( $\varepsilon_\omega = 0.11$  ;  $\varepsilon_\gamma = 0.31$ ). L'ensemble des valeurs des paramètres effectifs ont été calculées en fonction du nombre de Péclet  $Pe_A$  sur une plage de 0,01 à 100, pour des nombre de Damköhler  $Da_A$  égaux à 1 ou 1000 et pour des constantes de demi-saturation effectives  $K'_{eff,A}$  égales à 0,1 ou 10. Le coefficient de partition  $K_{Aeq}$  a été pris égal à 1 et le rapport des coefficients de diffusion entre les phases biofilm et fluide vaut 0,5. L'ensemble de ces résultats peuvent être consultés en annexe H. Ici, on présentera simplement l'évolution des composantes longitudinales et transversales du tenseur de dispersion effectif dans la phase fluide relatif à la concentration en soluté de la phase fluide  $\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*$  (Figure 36 et Figure 37) et l'évolution du coefficient d'échange de masse entre phase  $\alpha_A^*$  (Figure 38). Les longueurs de références  $l_\gamma$  et  $l_\omega$  sont égales au côté de la cellule unitaire.

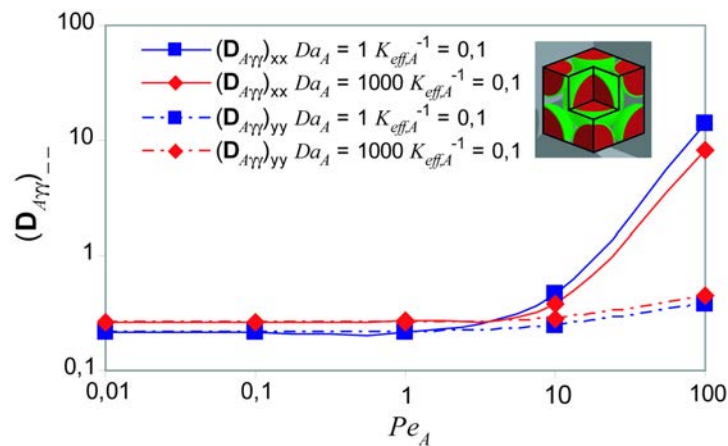
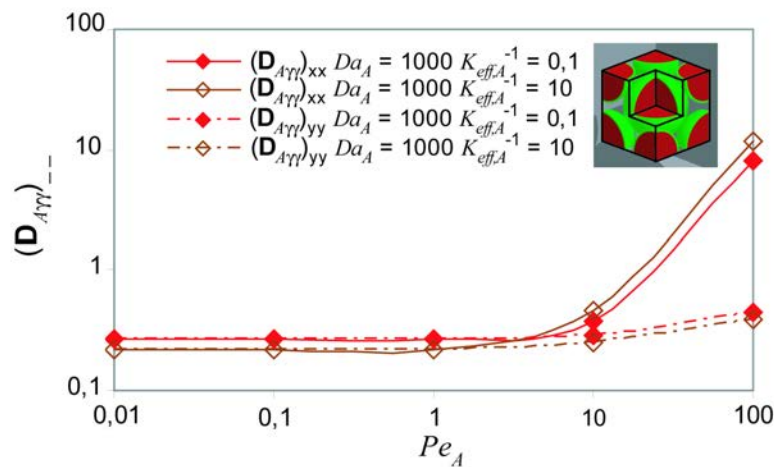


Figure 36 : Composantes longitudinales et transversales du tenseur de dispersion effectif dans la phase fluide de la concentration en soluté de la phase fluide  $\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*$  en fonction du nombre de Péclet  $Pe_A$  à saturation effective fixée ( $K'_{eff,A}^{-1} = 0,1$ ) pour différents nombres de Damköhler ( $Da_A = 1$  et  $Da_A = 1000$ ).



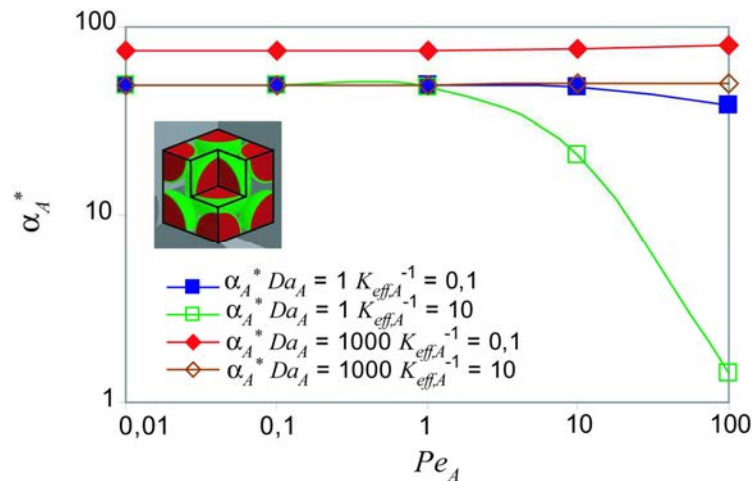
Dans l'ensemble, nous observons des résultats similaires à ceux qui avaient été obtenus pour la comparaison 2D entre dispersion passive calculée en régime d'équilibre locale et dispersion active calculée en régime de non-équilibre au paragraphe 4.2.1. L'augmentation du taux de réaction de biodégradation entraîne un accroissement des composantes longitudinales et transversales en régime diffusif, de par le renforcement des gradients de concentration. En régime convectif, si on assiste toujours à une augmentation de la dispersion transversale, on a, par contre, une diminution de la dispersion longitudinale (effet de retard classique en transport réactif dominé par la convection). Encore une fois (*cf.* Figure 11), un écart important peut être observé entre les dispersions longitudinale et transversale à fort nombre de Péclet. On peut donc de nouveau parler de comportement quasi-monodimensionnel sur cette plage.



**Figure 37 : Composantes longitudinales et transversales du tenseur de dispersion effectif dans la phase fluide pour la concentration en soluté de la phase fluide  $D_{A\gamma\gamma}^*$  en fonction du nombre de Péclet  $Pe_A$  à nombre de Damköhler fixé ( $Da_A = 1000$ ) pour différentes saturations effectives ( $K_{eff,A}^{-1} = 0,1$  et  $K_{eff,A}^{-1} = 10$ ).**

Dans le cas où le nombre de Damköhler est fixé et où la constante de demi-saturation effective varie, nous retrouvons le même comportement des différentes composantes du tenseur (même influence de la demi-saturation et du nombre de Damköhler). En effet, quand

la constante de demi-saturation effective augmente, les termes réactifs qui interviennent dans les différents problèmes de fermeture deviennent eux aussi plus importants. Cet effet d'augmentation des effets réactifs est similaire à celui observé dans le cas où, à constante de demi-saturation effective fixée, on augmente le nombre de Damköhler.



**Figure 38: Coefficient de transfert entre phase  $\alpha_A^*$  en fonction du nombre de Péclet pour différents couples (nombre de Damköhler  $Da_A$  ; demi-saturation effective  $K_{eff,A}^{-1}$ )**

Comme attendu, le coefficient de transfert de masse est une fonction croissante de l'importance de la réaction : il augmente donc avec le nombre de Damköhler et la demi-saturation effective. De par le contrôle diffusif du flux à travers l'interface, ce phénomène est très accentué en régime convectif.

### 7.3 Domaine de validité du modèle TEM

Il ne reste maintenant plus qu'à établir le domaine de validité du modèle TEM en fonction du régime hydrodynamique (représenté par le nombre de Péclet) et des conditions biochimiques (caractérisées par le nombre de Damköhler). Nous suivrons, cette fois encore, la

démarche adoptée précédemment pour l'établissement du domaine de validité des modèles RRLC et MTLC (même configuration géométrique, mêmes paramètres de transport).

Le système d'équations décrivant le problème de transport à l'échelle du pore est donné par les équations (63) à (72). Le problème de transport macroscopique adimensionné associé au modèle TEM est présenté ci-dessous.

*Phase  $\gamma$*

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial t'} + Pe_A \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x} &= \frac{\partial}{\partial x'} \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} \right) + \frac{\partial}{\partial x'} \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} \right) \\ &+ \frac{\partial}{\partial x} \left( (\mathbf{d}_{A\gamma}^*)_x \left( \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} \right) \right) - \alpha_A^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} \right) \\ &+ (\mathbf{u}_{A\gamma}^*)_x \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x} - (\mathbf{u}_{A\omega}^*)_x \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'}}{\partial x} \end{aligned} \quad (232)$$

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} \varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'}}{\partial t'} + \varepsilon_\omega Da_A \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'}}{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} + K_{A\omega}} &= \\ \frac{\partial}{\partial x} \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} \right) + \frac{\partial}{\partial x'} \left( (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'}}{\partial x'} \right) \\ &+ \frac{\partial}{\partial x} \left( (\mathbf{d}_{A\omega}^*)_x \left( \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} \right) \right) + \alpha_A^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} \right) \\ &- (\mathbf{u}_{A\gamma}^*)_x \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} + (\mathbf{u}_{A\omega}^*)_x \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'}}{\partial x'} \end{aligned} \quad (233)$$

auxquelles s'ajoutent les conditions limites suivantes

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} = 1 \text{ en } x' = 0 \quad (234)$$

$$\begin{aligned} &\frac{\partial}{\partial x'} \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} \right) + \frac{\partial}{\partial x'} \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial x} \left( (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'}}{\partial x'} \right) + \frac{\partial}{\partial x'} \left( (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*)_{xx} \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'}}{\partial x'} \right) \\ &= 0 \text{ en } x' = 10 \end{aligned} \quad (235)$$

$$\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma'} = \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} = 0 \text{ à } t' = 0 \quad (236)$$

et où les paramètres sont adimensionnés par

$$\begin{aligned} \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega'} &= \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}{c_0} ; \quad \alpha_A^{*'} = \frac{L^2 \alpha_A^*}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \\ (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*)_{xx}' &= \frac{(\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^*)_{xx}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; \quad (\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^*)_{xx}' = \frac{(\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^*)_{xx}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \\ (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*)_{xx}' &= \frac{(\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^*)_{xx}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; \quad (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*)_{xx}' = \frac{(\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*)_{xx}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \\ (\mathbf{d}_{A\gamma}^*)'_x &= \frac{L^2 (\mathbf{d}_{A\gamma}^*)_x}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; \quad (\mathbf{d}_{A\omega}^*)'_x = \frac{L^2 (\mathbf{d}_{A\omega}^*)_x}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \\ (\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^*)'_x &= \frac{L^2 (\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^*)_x}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; \quad (\mathbf{u}_{A\omega\gamma}^*)'_x = \frac{L^2 (\mathbf{u}_{A\omega\gamma}^*)_x}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \\ (\mathbf{u}_{A\gamma\omega}^*)'_x &= \frac{L^2 (\mathbf{u}_{A\gamma\omega}^*)_x}{\mathcal{D}_{A\gamma}} ; \quad (\mathbf{u}_{A\omega\omega}^*)'_x = \frac{L^2 (\mathbf{u}_{A\omega\omega}^*)_x}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \end{aligned} \quad (237)$$

La Figure 39, obtenue à partir de la comparaison des simulations directes et macroscopiques, cartographie le domaine de validité du modèle TEM ; les domaines de validité des modèles LEA, RRLC et MTLC sont également présentés, pour mémoire. La comparaison quantitative entre les courbes de percées ou les profils spatiaux établis par simulations directes et simulations moyennées est effectuée en considérant les moments d'ordre 0, 1 et 2 de chacune des distributions associés (distributions dérivées pour les courbes de percées, distributions directes pour les profils spatiaux de concentration). Le critère de validité adopté ici correspond à un écart relatif absolu inférieur à 2% pour les moments d'ordre 0 et 1, un écart relatif absolu inférieur à 4% pour le moment d'ordre 2. Le lecteur peut consulter en Annexe D les tableaux donnant les résultats complets de cette comparaison.

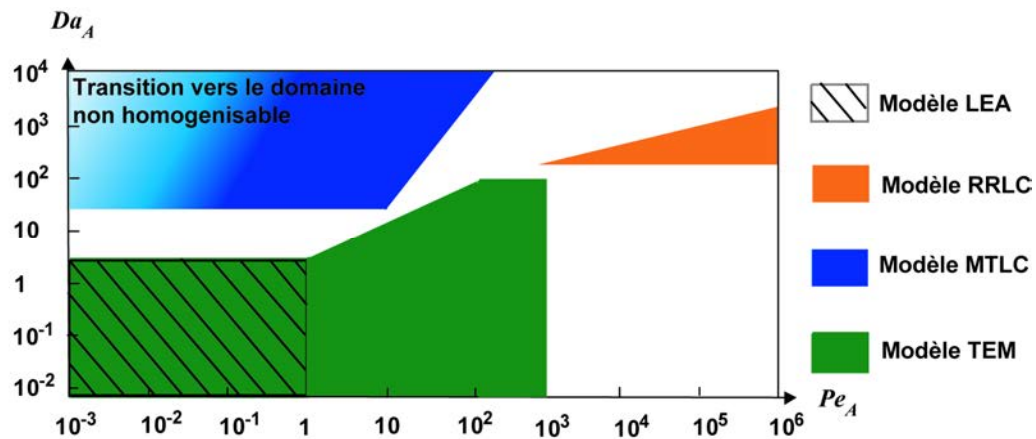


Figure 39 : Domaine de validité du modèle TEM dans un diagramme nombre de Damköhler - nombre de Péclet

Ce diagramme suggère que le modèle TEM est valide quand le nombre de Péclet et le nombre de Damköhler sont tous les deux inférieurs à 1 (domaine du modèle LEA), et quand le nombre de Damköhler est inférieur au nombre de Péclet, dans la limite des nombres de Péclet inférieurs à 1000 et des nombres de Damköhler inférieurs à 100 (à la précision près du positionnement des limites qui peuvent potentiellement dépendre du choix de la microstructure du milieu poreux). Ces restrictions s'expliquent de la manière suivante :

- Pour des nombres de Damköhler trop importants ( $Da_A \gg 100$ ), de forts gradients de concentration apparaissent au sein du domaine et la condition de faibles déviations n'est plus respectée, *i.e.*  $\tilde{c}_{A\omega} \equiv O(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega)$ . Dans ces conditions, le terme réactif ne peut pas être linéarisé ce qui induit des erreurs au niveau du modèle TEM.
- Pour des nombres de Péclet très importants ( $Pe_A \gg 1000$ ), les échelles de temps associées au processus diffusif (dans la phase biofilm) et convectif (dans la phase biofilm) diffèrent fortement. Il ressort de cette situation que l'hypothèse de quasi-stationnarité des champs de fermeture n'est plus valide et qu'un modèle de transfert de masse du premier ordre (coefficient de transfert de masse constant) n'est pas suffisant pour décrire un tel comportement. Un problème similaire est rencontré en transport en milieu poreux

hétérogène pour de forts ratio d'hétérogénéité (Parker et Valocchi, 1986 ; Golfier, 2001). L'introduction d'un coefficient de transfert de masse transitoire (Haggerty *et al.*, 2000) ou de modèles « *multi-rate* » (Moyné, 1996) pourrait probablement permettre de pallier cette difficulté mais au prix d'une lourde complexification du modèle. A notre connaissance, de tels modèles n'ont jamais été encore appliqués à des problèmes de transport réactif.

Ce domaine de validité est toutefois suffisamment étendu pour répondre à un grand nombre de situations, aussi bien dans le cadre des écoulements souterrains que dans celui des bio-process. En conclusion, nous avons présenté au cours de ces derniers chapitres différents modèles macroscopiques de transport bio-réactif dont les différents domaines de validité couvrent une large étendue du domaine potentiel d'étude des problèmes de biodégradation. D'un point de vue du formalisme théorique, leur conception - fort différente d'un modèle à l'autre - s'inscrit dans les problématiques actuelles rencontrées en changement d'échelle : modèle d'équilibre local, modèle à double-milieu avec cinétique du premier ordre, modèle de non-équilibre à une équation et modèle mixte. On peut rajouter à ces modèles de transport un autre modèle de non-équilibre local à une équation développé récemment par Davit *et al.*, (soumis). Dans l'esprit, ce type de modèle, initialement développé pour des problèmes de transport passif (Quintard *et al.*, 2001), est basé sur une approche asymptotique conduisant à récupérer le comportement au temps long du modèle à 2 équations sous réserve que les moments spatiaux de plus haut ordre puissent être négligés. Notons enfin qu'il reste des conditions hydrodynamiques et biochimiques (*cf.* Figure 39) pour lesquels aucun des modèles de transport par changement d'échelle développés dans ce travail ne parvient à simuler les phénomènes de transport macroscopiques de façon satisfaisante. Les raisons - déjà évoquées plus précédemment - sont diverses : conditions non-homogénéisables, écart entre les échelles de temps caractéristiques des processus de transport trop importante, domaines dans lesquels les variations des champs de déviations microscopiques sont de l'ordre de grandeur des termes macroscopiques.

**CHAPITRE 8 : EXTENSION DES MODÈLES DE TRANSPORT  
PAR CHANGEMENT D'ÉCHELLE AU CAS DU TRANSPORT  
COUPLÉ DE DEUX SOLUTÉS RÉACTIFS**





Intéressons nous maintenant au cas où le soluté  $B$  n'est pas en large excès, ce qui conduit à prendre en compte deux systèmes d'équations de transport couplées au niveau du modèle de transport à l'échelle du pore. Nous considérerons dans la suite que le soluté  $A$  est un soluté organique jouant le rôle de donneur d'électron vis-à-vis du métabolisme bactérien, et que le soluté  $B$  joue le rôle d'accepteur d'électron (type dioxygène ou nitrate). En règle générale, la disponibilité du soluté  $B$  est un facteur limitant de la réaction de biodégradation (e.g. : Cirpka *et al.*, 1999 ; Knutson *et al.*, 2006). Dans une telle situation, la modélisation des processus de transport requiert la prise en compte du couplage entre le transport des deux espèces. Ci-dessous, les deux problèmes microscopiques de transport couplés décrivant le système à l'échelle du pore dans une telle situation sont présentés :

*Transport du soluté A :*

*Phase  $\omega$*

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) - \mu_{A\omega} \rho_{\omega} \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} \quad (238)$$

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_{\gamma} c_{A\gamma}) = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) \quad (239)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = 0 \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (240)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (241)$$

$$\text{C.L.3} \quad c_{A\gamma} = K_{A,eq} c_{A\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (242)$$

$$\text{C.L.4} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma} \quad \text{sur } A_{\gamma\omega}, \quad (243)$$

*Transport du soluté B :*

*Phase  $\omega$*

$$\frac{\partial c_{B\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla c_{B\omega}) - \mu_{B\omega} \rho_{\omega} \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} \quad (244)$$

Phase  $\gamma$

$$\frac{\partial c_{B\gamma}}{\partial t} + \nabla(\mathbf{v}_\gamma c_{B\gamma}) = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma}) \quad (245)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla c_{B\omega} = 0 \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (246)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (247)$$

$$\text{C.L.3} \quad c_{A\gamma} = K_{B,eq} c_{A\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (248)$$

$$\text{C.L.4} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla c_{B\omega} = -\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma} \quad \text{sur } A_{\gamma\omega}, \quad (249)$$

Les notations relatives au soluté  $B$  sont similaires à celles utilisées pour le soluté  $A$ . Notons que le couplage entre ces deux systèmes d'équations apparaît explicitement à travers l'expression des terme réactif des équations (238) et (244) (cinétique de Monod double).

Ce chapitre se focalise sur l'adaptation des modèles précédemment développés à un tel problème couplé. Ce travail s'inscrit dans la continuité de l'analyse de Wood et Whitaker (2000), qui ont développé le transport couplé entre deux espèces chimiques à l'échelle inférieure, *i.e.* : de l'échelle de la cellule à l'échelle du biofilm et du pore. Il faut préciser cependant que nous n'envisagerons que les cas où les conditions hydrodynamiques et biogéochimiques sont les mêmes pour les 2 espèces (*i.e.* : nombre de Péclet et de Damköhler proches pour les solutés  $A$  et  $B$ ) de sorte que toutes deux soient régies par le même modèle de transport. Théoriquement, on pourrait tout à fait envisager par exemple le cas où le transport du soluté  $A$  correspond à des conditions d'équilibre local (modèle LEA) tandis que la dégradation du soluté  $B$  est limitée par le transfert de masse (modèle MTLC).

## 8.1 Modèle LEA pour le transport couplé de deux espèces chimiques

Comme les phénomènes réactifs n'interviennent pas dans la fermeture du modèle LEA, celui-ci est directement adaptable au cas du transport couplé de deux espèces. En effet, il suffit d'écrire les termes de réactions macroscopiques sous forme couplée et de résoudre les problèmes de fermeture pour chaque espèce chimique (qui *a priori* ont des paramètres de transport microscopique différents). Les équations de transport macroscopique associées au problème du transport couplé s'écrivent :

*Transport du soluté A*

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\gamma + K_{A,eq}\varepsilon_\omega)\{c_A\} = & -\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \{c_A\}) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \{c_A\}) \\ & - \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq}\{c_A\}}{K_{A,eq}\{c_A\} + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq}\{c_B\}}{K_{B,eq}\{c_B\} + K_{B\omega}} \end{aligned} \quad (250)$$

*Transport du soluté B*

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\gamma + K_{B,eq}\varepsilon_\omega)\{c_B\} = & -\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \{c_B\}) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{B,eff}^* \cdot \nabla \{c_B\}) \\ & - \varepsilon_\omega \mu_{B\omega} \rho_\omega \frac{K_{B,eq}\{c_B\}}{K_{B,eq}\{c_B\} + K_{B\omega}} \frac{K_{A,eq}\{c_A\}}{K_{A,eq}\{c_A\} + K_{A\omega}} \end{aligned} \quad (251)$$

avec

$$\begin{aligned} \mathbf{D}_{A,eff}^* = & (\varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} + K_{A,eq} \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega}) \\ & + \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) \\ & + K_{A,eq} \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega} dA \right) \Big] - (\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \rangle) \end{aligned} \quad (252)$$

et

$$\begin{aligned}
\mathbf{D}_{B,eff}^* &= (\varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{B\gamma} \mathbf{I} + K_{B,eq} \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{B\omega}) \\
&+ \mathcal{D}_{B\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{B\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{B\gamma} dA \right) \\
&+ K_{B,eq} \mathbf{D}_{B\omega} \cdot \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{B\omega} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{B\omega} dA \right) \Big] - (\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{B\gamma} \rangle)
\end{aligned} \tag{253}$$

Les champs de fermeture  $\mathbf{b}_{B\gamma}$  et  $\mathbf{b}_{B\omega}$  sont calculés en résolvant un problème de fermeture parfaitement identique à celui qui définit  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  et  $\mathbf{b}_{A\omega}$  (cf paragraphe 3.1), modulo les différences de paramètres microscopiques de transport (coefficient de diffusion dans l'eau, coefficient de partage entre phase, *etc.*). Le couplage entre les deux problèmes de transport ne s'effectue donc qu'à l'échelle macroscopique.

## 8.2 Modèle RRLC pour le transport couplé de deux espèces chimiques

Dans le cas du modèle RRLC, le calcul du tenseur de dispersion ne met pas en jeu les phénomènes réactifs. Une transposition directe de cette partie du modèle au cas du transport couplé de deux espèces est donc possible, sur le modèle de celle effectuée pour le modèle LEA. Il n'en va pas de même en revanche pour le calcul des flux interfaciaux. Ce point est développé ci-après.

### 8.2.1 Calcul des flux interfaciaux à l'échelle macroscopique

Sous l'hypothèse classique du modèle RRLC (équation (80)) pour les deux espèces, on peut écrire :

$$c_{A\omega} = K_{A,eq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^? \tag{254}$$

$$c_{B\omega} = K_{B,eq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \quad (255)$$

En considérant les définitions suivantes des facteurs d'efficacité :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA = \eta_A \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \quad (256)$$

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma}) dA = \eta_B \varepsilon_\omega \mu_{B\omega} \rho_\omega \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \quad (257)$$

Il vient (cf Annexe I)

$$\eta_A = \frac{(K_{eff,A} + 1)(K_{eff,B} + 1)}{\varepsilon_\omega Da_A K_{eff,A}} \int_{A_{\omega\gamma(t)}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{A\omega} dA \quad (258)$$

$$\eta_B = \frac{(K_{eff,A} + 1)(K_{eff,B} + 1)}{\varepsilon_\omega Da_B K_{eff,B}} \int_{A_{\omega\gamma(t)}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{B\omega} dA \quad (259)$$

Et

$$\eta_A = \eta_B = \eta \quad (260)$$

où l'on considère les grandeurs adimensionnées suivantes :

$$Da_A = \frac{l_\omega^2 \mu_{A\omega} \rho_\omega}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (261)$$

$$Da_B = \frac{l_\omega^2 \mu_{B\omega} \rho_\omega}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{B\omega}} \quad (262)$$

$$K_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \quad (263)$$

$$K_{eff,B} = \frac{K_{B\omega}}{K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \quad (264)$$

Le calcul des champs  $S_{A\omega}$  et  $S_{B\omega}$  nécessite la résolution des deux problèmes microscopiques présentés ci-après (cf Annexe I pour leur développement) :

*Problème microscopique pour le soluté A*

$$\nabla^2 S_{A\omega} = \frac{Da_A}{K_{eff,B}} \frac{S_{A\omega}}{\left(\frac{S_{A\omega}}{K_{eff,A}} + 1\right)} \frac{S_{B\omega}}{\left(\frac{S_{B\omega}}{K_{eff,B}} + 1\right)} \quad (265)$$

$$-\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \cdot S_{A\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (266)$$

$$S_{A\omega} = 1 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (267)$$

*Problème microscopique pour le soluté B*

$$\nabla^2 S_{B\omega} = \frac{Da_B}{K_{eff,A}} \frac{S_{A\omega}}{\left(\frac{S_{A\omega}}{K_{eff,A}} + 1\right)} \frac{S_{B\omega}}{\left(\frac{S_{B\omega}}{K_{eff,B}} + 1\right)} \quad (268)$$

$$-\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \cdot S_{B\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (269)$$

$$S_{B\omega} = 1 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (270)$$

En résolvant ce couple de systèmes, les deux facteurs d'efficacité nécessaires à la simulation du transport couplé peuvent être estimés.

### 8.2.2 Forme fermée du modèle RRLC pour le transport couplé de deux espèces

Les deux équations de transport couplées s'écrivent

*Soluté A*

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \\ &- \eta \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \end{aligned} \quad (271)$$

*Soluté B*

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{B,eff}^* \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) \\ &- \eta \varepsilon_\omega \mu_{B\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \end{aligned} \quad (272)$$

Les tenseurs de dispersion effectifs  $\mathbf{D}_{A,eff}^*$  et  $\mathbf{D}_{B,eff}^*$  sont donnés par :

$$\mathbf{D}_{A,eff}^* = \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} + \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \rangle \quad (273)$$

$$\mathbf{D}_{B,eff}^* = \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{B\gamma} \mathbf{I} + \mathcal{D}_{B\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{B\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{B\gamma} dA \right) - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{B\gamma} \rangle \quad (274)$$

Où les champs de fermeture  $\mathbf{b}_{B\gamma}$  et  $\mathbf{b}_{B\omega}$  sont calculés en résolvant un problème de fermeture exactement identique à celui qui définit  $\mathbf{b}_{A\gamma}$  et  $\mathbf{b}_{A\omega}$  (cf paragraphe 4.1), modulo les différences de paramètres microscopique de transports (coefficient de diffusion dans l'eau, ...).

Le facteur d'efficacité de la réaction est donné par :

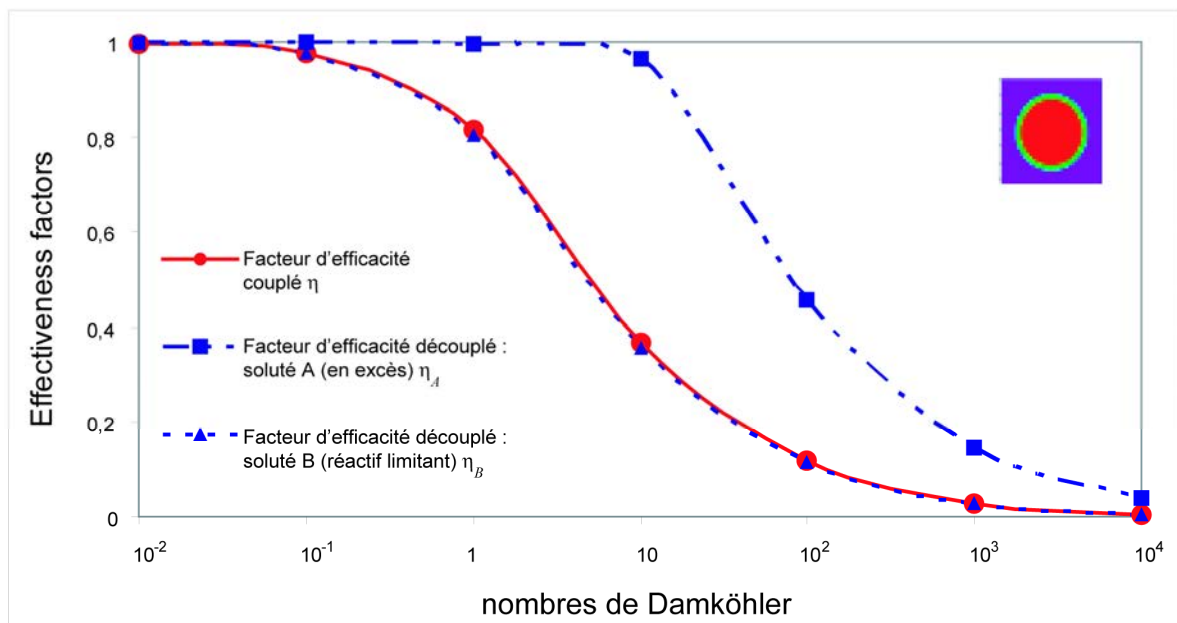
$$\eta = \frac{(K_{eff,A} + 1)(K_{eff,B} + 1)}{\varepsilon_\omega Da_A K_{eff,A}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{A\omega} dA = \frac{(K_{eff,A} + 1)(K_{eff,B} + 1)}{\varepsilon_\omega Da_B K_{eff,B}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{B\omega} dA \quad (275)$$

Où les champs  $S_{A\omega}$  et  $S_{B\omega}$  sont gouvernés par les deux problèmes couplés présentés en 8.2.1.

### 8.2.3 Comparaison entre facteur d'efficacité avec et sans couplage

Afin d'étudier l'effet du couplage sur le facteur d'efficacité, comparons l'évolution du facteur d'efficacité  $\eta$  en fonction des nombres de Damköhler  $Da_A$  et  $Da_B$  dans le cas où  $Da_A = Da_B$  pour un exemple de situation biochimique typique des zones proches des sources de contamination organiques en eaux souterraines : abondance de soluté organique A ( $K_{eff,A} = 0.1$ ) et pénurie d'accepteur d'électron B ( $K_{eff,B} = 10$ ). On utilise une procédure

numérique de résolution similaire à celle utilisée dans le cas non couplé (cf paragraphe 4.2.2), si ce n'est que comme deux sources de non linéarité sont présentes, deux boucles de Picard sont nécessaires au lieu d'une. On considère pour cette comparaison un milieu bidimensionnel cylindrique (cf. Figure 16, avec  $\varepsilon_\gamma = 0.59, \varepsilon_\omega = 0.11$ ). Cette comparaison est présentée en Figure 40.



**Figure 40 : Comparaison des facteurs d'efficacité couplés et découplés pour une géométrie bidimensionnelle cylindrique ( $\varepsilon_\gamma = 0.59, \varepsilon_\omega = 0.11$ ).**

La courbe de facteur d'efficacité couplé est confondue avec la courbe découplée dont les valeurs sont les plus basses (ici la courbe pour l'espèce A). Le système couplé suit donc le comportement de l'espèce dont la consommation est la plus limitée par le transfert de masse interne, en d'autres termes du réactif limitant.



### 8.3 Modèle MTLC pour le transport couplé de deux espèces chimiques

Dans le cas du modèle MTLC, le calcul du tenseur de dispersion ne met pas en jeu les phénomènes réactifs. De fait, il s'agit du même tenseur que pour le modèle RRLC. Une transposition directe de cette partie du modèle au cas du transport couplé de deux espèces est donc possible, sur le modèle de celle effectuée pour le modèle LEA. Le calcul des flux interfaciaux est plus délicat et ce point est développé en Annexe J. Ci-après est présentée l'expression couplée des équations macroscopiques de transport des solutés A et B dans le cadre du modèle MTLC.

*Soluté A*

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,\text{eff}}^* \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) - \alpha_A^L \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^{*L} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + (\mathbf{u}_{A\gamma}^* - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (276)$$

*Soluté B*

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{B,\text{eff}}^* \nabla (\langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma)) - \alpha_B^L \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{B\gamma}^{*L} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) + (\mathbf{u}_{B\gamma}^* - \mathcal{D}_{B\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \nabla (\langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (277)$$

Avec :

$$\text{Si } 0 < \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} < 1, \text{ alors}$$

$$\left( \alpha_A^L, \alpha_B^L \right) = \left( \alpha_A, \frac{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_A \right) ; \quad \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^{*L}, \mathbf{d}_{B\gamma}^{*L} \right) = \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^*, \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \mathbf{d}_{B\gamma}^* \right) \quad (278)$$

Sinon

$$\left( \alpha_A^L, \alpha_B^L \right) = \left( \frac{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_B, \alpha_B \right) ; \quad \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^{*L}, \mathbf{d}_{B\gamma}^{*L} \right) = \left( \frac{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \mathbf{d}_{A\gamma}^*, \mathbf{d}_{B\gamma}^* \right) \quad (279)$$

On peut donc prendre en compte le couplage sans résoudre de problèmes de fermetures différents par rapport aux cas non couplés. Néanmoins, la forme des équations macroscopiques de transport dépend des valeurs des variables macroscopiques  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  et  $\langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma$ , dans la mesure où c'est le réactif limitant de la réaction qui contrôle les flux interfaciaux. Ceci conduit à une résolution des équations macroscopiques par un processus itératif.

#### 8.4 Modèle TEM pour le transport couplé de deux espèces chimiques

Dans le cas du modèle TEM, les calculs de l'ensemble des paramètres effectifs mettent en jeu les phénomènes réactifs et donc le couplage entre les deux espèces. Une transposition directe du modèle au cas du transport couplé de deux espèces n'est donc pas possible. Considérons des hypothèses de fermetures identiques à celles utilisées dans le cas du transport non couplé :

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\gamma} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (280)$$

$$\tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{b}_{A\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\omega} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (281)$$

$$\tilde{c}_{B\gamma} = \mathbf{b}_{B\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{B\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + r_{B\gamma} \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega - K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (282)$$

$$\tilde{c}_{B\omega} = \mathbf{b}_{B\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{B\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + r_{B\omega} \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega - K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (283)$$

Les équations macroscopiques de transport découlant de ces hypothèses de fermeture sont présentées ci-après :

Équation de transport macroscopique fermée pour la phase biofilm  $\omega$ :

$$\begin{aligned} \varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}} \\ = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) - \alpha_A^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \\ + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\omega}^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) - (\mathbf{u}_{A\gamma}^* + \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{u}_{A\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \end{aligned} \quad (284)$$

Équation de transport macroscopique fermée pour la phase fluide  $\gamma$ :

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\ + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma - (\mathbf{u}_{A\omega}^* + \nabla \varepsilon_\omega \cdot \mathbf{D}_{A\omega}) \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \\ + \alpha_A^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (285)$$

avec

$$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle + \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} \quad (286)$$

$$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle \quad (287)$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} r_{A\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} r_{A\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma r_{A\gamma} \rangle \quad (288)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\gamma}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA \right) - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \end{aligned} \quad (289)$$

$$\begin{aligned} \alpha_A^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (r_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (r_{A\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (r_{A\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (r_{A\omega}) dA \right) \end{aligned} \quad (290)$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA \quad (291)$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \quad (292)$$

$$\mathbf{d}_{A\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA \quad (293)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\omega}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA \right) - \nabla \varepsilon_\omega \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \end{aligned} \quad (294)$$

et un système d'équations de transport macroscopique analogue existe pour le soluté  $B$ . On peut voir que les définitions des coefficients effectifs sont exactement identiques à celles utilisées dans le cas du transport non couplé. Les équations elles-mêmes sont similaires, si ce n'est l'expression du terme de réaction macroscopique dans la phase biofilm, qui prend en compte la cinétique de Monod double. Par contre, les problèmes de fermeture, impliquant des termes réactifs, sont modifiés de manière substantielle par la prise en compte du couplage entre les transports des solutés  $A$  et  $B$ . On peut les écrire sous les formes suivantes (cf Annexe K) :

*Problème de fermeture vectorielle I :*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA \quad (295)$$

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} &\nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A \left( \frac{K'_{eff,B} {}^{-1} \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}}{(K'_{eff,A} {}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,B} {}^{-1} + 1)} + G_{AB\gamma} \frac{K'_{eff,A} {}^{-1} \mathbf{b}'_{B\omega\gamma}}{(K'_{eff,B} {}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,A} {}^{-1} + 1)} \right) \\ &= - \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \end{aligned} \quad (296)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (297)$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (298)$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (299)$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (300)$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega\epsilon} \quad (301)$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma\epsilon} \quad (302)$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (303)$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (304)$$

*Problème de fermeture vectorielle II :*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (305)$$

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} & \nabla^2 \mathbf{b}_{A\omega\omega} - Da_A \left( \frac{K'_{eff,B} {}^{-1} \mathbf{b}'_{A\omega\omega}}{(K'_{eff,A} {}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,B} {}^{-1} + 1)} + G_{AB\omega} \frac{K'_{eff,A} {}^{-1} \mathbf{b}'_{B\omega\omega}}{(K'_{eff,B} {}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,A} {}^{-1} + 1)} \right) \\ &= -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA \end{aligned} \quad (306)$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (307)$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (308)$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{D}_\Gamma + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (309)$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (310)$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (311)$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (312)$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (313)$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (314)$$

*Problème de fermeture scalaire*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r'_{A\gamma}) = \nabla^2 r'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma} dA \quad (315)$$

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} \nabla^2 s_{A\omega} - Da_A \left( \frac{K'_{eff,B}{}^{-1} (s_{A\omega} - 1)}{(K'_{eff,A}{}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,B}{}^{-1} + 1)} + H_{AB} \frac{K'_{eff,A}{}^{-1} (s_{B\omega} - 1)}{(K'_{eff,B}{}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,A}{}^{-1} + 1)} \right) \\ = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} dA \end{aligned} \quad (316)$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (317)$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r'_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (318)$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla s_{A\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (319)$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (320)$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (321)$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (322)$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (323)$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (324)$$

Avec

$$\mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{B\omega\omega} = \frac{\mathbf{b}_{B\omega\omega}}{l_\gamma} \quad (325)$$

$$\mathbf{b}'_{B\omega\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{B\omega\gamma}}{l_\gamma K_{B,eq}} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\gamma}}{l_\gamma K_{A,eq}} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = \frac{K_{A,eq} \mathbf{b}_{A\gamma\omega}}{l_\gamma} \quad (326)$$

$$S_{B\omega} = 1 + r_{B\omega} \quad ; \quad S_{A\omega} = 1 + r_{A\omega} \quad ; \quad r'_{A\gamma} = K_{A,eq} r_{A\gamma} \quad (327)$$

$$K'_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{\langle \mathbf{c}_{A\omega} \rangle^\omega} \quad ; \quad K'_{eff,B} = \frac{K_{B\omega}}{\langle \mathbf{c}_{B\omega} \rangle^\omega} \quad (328)$$

$$Da_A = \frac{\mu_{A\omega} \rho_\omega l_\omega^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad ; \quad \mathbf{D}_\Gamma = \frac{K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\omega}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (329)$$

$$G_{AB\gamma} = \frac{\nabla \langle \mathbf{c}_{B\gamma} \rangle^\gamma K_{Beq} K_{A\omega}}{\nabla \langle \mathbf{c}_{A\gamma} \rangle^\gamma K_{Aeq} K_{B\omega}} \quad (330)$$

$$G_{AB\omega} = \frac{\nabla \langle \mathbf{c}_{B\omega} \rangle^\omega K_{A\omega}}{\nabla \langle \mathbf{c}_{A\omega} \rangle^\omega K_{B\omega}} \quad (331)$$

$$H_{AB} = \frac{(\langle \mathbf{c}_{B\omega} \rangle^\omega - K_{Beq} \langle \mathbf{c}_{B\gamma} \rangle^\gamma) K_{A\omega}}{(\langle \mathbf{c}_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle \mathbf{c}_{A\gamma} \rangle^\gamma) K_{B\omega}} \quad (332)$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (333)$$

$$Pe = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| \ell_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (334)$$

Avec la notation suivante :

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (335)$$

Les problèmes de fermeture associés au soluté  $B$  sont analogues.

On constate qu'on aboutit à des problèmes de fermeture microscopiques fortement couplés à l'évolution des grandeurs macroscopiques, non seulement à travers les constantes de demi-saturation effectives  $K'_{eff,A}$  et  $K'_{eff,B}$  comme c'était le cas dans le cas non couplé, mais aussi par les grandeurs adimensionnelles  $G_{AB\gamma}$ ,  $G_{AB\omega}$  et  $H_{AB}$ , qui font intervenir toutes les concentrations macroscopiques ainsi que leurs gradients. En outre, les problèmes de fermeture associés aux espèces  $A$  et  $B$  sont couplés entre eux, on ne peut donc pas utiliser la méthode de décomposition des variables pour parvenir à résoudre ces problèmes intégral-différentiels. En conclusion, on peut dire que l'utilisation du modèle TEM dans le cas du transport couplé de deux espèces chimiques nécessitera des développements numériques non triviaux.



## **CHAPITRE 9 : CONCEPTION D'UN MODÈLE EXPÉRIMENTAL**



La mise en place d'un modèle expérimental de transport en milieu poreux incluant une phase biofilm répond à deux objectifs principaux : (i) dans un premier temps, valider des modèles théoriques par comparaison entre résultats expérimentaux et résultats numériques et (ii) dans un second temps, étudier la dynamique des biofilms en milieu poreux par la mise en oeuvre conjointe des modèles théoriques et expérimentaux. Le processus de validation des modèles théoriques consiste donc à comparer des résultats observés expérimentalement et les résultats prédits numériquement sur une situation simple et bien contrainte. Si cette étape est franchie avec succès, *i.e.* : en termes d'adéquation entre théorie et expérience sur un cas simple, on peut envisager des situations plus complexes. Dans ce contexte, les écarts entre l'expérience et un modèle théorique dûment validé peuvent être significatifs de phénomènes et de processus non ou mal pris en compte dans le cadre théorique, *i.e.* : d'un mauvais choix des hypothèses de départ. En effet, nous pourrions dire pour paraphraser Badiou (1970) que tout modèle théorique « *n'est destiné qu'à son propre démantèlement, et que le procès scientifique, loin de le fixer, le déconstruit* ». Du point de vue de la progression des connaissances scientifiques, le couplage d'un modèle expérimental et d'une modélisation théorique n'a d'autre but que d'identifier les limites et lacunes de cette dernière, en vue bien sûr d'y remédier, ce qui conduit à améliorer la prise en compte de la physique des processus par la constitution d'une nouvelle modélisation théorique annulant et remplaçant l'ancienne.

En premier lieu, le modèle expérimental envisagé doit donc permettre la comparaison des résultats théoriques et expérimentaux, et pour cela nous devons pouvoir simuler numériquement les expérimentations à l'aide des modèles développés par changement d'échelle. Par conséquent, il faut non seulement procéder à l'acquisition des résultats expérimentaux eux-mêmes (concentrations en soluté), mais aussi savoir mesurer les paramètres nécessaires à l'utilisation des modèles macroscopiques précédemment développés (données de l'échelle du pore, conditions aux limites macroscopiques, ...). En outre, le

modèle expérimental doit être un modèle 2D, afin de pouvoir valider les modèles numériques tant pour les grandeurs longitudinales que transversales. Enfin, on a besoin d'un biofilm relativement homogène spatialement, afin de faciliter la simulation des expérimentations par les modèles développés par changement d'échelle. Vu la complexité de la mise en place d'un tel modèle expérimental, nous nous proposons dans un premier temps de nous focaliser sur le transport d'un soluté *non réactif*  $A$  en milieu poreux incluant un biofilm. Il est clair que dans les perspectives d'utilisation décrites précédemment, cela ne peut être qu'un premier pas vers la mise en place d'un modèle expérimental réactif mais il devrait déjà permettre de valider le modèle LEA, ainsi que le modèle TEM, pour un nombre de Damköhler nul. Le fait de considérer un transport non réactif simplifie considérablement la tâche en termes de paramètres à acquérir, néanmoins les problèmes à résoudre (microbiologiques, hydrodynamiques, métrologiques) dans le cas non réactif se posent aussi nécessairement dans le cas réactif. La mise en place d'un modèle expérimental non-réactif est donc une démarche préalable nécessaire à l'établissement d'un modèle expérimental réactif.

De nombreux modèles expérimentaux de transport en milieu poreux ont été développés dans les deux dernières décennies. Certains sont supposés monodimensionnels (réacteurs en colonne ou milieu poreux en cellule transparente), et fournissent donc essentiellement des données de transport sous forme de courbes de percée, ce qui ne permet pas d'étudier les paramètres de transport transversaux (*e.g.* : Clement *et al.*, 1997 ; Jewett *et al.*, 1999 ; José et Cirpka, 2004 ; Kim *et al.*, 2004 ; Leon-Morales *et al.*, 2004 ; Cunningham *et al.*, 2007 ; Seifert et Engesgaard, 2007) et introduit des hypothèses sur l'homogénéité du biofilm au sein du milieu (pas de canaux d'écoulement préférentiel). D'autres sont bidimensionnels (injection ponctuelle du substrat, ports d'injection distincts pour l'accepteur et le donneur d'électron), et peuvent être scindés en deux catégories au regard des objectifs du présent travail : (i) ceux qui conduisent à des mesures quantitatives en termes de

concentration en soluté uniquement en sortie du système (et éventuellement sur un échantillonnage discret de l'intérieur du système par un système de ports de prélèvement) et à des résultats qualitatifs au sein du domaine (*e.g.*: Thullner *et al.*, 2002 ; Vayenas *et al.*, 2002 ; Bauer *et al.*, 2008), et (ii) ceux qui permettent de caractériser les champs de concentrations spatiaux (*e.g.* : Kildsgaard et Engesgaard, 2002 ; Rockhold *et al.*, 2007 - on peut citer également Oates *et al.*, 2005. En effet, même si cette étude se penche sur un cas de population bactérienne planctonique, les techniques mises en œuvre sont très proches de celles utilisées pour l'étude du transport bidimensionnel avec biofilm). Le travail préparatoire à la mise en place d'un modèle expérimental de transport non réactif en milieu poreux incluant un biofilm présenté dans ce chapitre s'inspire en grande partie de ces trois derniers travaux. Dans Kildsgaard et Engesgaard, 2002, le transport d'ériauglocine dans un lit de sable saturé colonisé par un biofilm composé de populations bactériennes prélevées dans une station d'épuration d'eaux usées est observé par lumière réfléchiée. Dans Rockhold et al., 2007, le transport de bromophénol bleu dans un lit de quartz translucide partiellement saturé colonisé par un biofilm de *Pseudomonas Fluorescens* HK44 est observé par lumière transmise. Enfin, Dans Oates et al., 2005, le transport de Bleu Brillant dans un lit de cryolite saturé colonisé par un biofilm de *Pseudomonas Fluorescens* 5RL est observé par lumière transmise. On trouvera en Figure 41 une synthèse de la bibliographie expérimentale présentée dans ce paragraphe.

Études	Bactéries	Milieu poreux	Traceur	Mode d'observation
Clement et al, 1997	Consortium bactérien dénitrificateur isolé in situ en aquifère sédimentaire	Colonne de sols saturée	Nitrate	Ports d'acquisition discrets (entrée-sortie)
Jewett et al, 1999	<i>Pseudomonas fluorescens</i> P17	Colonne de sable quartzéux partiellement saturée	Cellules bactériennes	Ports d'acquisition discrets (entrée-sortie)
José et Cirkpa, 2004	Abiotique	Colonne de sable saturée	Fluorescéine	Ports d'acquisition discrets (répartis)
Kim et al, 2004	<i>Pseudomonas putida</i> F1 et <i>Thauera aromatica</i> T1	Colonne de sable saturée	Toluène	Ports d'acquisition discrets (répartis)
Leon-Morales et al, 2004	<i>Pseudomonas aeruginosa</i> SG81	Colonne de sable quartzéux saturée et micro-cellule d'écoulement remplie de sable saturé	Laponite colloïdale	Ports d'acquisition discrets (entrée-sortie)
Cunningham et al, 2007	<i>Pseudomonas fluorescens</i> / <i>Klebsiella oxytoca</i> / <i>Shewanella algae</i> BrY	Echelle du terrain (bio-barrière) Colonnes de sable saturées	Cellules bactériennes	Ports d'acquisition discrets (répartis)
Seifert et Engesgaard, 2007	Consortium bactérien de station d'épuration			
Vayenas et al, 2003	<i>Pseudomonas fluorescens</i>	Cellule d'écoulement remplie de sable saturé	5 polluants organiques (toluène, phénol, o-cresol, naphthalène et 1,2,3-triméthylbenzène)	Ports d'acquisition discrets (répartis)
Thullner et al, 2004	<i>Pseudomonas</i> PS+	Cellule d'écoulement remplie de billes de verre	Ions chlorures	Ports d'acquisition discrets (répartis)
Bauer et al, 2008	<i>Pseudomonas putida</i>	Cellule d'écoulement remplie de sable quartzéux saturée	Toluène	Ports d'acquisition quantitative discrets (entrée-sortie) ; observation qualitative des champs 2D
Kildsgaard et Engesgaard, 2002	Consortium bactérien de station d'épuration (après étape de dénitrification)	Cellule d'écoulement remplie de sable saturé	Eriarglocine	Observation quantitative des champs 2D
Rockhold et al, 2007	<i>Pseudomonas fluorescens</i> HK44	Cellule d'écoulement remplie de sable quartzéux partiellement saturé	Bleu de Bromophénol	Observation quantitative des champs 2D
Oates et al, 2005	<i>Pseudomonas fluorescens</i> 5RL (planctonique)	Cellule d'écoulement remplie de cryolite saturée		Observation quantitative des champs 2D

Figure 41 : Tableau de synthèse bibliographique sur les expériences de transport en milieu poreux incluant un biofilm.

On se propose également d'utiliser un modèle de milieu poreux constitué d'une cellule d'écoulement remplie de grains solides transparents saturée en eau, de coloniser ce milieu par un biofilm mono-espèce et de suivre le transport d'un traceur coloré par mesure d'absorption lumineuse au travers de ce milieu. Néanmoins, dans les travaux évoqués précédemment, deux objectifs de la modélisation expérimentale recherchés ne sont pas atteints : le contrôle (autant que faire se peut) du développement du biofilm et l'acquisition du champ de fraction volumique de biofilm. Il convient donc de développer un modèle expérimental spécifique qui puisse répondre pleinement à nos exigences.

Bien que ce modèle de transport non réactif en milieu poreux incluant une phase biofilm ne soit malheureusement pas encore totalement opérationnel, sa mise au point a occupé une part non négligeable de ce travail de thèse. Une large part du temps consacré à cette étude expérimentale ne ressortira d'ailleurs vraisemblablement pas à la lecture de ce chapitre (mise en place d'une salle d'expérimentation pour des milieux biologiques, optimisation sous COMSOL du positionnement des ports d'injection afin de favoriser le mélange au sein de la cellule, ...). À l'heure actuelle, toutefois, de substantielles avancées ont été effectuées dans sa conception, et c'est celles-ci que nous présenterons dans ce chapitre. En première partie, sont développées les contraintes auxquelles doit répondre le modèle expérimental recherché. Ensuite, quelques uns des tests effectués, puis le projet concret final ainsi défini et enfin l'état d'avancement actuel de celui-ci seront présentés. Ce développement expérimental est réalisé en collaboration avec le Laboratoire Chimie, Physique, Microbiologie et Environnement (LCPME, UMR 7564), qui apporte son expertise microbiologique à la réalisation du projet. Il s'inscrit également dans le cadre d'une collaboration (Financement sur 3 ans dans le cadre du programme EC2CO-CYTRIX : INSU-CNRS) avec le Laboratoire Hydrologie et Géochimie de la Surface (LHyGeS, UMR 7517), qui vise à comparer des

résultats expérimentaux de transport réactif en milieu poreux incluant un biofilm en milieu artificiel (cellule d'écoulement, LAEGO) et en milieu naturel (carotte de grès de Fontainebleau, LHyGeS).

## 9.1 Contraintes du modèle expérimental

### 9.1.1 Contraintes hydrodynamiques

#### a) Ecoulement et transport en milieu poreux bidimensionnel

Afin d'assurer un comportement hydrodynamique bidimensionnel, la longueur  $L_c$  et la largeur  $l_c$  de la cellule d'écoulement utilisée doivent être grandes devant sa hauteur  $z_c$ . Nous signifions par là qu'il faut au moins un ordre de grandeur de différence entre elles. Néanmoins, comme nous souhaitons procéder à des expériences en milieu poreux réelles, et non dans un modèle analogue de milieu poreux type Hele-Shaw, il faut aussi que la hauteur  $z_c$  soit grande devant le diamètre moyen des grains  $d$ . La perméabilité du milieu sera alors contrôlée par la granulométrie du milieu et non par son épaisseur totale. Il vient donc les contraintes suivantes sur les dimensions de la cellule d'écoulement :

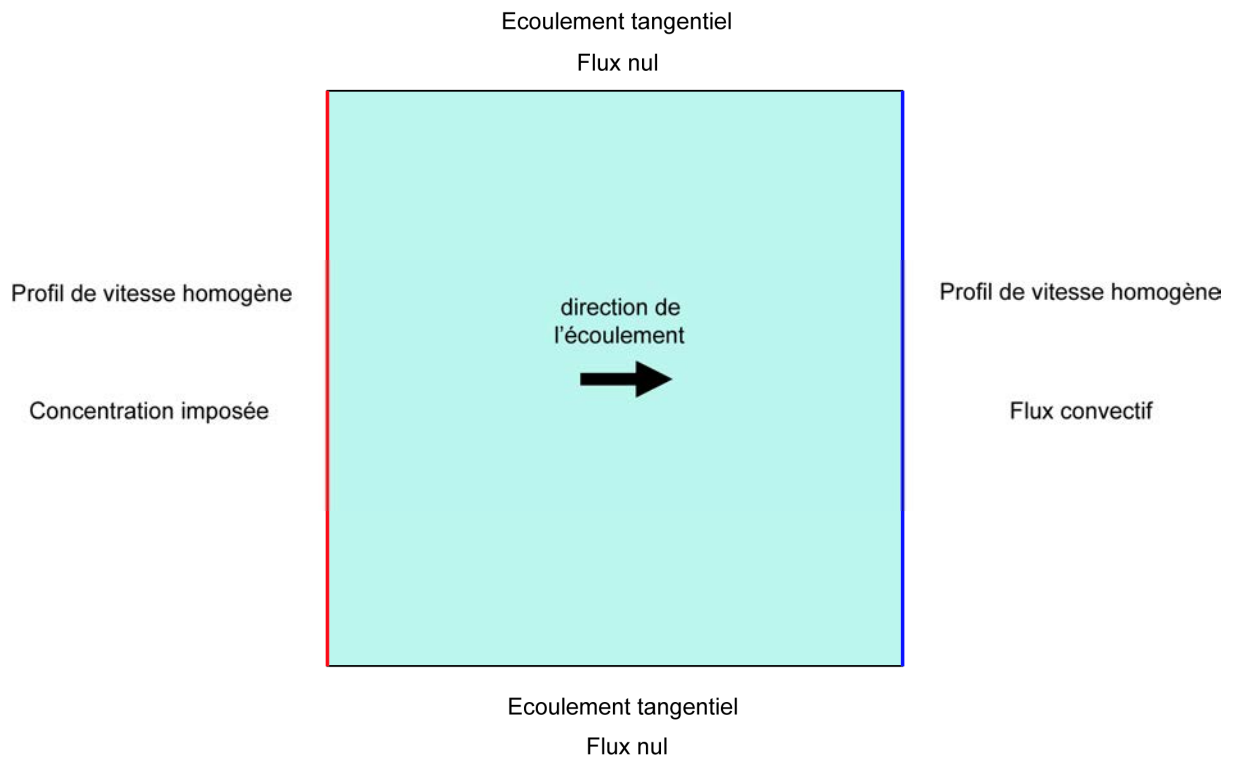
$$d \ll z_c \ll l_c, L_c \quad (336)$$

On prendra  $l_c = L_c$  dans la suite de ce travail, ce qui conduit à une cellule carrée.

#### b) Contrôle des conditions aux limites

D'autre part, nous cherchons à contrôler les conditions aux limites en termes d'écoulement et de transport tout autour de la cellule. La Figure 42 présente les conditions aux limites que l'on souhaite imposer au système.





**Figure 42 : conditions aux limites recherchées pour le modèle expérimental.**

Il faut donc que le montage expérimental vérifie ces conditions aux limites durant les expériences de transport.

### c) Contrôle des conditions de transport

Nous souhaitons étudier plusieurs situations de transport non-réactif (*i.e.* nombre de Damköhler nul) caractérisées par leur nombre de Péclet, afin de pouvoir tester la validité des deux modèles numériques adaptables au cas non-réactif : le modèle LEA et le modèle TEM. Il est donc nécessaire d'être en mesure de modifier la vitesse d'injection  $v_0$  dans la gamme adéquate pour pouvoir faire varier le nombre de Péclet sur la plus grande plage possible, et *a minima* entre 1 et 100. Si le diamètre moyen des grains  $d$  est pris comme longueur de référence à l'échelle du pore, le nombre de Péclet de pore  $Pe_{A,exp}$  associé au modèle expérimental s'écrit :

$$Pe_{A,\text{exp}} = \frac{d(v_0)_x}{D_{A\gamma}} \quad (337)$$

Le choix des grains constituant le milieu poreux et de la pompe assurant l'écoulement (*i.e.* le débit) doit permettre d'explorer la plus grande plage possible de nombre de Péclet.

#### d) Choix du traceur coloré

Le traceur coloré doit répondre aux trois exigences suivantes : (i) faible réactivité vis-à-vis des grains transparents constituant le milieu et vis-à-vis des parois de la cellule d'écoulement, (ii) faible réactivité vis-à-vis de la population bactérienne et (iii) forte miscibilité en milieu aqueux. Il doit, par ailleurs, avoir des propriétés d'absorption lumineuse suffisamment importante dans la gamme de concentrations à explorer. En outre, afin de permettre l'interprétation des mesures d'absorption lumineuse en terme de champ de concentration, cette absorption doit être régie par la loi de Beer-Lambert (*i.e.* la concentration en traceur ne doit pas être trop importante).

### 9.1.2 Contraintes microbiologiques

Concernant les contraintes biologiques, l'objectif est de cultiver un biofilm mono-espèce au sein du milieu poreux (et ce en vue du futur développement d'un modèle de transport réactif) afin de calculer le plus facilement possible les propriétés réactives macroscopiques du biofilm à partir des données de cinétiques de biodégradation mesurables (à savoir les propriétés des bactéries planctoniques - ou cinétiques intrinsèques - , *e.g.* : Wood et Whitaker, 1998). Il faut donc sélectionner une espèce bactérienne apte à se développer seule sous forme de biofilm. Pour des raisons évidentes, nous nous limiterons ici à des espèces non-pathogènes. D'autre part, il faut garantir la stérilité du montage tout au long de

l'expérience, afin d'éviter la colonisation par d'autres espèces bactériennes. Afin d'avoir une procédure reproductible, nous devons aussi être capable de contrôler le flux de nutriment dans la cellule d'écoulement et la température du milieu de croissance. Durant la phase de croissance du biofilm, en particulier, un débit d'injection relativement important du milieu nutritif<sup>3</sup> devra être imposé afin d'avoir croissance d'un biofilm compact et stable (du fait des taux de cisaillement importants et de la bonne disponibilité du substrat) et de limiter les gradients de croissance le long de la cellule d'écoulement dus à l'épuisement du milieu nutritif. La quantification de ce débit « relativement important » devra vraisemblablement être effectuée par tâtonnement, une fois le montage final réalisé, en fonction du taux de croissance bactérienne observé, des pompes à disposition, ... Nous chercherons aussi à obtenir un écoulement homogène dans la cellule (« écoulement piston » en absence d'hétérogénéité) ce qui devrait limiter les gradients de croissance transversaux tandis que l'inversion périodique du sens d'écoulement devrait limiter les gradients de croissance longitudinaux.

### **9.1.3 Contraintes métrologiques**

Afin de quantifier les champs spatio-temporels de concentrations obtenus par mesure d'absorption, le recours à une source lumineuse stable (spatialement et au cours du temps) est incontournable. En outre, l'information devra être recueillie par un capteur suffisamment précis pour détecter les variations d'intensité lumineuse provoquées par la présence du traceur coloré. Des outils du même acabit doivent être envisagés pour l'acquisition du champ de fraction volumique du biofilm. Pour observer la géométrie du milieu à l'échelle du pore et estimer l'épaisseur moyenne du biofilm, un matériel de microscopie adapté s'impose. Bien entendu pour mettre en œuvre toutes ces méthodes, il est nécessaire que les parois de la

---

<sup>3</sup> On désigne ainsi la phase aqueuse utilisée pour cultiver le biofilm et porteuse des nutriments et des autres

cellule d'écoulement comme les grains de milieu poreux soient transparents. La caractérisation de l'impact du développement du biofilm sur la transparence du milieu final sera un point à surveiller. En outre, aucun obstacle ne doit se trouver sur les chemins optiques liant la source lumineuse au capteur via la cellule d'écoulement.

## **9.2 Test d'acquisition des champs de concentration : choix du milieu poreux transparent**

À la lumière des contraintes évoquées précédemment, plusieurs types de grains transparents peuvent être retenus pour former le milieu poreux artificiel. Ainsi Rockhold *et al.*, 2007, utilisent un sable quartzé transparent et Oates *et al.*, 2005, utilisent des grains de cryolite (pour profiter de la proximité des indices optiques de l'eau et de la cryolite). Les travaux de Leis *et al.*, 2005, ont montré que le Nafion® (produit par Dupont de Nemours), un fluoropolymère utilisé comme membrane échangeuse d'ions dans certaines piles à combustibles, était un milieu particulièrement favorable au développement de biofilms. Ce qui rend ce milieu intéressant pour la présente application, c'est sa relative transparence (sur une épaisseur pouvant aller jusqu'à 3 mm) et la proximité de son indice optique avec celui de l'eau (1,333 pour l'eau et 1,35 pour le Nafion®). Enfin on peut aussi penser tout simplement à l'usage de billes de verre, avec ou sans ajustement de l'indice optique du milieu aqueux avec l'indice optique du verre (*e.g.* : Huang *et al.*, 2008).

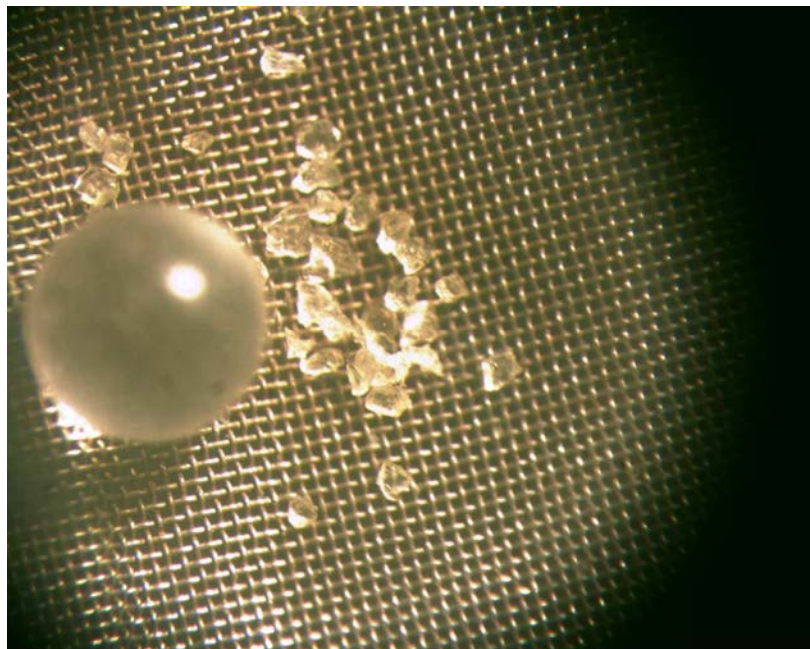
L'utilisation de tel ou tel milieu n'est toutefois pas anodine. La toxicité de la cryolite complique singulièrement son utilisation. De plus, le doute subsiste sur la capacité de la cryolite d'être colonisée facilement par un biofilm. Oates *et al.*, (2005) ont prouvé que des bactéries planctoniques peuvent vivre dans la phase aqueuse d'un milieu poreux saturé constitué de cryolite, mais rien n'indique à notre connaissance que l'interface cryolite-eau soit

---

substances nécessaires au métabolisme bactérien.

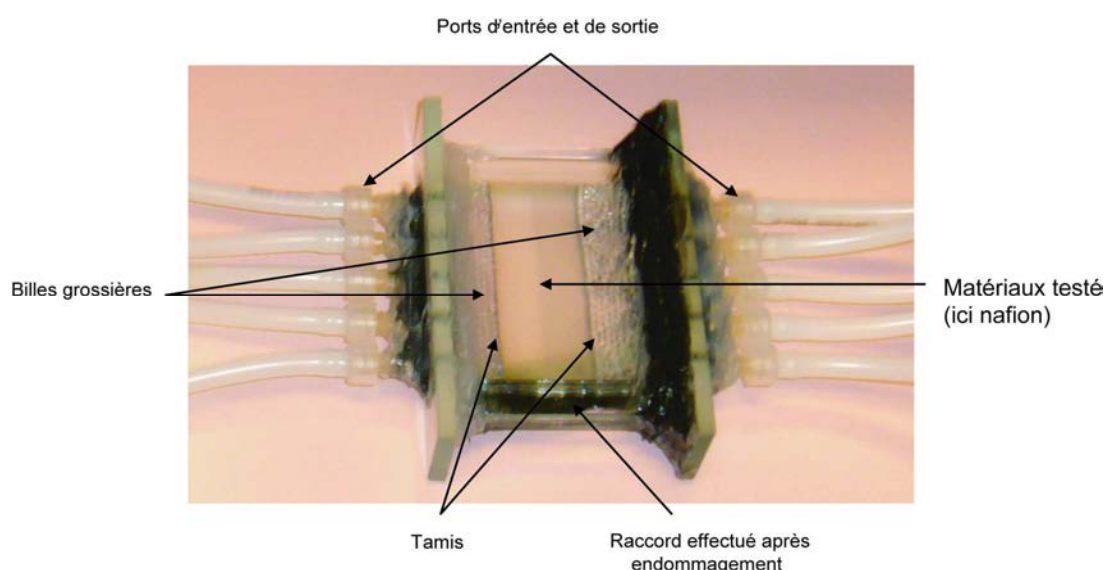
favorable au développement de biofilms. On exclut le milieu de sable quartzeux de par la relative difficulté de sa caractérisation géométrique tandis que la très grande réactivité du Nafion (il est utilisé généralement comme membrane échangeuse d'ions) doit être pris en compte dans le choix du traceur. Enfin la technique d'ajustement de l'indice optique du milieu aqueux à celui des billes de verre ne peut pas être envisagée. En effet, le caractère toxique des additifs à ajouter à la phase aqueuse (*e.g.* : Huang *et al.*, 2008) est incompatible - en l'état actuel des connaissances - avec une croissance bactérienne satisfaisante.

Deux options sont finalement retenues : (i) l'usage de billes de verre transparentes et (ii) l'usage de poudre de Nafion. Bien qu'on rencontre les mêmes problèmes de caractérisation géométriques pour la poudre de Nafion (il n'existe malheureusement actuellement à l'état commercial que sous forme de films ou de résidus de broyage) que pour le sable quartzeux, la proximité entre les indices optiques de l'eau et du Nafion contrebalance cette difficulté. On peut voir en Figure 43 une photo de grain de Nafion prise à la loupe binoculaire.



**Figure 43 : Photographie de grains de Nafion et d'une bille de verre (diamètre 2 mm) prise à la loupe binoculaire**

Afin de choisir entre ces deux possibilités, un test simple de suivi d'un transport de traceur a été réalisé dans chacun des deux milieux saturés d'eau distillée. Une cellule d'écoulement simplifiée a été construite pour mener à bien cet essai. Sur cette cellule parallélépipédique rectangulaire, cinq ports d'entrée et cinq ports de sortie constitués par des têtes d'aiguille de seringue alimentent l'écoulement. L'étanchéité est assurée par l'utilisation de joint mastic. La zone d'écoulement fait 6 mm d'épaisseur et 6 cm de large et de long. Les dessins techniques de cette cellule-test sont consultables en annexe L. La faible quantité de Nafion mise à notre disposition ne nous a pas permis de remplir entièrement la cellule avec les matériaux à tester. Nous avons donc procédé en remplissant le premier et le dernier tiers de la cellule par des billes de verre grossières de 2 mm de diamètre environ et en remplissant la partie centrale - la zone d'étude proprement dite - par le matériau à tester (bille de verre Retsch - produit 22.222.0002, classe granulométrique : 0,5 à 0,25 mm de diamètre, - ou Nafion® - 35-60 mesh Powdion, classe granulométrique : environ 0,3 mm de diamètre moyen). Les strates sont séparées par des tamis de 80 µm d'ouverture de maille. La Figure 44 présente cette cellule d'écoulement rudimentaire.

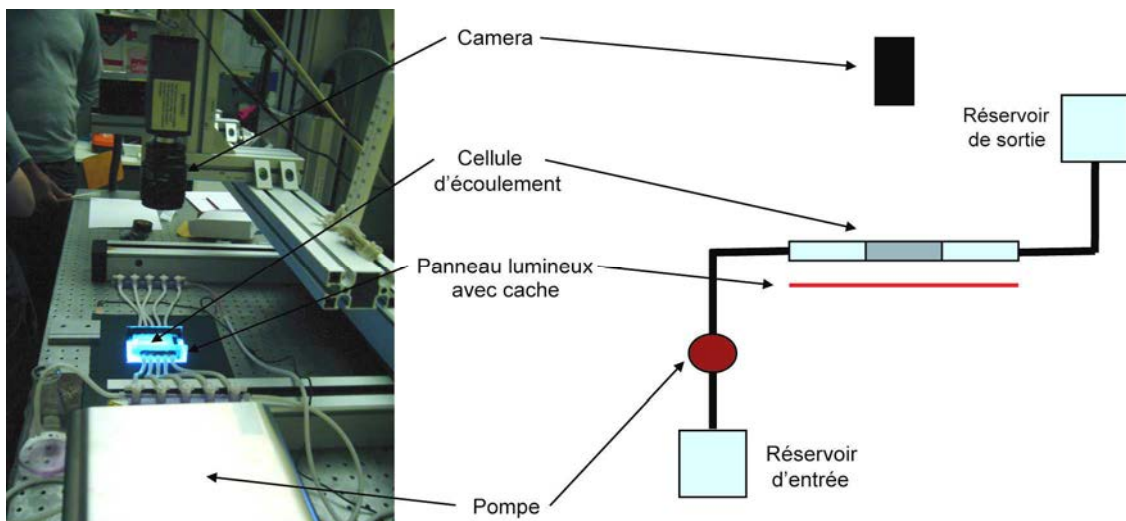


**Figure 44 : Photo de la cellule-test remplie de Nafion dans sa partie centrale et saturée d'eau.**

La première constatation faite est que les grains de Nafion dans le milieu saturé sont parfaitement invisibles bien que la transparence du milieu soit inférieure à celle des billes de verre.

L'essai de traçage a ensuite été suivi uniquement dans la partie centrale de la cellule, la division de la cellule étant effectué orthogonalement à la direction d'écoulement. La saturation de la cellule a été effectuée après un remplissage préalable au CO<sub>2</sub>, afin d'éviter la présence de bulles d'air piégées dans le milieu et diminuant la transparence de celui-ci (le CO<sub>2</sub> se dissolvant dans l'eau, des bulles se forment effectivement durant l'injection d'eau mais disparaissent au bout de 24 h sous flux d'eau distillée à un débit d'environ 1 mL.min<sup>-1</sup>). Lors de l'essai de traçage, l'alimentation du modèle est assurée par une pompe Ismatec MCP-Z Process IP 65 munie d'une tête magnétique Micropump (P/N 82092 1006 modèle O/C GA-X21.CFSB). Ce matériel permet d'obtenir des débits allant de l'ordre de 1 mL.min<sup>-1</sup> à 1 L.min<sup>-1</sup> environ. La solution utilisée pour le traçage est une solution de Rose Bengale B (CAS 632-69-9, longueur d'onde d'absorption maximale 548 nm – cf. « Conn's Biological Stains », 1977) à 10<sup>-5</sup> mol.l<sup>-1</sup>. Des tests préalables à l'aide d'un spectrophotomètre DR2000 ont montré que l'absorption lumineuse par le Rose Bengale B en solution dans l'eau distillée suit la loi de Beer – Lambert jusqu'à une concentration d'environ 2. 10<sup>-5</sup> mol.l<sup>-1</sup>. Le choix du Rose Bengale B a été dicté par la réactivité du Nafion. En effet, des premiers essais ont été menés avec la Rhodamine 6B (CAS 36877-69-7, longueur d'onde d'absorption maximale 548 nm – cf. « Conn's Biological Stains », 1977), chargée positivement en solution, et ont montré une très forte adsorption de la rhodamine sur le Nafion. On observe aussi une adsorption avec le Rose Bengale B, chargé négativement en solution, mais elle est beaucoup plus faible. Le Nafion est produit pour être utilisé en tant que membrane échangeuse d'ion, ce qui explique cette forte réactivité.

L'observation du transport est effectuée à l'aide d'un panneau lumineux Mascot Technology en tant que source lumineuse (complété par un cache en canson noir pour n'illuminer que la cellule d'écoulement) et une caméra HiSense MkII 12 bits équipée d'un objectif Micro-Nikkon 60 mm f/2,8D en tant que capteur de l'intensité lumineuse transmise. Le pilotage de la caméra est effectué à l'aide d'un processeur Dantec Dynamics (Flow Map System Hub) et la conversion des images en fichiers « texte » exploitables pour le dépouillement est effectuée sous Flow Manager (version 4.41.11). Le montage utilisé pour cet essai de traçage test est présenté sur la Figure 45.



**Figure 45 : montage utilisé pour les essais de traçage test.**

Le temps de séjour  $t_{sej}$  dans la cellule d'écoulement se calcule facilement en fonction du débit de la pompe  $Q_{pompe}$  et du volume  $V_{pore}$  de l'espace poral de la cellule. Le débit  $Q_{pompe}$  est fixé à environ  $1 \text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ , et nous estimons le volume de l'espace poral en faisant l'approximation que la phase solide est arrangée sous la forme d'un réseau cubique de sphères jointives : on trouve alors une porosité de 0,48 pour les deux milieux testés, billes de verre fines et Nafion (la porosité pour ce dernier milieu est vraisemblablement moindre compte tenu



de la forte hétérogénéité géométrique de ses grains). Le temps de séjour  $t_{sej}$  est alors donné par la formule :

$$t_{sej} = \frac{V_{pore}}{Q_{pompe}} \approx 10,3 \text{ min} \quad (338)$$

Nous l'arrondissons à la valeur entière supérieure, *i.e.* : à 11 min, pour la commodité de l'expérimentation. Les essais de traçage sont réalisés en injectant un créneau de solution de Rose Bengale B à  $10^{-5} \text{ mol.l}^{-1}$  pendant 1 temps de séjour, et nous suivons la propagation de ce signal échelon dans le système pendant 4 temps de séjours (temps d'injection inclu). Deux expériences de 44 minutes, avec à chaque fois une prise d'image toutes les 30 secondes sont donc suivies, ce qui fournit 264 images à traiter pour chaque essai. L'information est donnée par les images sous forme d'une matrice de niveau de gris (un par pixel), compris théoriquement entre 0 et 4095. En fait le « blanc » de la caméra (la réponse des capteurs dans l'obscurité totale) n'est pas nul, mais environ égal à 200 (cette valeur de bruit est spécifique à chaque caméra) ce qui réduit d'autant la gamme de niveau de gris pouvant être réellement utilisée. Nous adoptons ici une méthodologie de mesure des concentrations basée sur le suivi de l'absorption lumineuse. En effet, plus la concentration en colorant dans le milieu observé est élevée, plus l'absorption lumineuse est importante et donc plus le niveau de gris observé est bas. Afin de pouvoir convertir les niveaux de gris de ces images en concentrations, nous procédons pour chacun des deux essais à une calibration à trois points pixel par pixel. L'aspect principalement qualitatif à ce stade des mesures effectuées nous a conduits à nous limiter à 3 points de calibration). La valeur du coefficient de régression moyen ainsi obtenu est  $R^2= 0,83$  dans le cas du Nafion et  $R^2= 0,87$  dans le cas des billes de verres. Le milieu est initialement saturé avec une solution de concentration connue dans la gamme de validité de la loi de Beer-Lambert, et nous assignons à chaque pixel une correspondance entre le niveau de gris observé et la concentration injectée. Une telle corrélation repose sur la loi de Beer-

Lambert. En effet, le niveau de gris  $CCD(i, j)$  du pixel  $(i, j)$  et le flux lumineux incident  $I(i, j)$  - [ $\text{W.m}^{-2}$ ] - auquel il est soumis peuvent être reliés de la manière suivante (e.g. : Felder, 2003) :

$$CCD(i, j) = B(i, j)I(i, j)^{\gamma(i, j)} \quad (339)$$

où les champs  $B(i, j)$  et  $\gamma(i, j)$  sont des constantes dépendant de l'éclairage, de la cellule et du capteur. La loi de Beer Lambert s'écrit alors sous la forme

$$I(i, j) = I_0(i, j)e^{-\alpha l(i, j)c(i, j)} \quad (340)$$

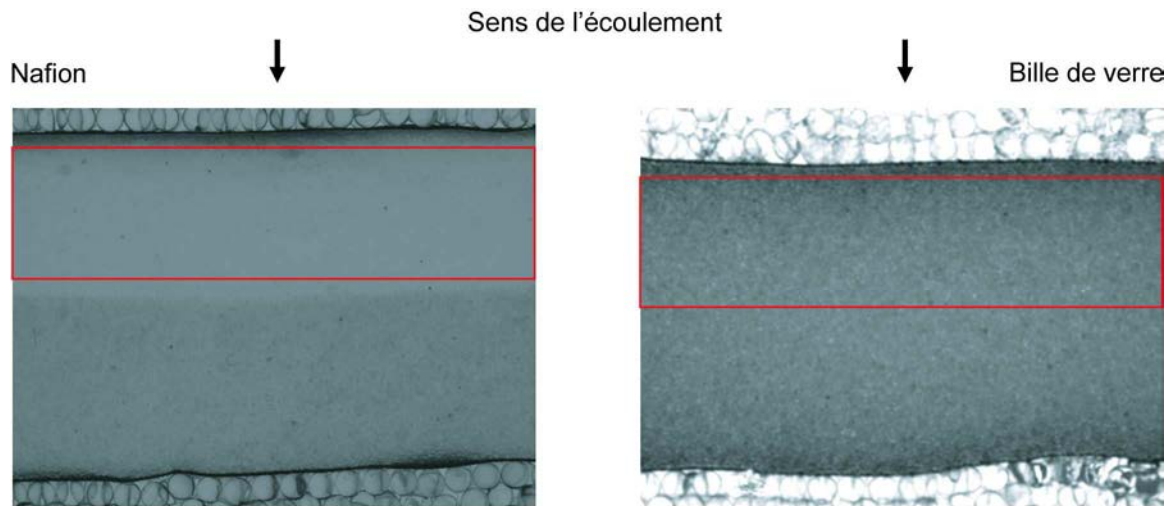
où  $I_0(i, j)$  est le flux lumineux obtenu pour une concentration nulle de colorant dans la cellule,  $\alpha$  - [ $\text{m}^2.\text{mol}^{-1}$ ] - est le coefficient d'absorption molaire du colorant considéré,  $l(i, j)$  - [m] - est la longueur du trajet optique passant dans la phase fluide, et  $c(i, j)$  est la concentration moyenne en colorant dans la phase fluide - [ $\text{mol.m}^{-3}$ ]. Il vient alors facilement que :

$$c(i, j) = -\frac{1}{\alpha l(i, j)\gamma(i, j)} \ln\left(\frac{CCD(i, j)}{CCD_0(i, j)}\right) \quad (341)$$

*In fine*, pour chaque pixel, une corrélation linéaire existe entre le logarithme du niveau de gris et la concentration moyenne. Ainsi, en mesurant pour chaque pixel le niveau de gris pour trois concentrations de colorant différentes (en l'occurrence  $0 \text{ mol.l}^{-1}$ ,  $5.10^{-6} \text{ mol.l}^{-1}$  et  $10^{-5} \text{ mol.l}^{-1}$ ) et en opérant une régression linéaire type moindres carrés entre concentration et intensité lumineuse, une relation de corrélation, définie pixel par pixel, peut être établie entre ces deux paramètres. La calibration ainsi obtenue permet de convertir les images brutes en niveaux de gris en champs de concentrations spatiaux 2D.

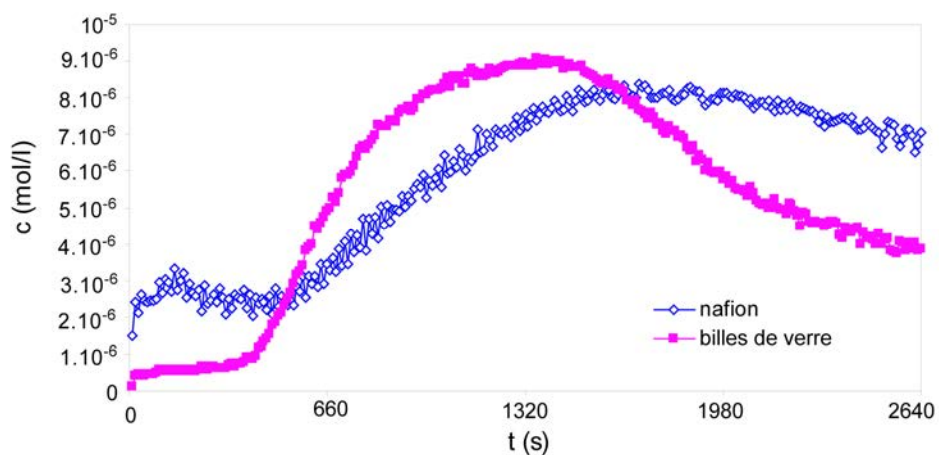
Comme une partie de l'échantillon de Nafion a été souillée (adsorption irréversible de certaines impuretés sur les grains de Nafion) durant les divers tests précédemment effectués, nous avons limité notre analyse par méthode optique à la partie centrale de la cellule d'écoulement test où étaient disposés les grains de Nafion intacts. Cela a conduit à considérer

les rognages présentés en Figure 46 (la zone d'étude est représentée en rouge) pour les traitements d'images associés à chaque essai.



**Figure 46 : zones considérées pour le traitement des données.**

Nous obtenons ainsi une mesure des champs de concentration sur la zone considérée. L'annexe M contient l'ensemble des résultats obtenus pour cette série de deux essais de traçages. Ici ne sera présentée, sur le Figure 47, que la courbe de percée moyennée selon l'axe perpendiculaire à l'écoulement en sortie de la zone de mesure.



**Figure 47 : Courbe de percée moyennée mesurée en sortie de la zone de traitement.**

Il faut tout d'abord souligner que les résultats obtenus sont essentiellement qualitatifs et n'ont pas une fiabilité quantitative suffisante pour pouvoir interpréter des calculs de moments sur les champs mesurés en termes de propriétés du transport (vitesse de front, dispersion, ... cf. annexe M). Cela est dû principalement aux phénomènes d'adsorption et au coté primitif du montage (zone d'étude limitée en particulier). Néanmoins, on observe bien des courbes de percées interprétables qualitativement. Dans les deux cas, on remarque que la courbe de percée est asymétrique, ce qui est caractéristique d'un transport avec adsorption. Le phénomène est beaucoup plus prononcé dans le cas du Nafion. En outre, ce dernier a affiché une réactivité importante avec tous les colorants testés (autre que le Rose Bengale), bien que certains d'entre-eux ne manifestaient qu'une affinité très faible avec le verre, comme par exemple l'Eriaglocine (ou Brilliant Blue FCF, utilisé entre autres par Kildsgaard et Engesgaard, 2001 - CAS 3844-45-9, longueur d'onde d'absorption maximale dans l'eau distillée 625 nm - mesurée au spectrophotomètre DR2000). Or, l'absence de réactivité de la matrice est une des hypothèses fondamentales de la modélisation théorique développée dans ce travail, et donc l'emploi du Nafion pourrait compromettre la réalisation des objectifs du modèle expérimental, en dépit de ses caractéristiques optiques prometteuses. On se propose donc d'utiliser un milieu poreux de billes de verre fines avec l'Eriaglocine comme traceur coloré (du fait de sa réactivité très faible vis-à-vis du verre).

### **9.3 Tests de culture d'un biofilm en milieu poreux**

Avant d'aller plus loin dans le développement du modèle expérimental, une question cruciale doit être posée : Est-ce que le milieu de billes de verre choisi pour ses propriétés optiques possède les propriétés de bio-adhésion suffisantes pour la suite de notre étude ? En

d'autres termes, arrivera-t-on à cultiver un biofilm sur ce milieu ? Dans un premier temps, la souche bactérienne *Shewanella oneidensis* (fournie par le LCPME) a été sélectionnée pour sa capacité reconnue à se développer sous la forme de biofilm (Anceaux, 2008) et aussi pour des raisons de logistique locale (la préparation d'inoculum, le stockage d'échantillons de souche mère congelée, ..., sont des procédures bien maîtrisées au LCPME pour *Shewanella oneidensis*). Sur la Figure 48, nous pouvons observer une boîte de Pétri contenant des colonies de *Shewanella oneidensis* cultivées sur milieu nutritif riche LB gélosé (cf Annexe N).

Le test de croissance est effectué dans la cellule d'écoulement utilisée au paragraphe précédent. Le milieu nutritif aqueux dans lequel se développe *Shewanella oneidensis* est le milieu LML+F, c'est un milieu classique de croissance pour cette bactérie (Anceaux, 2008). La composition du milieu LML+F est donnée dans l'annexe N.



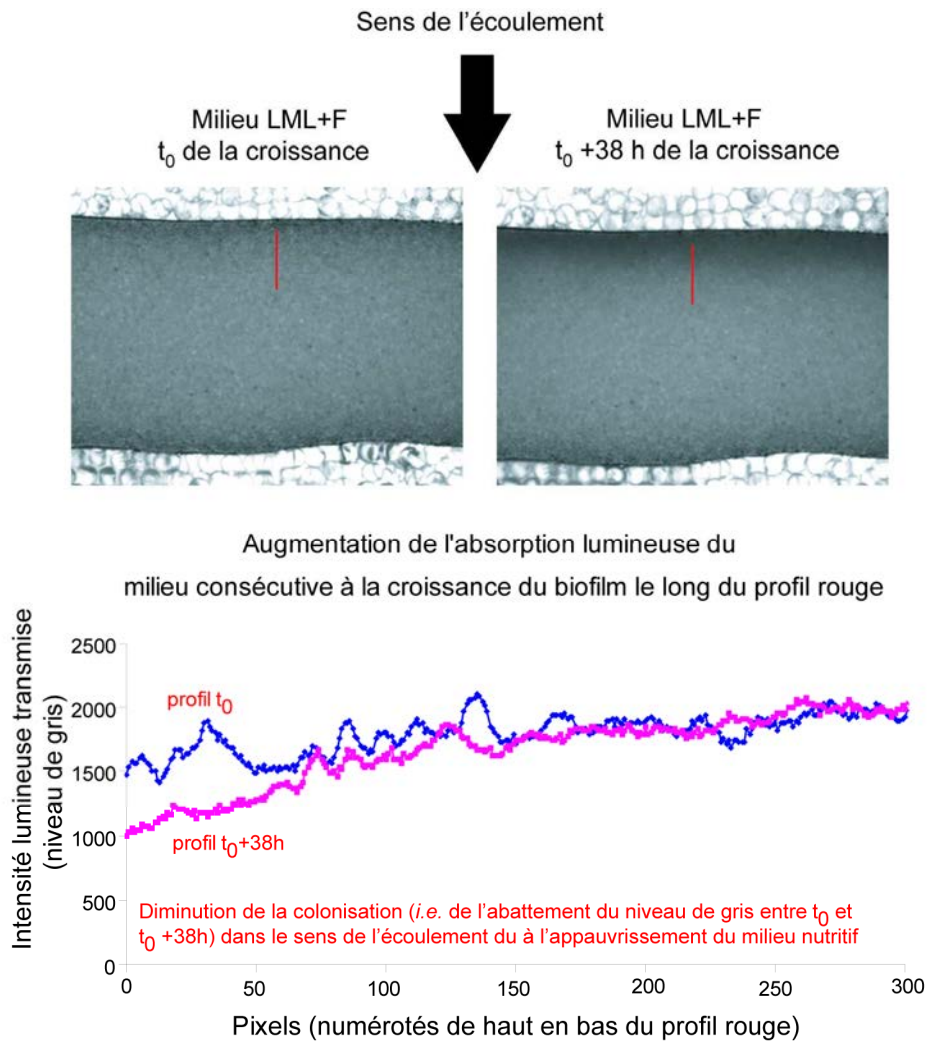
**Figure 48 : Boîte de Petri contenant des colonies de *Shewanella oneidensis* se développant sur milieu gélosé.**

25 ml d'inoculum de *Shewanella oneidensis* dans du LML+F à une concentration d'environ  $10^8$  cellule/ml (Densité Optique à 600 nm  $\approx$  0.2) ont été préparés selon la technique microbiologique classique :

- Culture de la souche en boîte de Petri durant 79 heures.
- Préparation d'une préculture : prélèvement d'une colonie bactérienne sur la boîte de Petri, puis introduction dans 2 ml de milieu riche LB aqueux. Le tout est laissé 16 heures à 30°C (température de croissance maximale de *Shewanella oneidensis*) sous agitation (160 rpm).
- Préparation de l'inoculum : introduction de 0,5 ml de préculture dans 50 ml de LML+F sous agitation à 30°C pendant 4 heures. Au bout des 4 heures, la densité optique est ajustée à 0,2 à 600 nm (centrifugation, dilution dans le milieu LML+F).

L'ensemble de ces opérations ont été pratiquées stérilement (« sous flamme » d'un bec bunsen électrique ou en flacon autoclavé fermé). L'inoculation de la cellule d'écoulement a été effectuée de manière classique, en la saturant (volume poreux  $\approx$  11 ml) d'inoculum et en laissant reposer pendant 1 heure. Après cette phase d'inoculation, la cellule poreuse a été mise sous flux de LML+F pendant 38 heures (à un débit d'environ 1 ml/min). La salle où se déroule l'expérience est climatisée à 30°C pendant l'ensemble de l'essai de croissance. Bien que le montage ne soit pas stérile, la cellule test n'étant pas autoclavable (ce défaut a été corrigé dans la conception de la cellule finale), le caractère sélectif du milieu LML+F (la plupart des bactéries - autre que *Shewanella oneidensis* - ont plus de difficulté à se développer dans ce milieu) et le temps court de l'essai ont permis de s'affranchir des problèmes liés à une éventuelle contamination. Une colonisation du milieu, visible à l'œil nu, a été observée au bout de 38 heures. La coloration rose typique des colonies de *Shewanella oneidensis* était clairement reconnaissable. Sur la Figure 49,

l'augmentation d'absorption lumineuse due milieu du au développement du biofilm est mise en évidence.

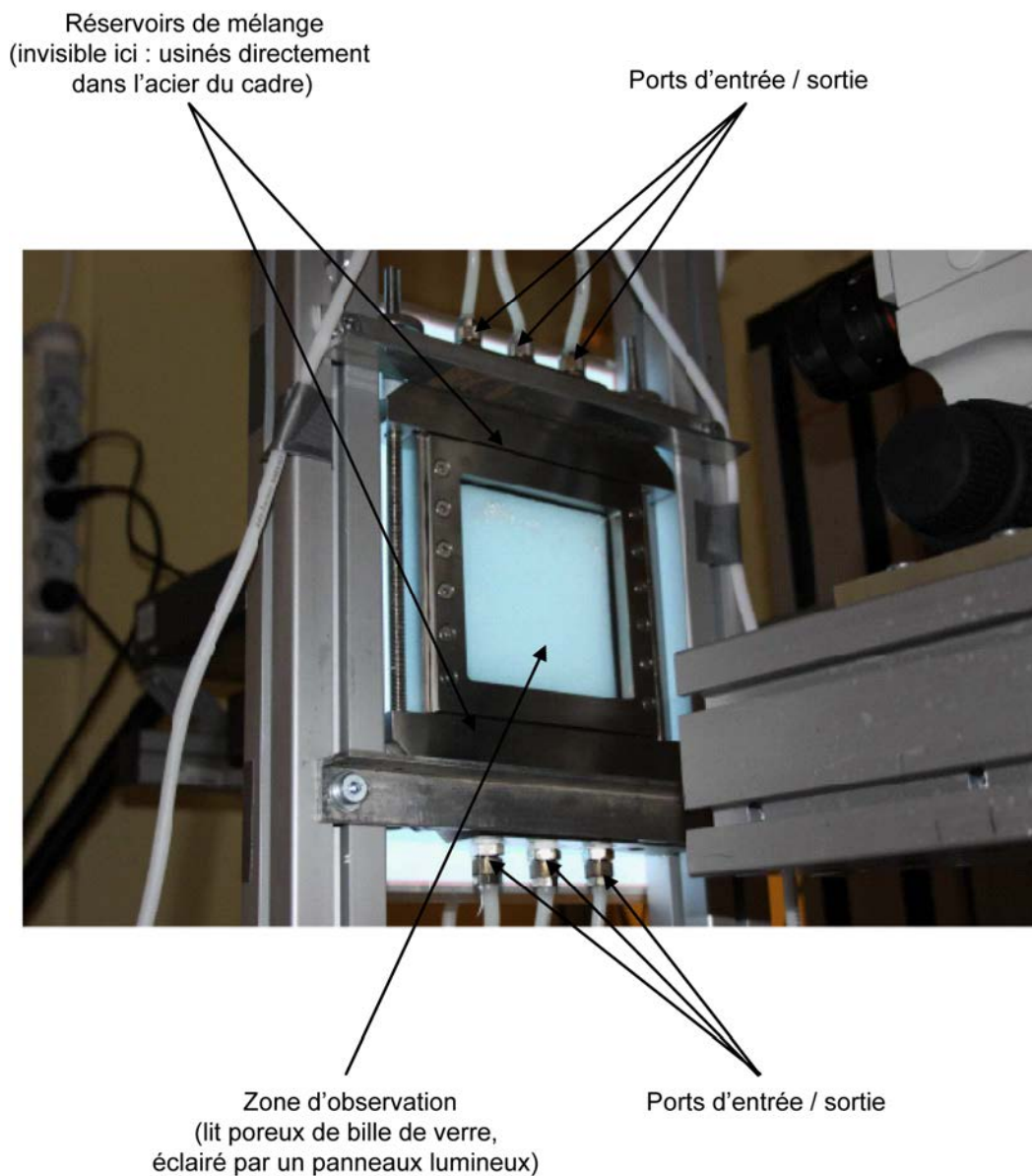


**Figure 49 : Augmentation de l'absorption lumineuse du milieu due à la croissance.**

Le test est donc positif: *Shewanella oneidensis* est apte à se développer de manière importante (visible à l'œil nu) en un temps raisonnable (moins de deux jours) sur des billes de verre Retsch.

## 9.4 Modèle expérimental : cellule d'écoulement et montage

Compte tenu des différentes contraintes et des tests effectués, la cellule d'écoulement mise au point est en acier inoxydable avec un regard, afin de visualiser l'écoulement dans le lit de billes Retsch. Le regard et le lit poreux sont de même surface, (carré de 10 cm de côté) et le lit poreux fait 0.5 cm d'épaisseur. Cette cellule d'écoulement est présentée sur la Figure 50.



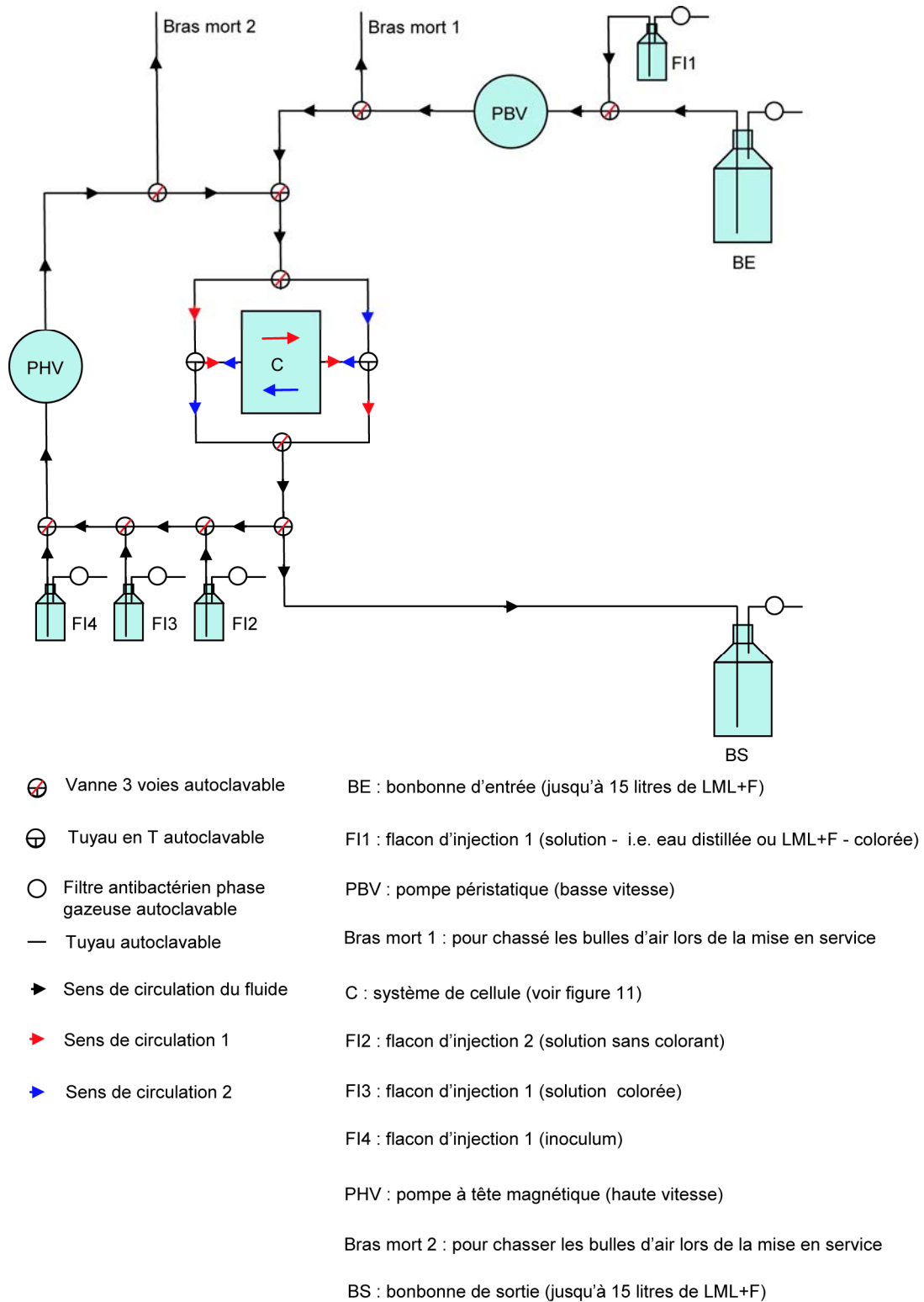
**Figure 50 : Cellule d'écoulement destinée aux essais de transport non réactif en milieu poreux incluant un biofilm.**



Une des contraintes fortes du modèle expérimental est d'assurer l'homogénéité du champ des vitesses macroscopiques dans le milieu poreux. L'injection de la phase aqueuse dans la cellule est pratiquée par trois ports d'injection débouchant sur un réservoir de mélange permettant de lisser le profil des vitesses avant l'admission dans le lit poreux. Nous obtenons ainsi, pour des débits d'injection suffisamment faibles (*e.g.* :  $1\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$ ), un champ des vitesses homogène à l'entrée de la zone de mesure. Cependant, les premiers tests d'injection d'un colorant dans la cellule entièrement saturée d'eau ont fait apparaître trois panaches de colorant au droit de chaque port d'injection. Ce défaut était dû aux hétérogénéités de concentration dans le réservoir au moment de l'arrivée du colorant, hétérogénéités qui sont simplement transportés dans le lit poreux (si on fait abstraction de la dispersion). Une alternative pour pallier ce problème a consisté à remplir complètement le réservoir d'entrée de solution colorée (cf. Figure 52 pour plus de détails) préalablement à l'injection: un front droit perpendiculaire à la direction d'écoulement a ainsi pu être récupéré caractéristique d'un écoulement piston et donc d'un champ des vitesses homogène dans le lit poreux. Les plans de cette cellule d'écoulement sont consultables en Annexe O. On peut noter que la cellule admet un plan de symétrie perpendiculaire à l'axe des ports de sortie et d'injection. Ceci autorise une inversion du sens d'écoulement en cours d'expérience. Néanmoins, l'introduction dans la cellule de billes de verre s'effectue par un des réservoirs de mélange. De fait, on ne peut donc maintenir les billes dans la zone d'observation par un tamis de  $80\ \mu\text{m}$  d'ouverture de maille que d'un côté de la zone d'observation. De la laine d'acier inoxydable tassée est utilisée du côté où s'effectue le remplissage. Ceci compromet la symétrie de l'écoulement en cas d'inversion du sens de circulation. Une manière d'éluder ce problème serait de prévoir un orifice d'introduction des billes qui permette de procéder à la mise en place du lit poreux une fois la cellule entièrement montée. On pourrait alors placer un tamis de maintien de chaque côté de la zone

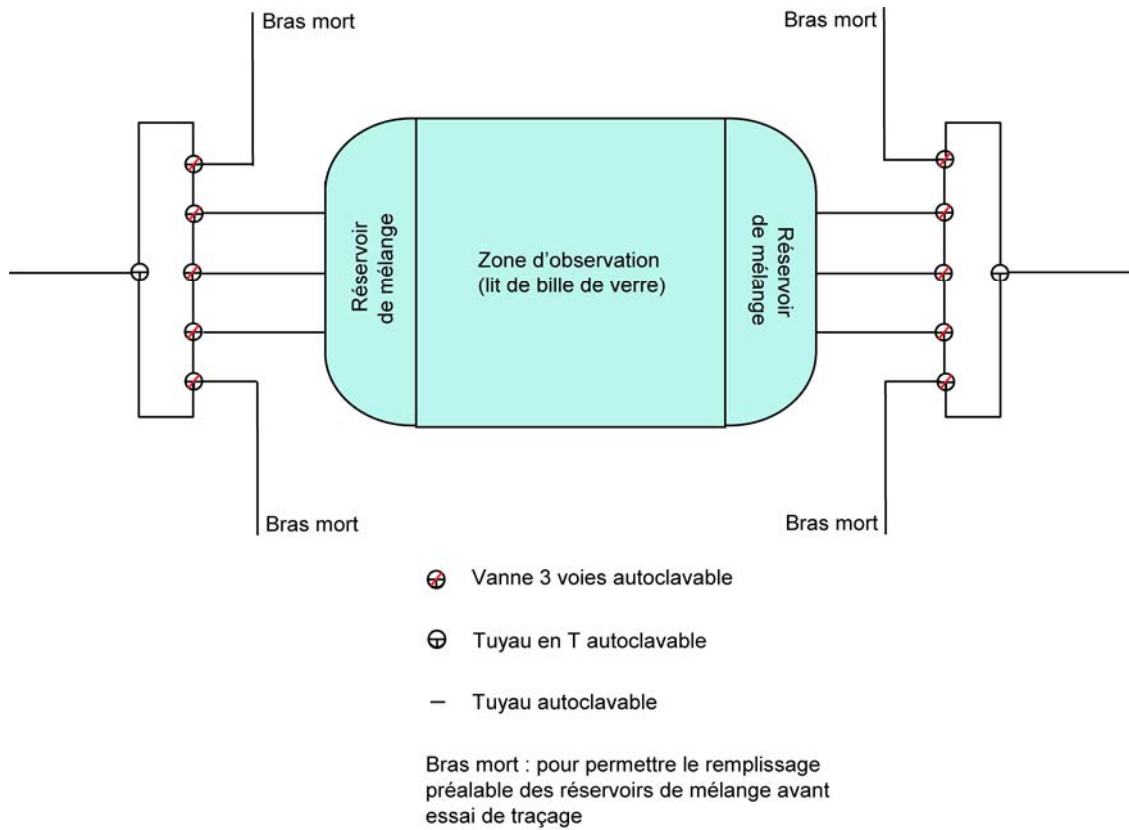
d'observation. Cela constitue une option d'amélioration future de la cellule. Cette cellule est autoclavable, contrairement à la première cellule test ; elle peut donc être utilisée pour des expériences stériles. Un protocole de saturation de la cellule a été mis au point nécessitant un remplissage préalable au CO<sub>2</sub> (*cf* paragraphe 9.2). Enfin, vu les pompes d'injections mises à disposition, on peut couvrir une plage de nombre de Péclet de pore comprise entre 1 à 350 (pour les billes utilisées, de diamètre compris entre 0,25 et 0,5 mm).

Les différents tests préliminaires menés ont conduit à envisager le montage présenté sur les Figure 51, Figure 52 et Figure 53 pour les essais de transport non réactif en milieu poreux incluant un biofilm. Deux pompes sont utilisées : une pompe péristaltique de faible débit fonctionnant en circuit ouvert, qui contrôle le flux de nutriment dans la cellule, et une pompe à tête magnétique de débit plus élevé fonctionnant en circuit fermé qui permet de contrôler les conditions hydrodynamiques dans la cellule. En particulier, ce montage permet d'imposer de fort taux de cisaillement dans la cellule (qui favorise la croissance d'un biofilm compact et homogène, *e.g.* : Picioreanu *et al.*, 1997) sans devoir utiliser des quantités trop importantes de milieu LML+F, onéreux et long à produire. Les différents flacons disposés le long du système permettent d'assurer l'inoculation et les essais de traçage, en milieu stérile ou colonisé.



**Figure 51 : Projet de montage de modèle expérimental - croissance de biofilm et injection de traceur.**

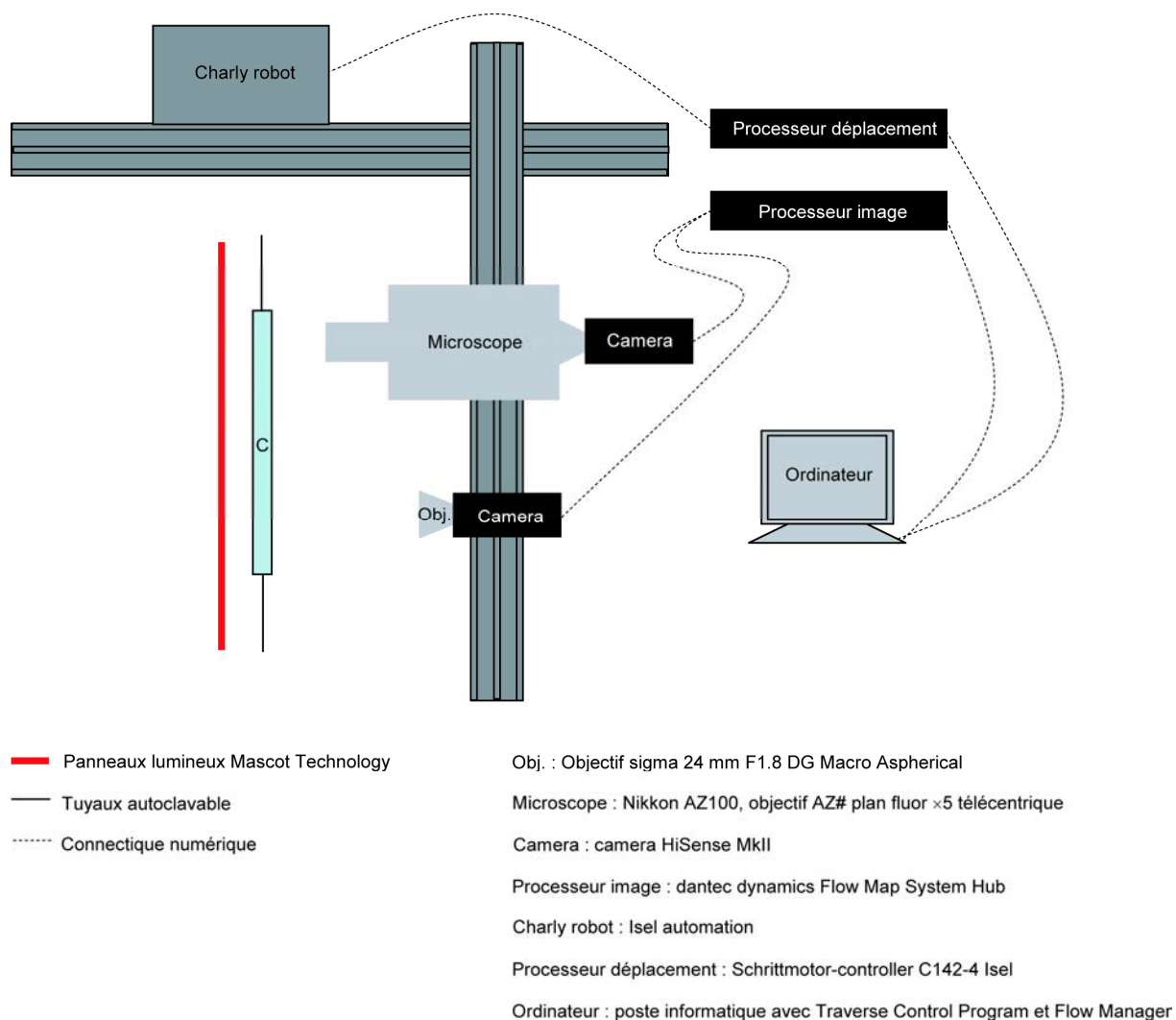
Nous pouvons voir plus précisément sur la Figure 52 le détail du montage de la connectique hydraulique autour de la cellule.



**Figure 52 : Système de cellule d'écoulement.**

Ce montage permet de remplir le réservoir d'entrée avant injection de solution colorée dans la zone d'observation. D'un point de vue pratique, la sortie de la cellule est obstruée et la solution est mise en circulation dans le réservoir d'entrée, en mettant la sortie à un bras mort.

La Figure 53, enfin, présente le système d'acquisition des données (champ de concentration, fraction volumique de biofilm, observation microscopique du biofilm).



**Figure 53 : Système d'acquisition des données.**

L'usage du système de pilotage Charly-robot permet de passer de la position d'acquisition des champs de concentration ou de fraction volumique de biofilm, avec la caméra en face de la cellule, à la position d'observation du milieu à l'échelle microscopique, avec le microscope AZ100 en face de la cellule. En outre, le système Charly-robot autorise des déplacements précis à la dizaine de microns près et reproductibles. Ceci permet, par exemple, de suivre la croissance du biofilm à l'échelle microscopique en quelques points précis, *i.e.* : au voisinage des mêmes billes. Le microscope AZ100 présente l'intérêt d'avoir un grossissement de  $\times 400$  avec une distance focale de plus de 1 cm, ce qui permet l'observation *in situ* du biofilm dans la cellule d'écoulement. Une technique de micro-LIF (Laser Induced Fluorescence) a été

également envisagée pour l'observation *in situ* du biofilm en profondeur dans le milieu. Néanmoins, elle requiert l'utilisation d'un milieu d'indice optique proche de celui de l'eau et n'a donc pas été, pour l'instant, suffisamment validée pour être présentée. Si le développement de cette technique aboutissait, l'usage du système Charly-robot permettrait d'observer le milieu en profondeur en se positionnant de manière précise et répétable, et en pouvant intégrer le montage du laser nécessaire à la technique de micro-LIF. Le processeur image permet l'acquisition et la numérisation des images. En cas d'utilisation d'une technique de micro-LIF, il permettrait aussi de synchroniser laser et camera. Pour l'acquisition du champ de fraction volumique du biofilm, nous envisageons d'utiliser du Dextran Blue (CAS 87915-38-6) qui possède la propriété d'être exclue des phases organiques (*e.g.* : Di Iaconi *et al.*, 2004). La saturation de la cellule à l'aide de ce colorant devrait nous permettre de remonter à une estimation de la fraction volumique de biofilm pixel par pixel. On utilise ici un raisonnement analogue à celui exposé en paragraphe 9.2 pour la conversion des images en niveau de gris en champs de concentration spatiaux. Ainsi, si on considère une image  $N_0$  de la cellule stérile pleine de LML+F, une image  $N_1$  de la cellule stérile pleine de LML+F contenant une concentration  $c_0$  de Dextran Blue, une image  $N_2$  de la cellule colonisée pleine de LML+F et une image  $N_3$  de la cellule colonisée et remplie de LML+F contenant une concentration  $c_0$  de Dextran Blue et en notant  $CCD_k(i, j)$  le niveau de gris du pixel  $(i, j)$  de l'image  $N_k$ , on peut écrire pour chaque pixel :

$$\begin{aligned}\varepsilon_\gamma(i, j) &= \varepsilon_\gamma^{initial} \left( \frac{\ln(CCD_3(i, j) / CCD_2(i, j))}{\ln(CCD_1(i, j) / CCD_0(i, j))} \right) \\ \varepsilon_\omega(i, j) &= \varepsilon_\gamma^{initial} \left( 1 - \frac{\ln(CCD_3(i, j) / CCD_2(i, j))}{\ln(CCD_1(i, j) / CCD_0(i, j))} \right)\end{aligned}\tag{342}$$

Ou la porosité initiale  $\varepsilon_\gamma^{initial}$  est supposée constante sur la cellule et connue (on peut facilement la déterminer à partir d'un essai de traçage stéril non réactif par diverses méthodes

classiques : méthode inverse, méthode des deux mesures, ...). Une telle méthode n'a encore jamais été appliquée à l'acquisition de mesures de fraction volumique de biofilm en milieu poreux.

Le montage finale destiné à mettre en ouvre les diverses méthodes présentées dans ce chapitre est en cours de validation. Les premiers résultats publiables devraient être obtenus d'ici quelques mois.





## **CHAPITRE 10 : CONCLUSION**



En guise de conclusion, un retour sur les points importants de ce travail de thèse sera effectué, puis une brève revue des possibilités de développements numériques et expérimentaux des outils mis en place sera proposée. Enfin, les perspectives à long terme associées à ce travail seront développées.

## 10.1 Principaux résultats

Dans la continuité des travaux de Wood et Whitaker (1998, 1999, 2000) et Golfier *et al.* (2009) l'établissement de modèles de transport de soluté biologiquement actif en milieux poreux incluant une phase biofilm à l'échelle de Darcy à partir des données de l'échelle du pore a été effectuée, par utilisation de la méthode de prise de moyenne volumique (*e.g.* : Whitaker, 1999). Le cas d'une cinétique de biodégradation apparente de type cinétique de Monod simple a été dans un premier temps étudié. Deux modèles à une équation et un modèle à deux équations ont ainsi été développés pour des conditions de non-équilibre, et sont ainsi venus s'ajouter au modèle d'équilibre local à une équation présenté par Golfier *et al.* (2009) et rappelé au Chapitre 3. Ce modèle d'équilibre n'a pas été développé au cours du présent travail, néanmoins il a été étudié de diverses manières (étude de sensibilité, domaine de validité, ...) au début de cette thèse. L'utilisation des trois modèles à une équation demande des temps de calculs plus réduits (compte tenu de la résolution préalable des problèmes de fermeture) que l'usage du modèle à deux équations, mais leurs champs d'application sont plus restreints. En effet, ils ont été développés pour des conditions spécifiques de transport : en équilibre de masse local (modèle LEA, pour *Local Equilibrium Assumption*), hors équilibre avec biodégradation limitée par la cinétique du métabolisme bactérien (modèle RRLC, pour *Reaction Rate Limited Consumption*) et hors équilibre avec biodégradation limitée par le transfert de masse externe (modèle MTLC, pour *Mass Transfer Limited Consumption*). Un exemple d'application de ces trois modèles à une équation à l'étude de la dynamique d'un

bio-réacteur à lit fixe a été présenté. Le modèle à deux équations (modèle TEM, pour *Two Equation Model*) a été développé quant à lui avec le minimum d'hypothèses indispensables au changement d'échelle du processus de transport réactif non linéaire (en particulier les opérations de linéarisation requièrent des faibles variations de concentration à l'échelle du pore par rapport aux valeurs moyennes de concentration à l'échelle de Darcy, ainsi qu'une importance limitée des phénomènes réactifs). Ces modèles théoriques ont été implémentés numériquement sous Fortran, puis une étude de leur sensibilité à différents paramètres de l'échelle du pore (épaisseur du biofilm, cinétique de biodégradation dans le biofilm ...) a été menée. Enfin, leurs domaines de validités respectifs (en termes de conditions hydrodynamiques et biochimiques de transport, *i.e.* : en termes de nombre de Péclet et de nombre de Damköhler) ont été établis par comparaison entre simulations directes à l'échelle du pore et simulations à l'échelle de Darcy pour des géométries de pores simples (nodulaires ou stratifiées). Un résumé des résultats de ces comparaisons est présenté en Figure 54.

	Nombre de Péclet $Pe_A$	Nombre de Damköhler $Da_A$
<b>Modèle LEA</b>	$\leq 1$	$\leq 1$
<b>Modèle RRLC</b>	$Da_A < Pe_A$	$\ll 100$
<b>Modèle MTLC</b>	$Pe_A < Da_A$	$\ll 10$
<b>Modèle TEM</b>	$\leq 1000$	$\leq 100$

**Figure 54 : Tableau résumant les différents domaines de validité des modèles de transport en milieux poreux incluant une phase biofilm à l'échelle de Darcy.**

Enfin, le cas d'une biodégradation régie par une cinétique de Monod double a été brièvement étudié. Les développements théoriques ainsi que les outils numériques nécessaires à l'extension des modèles développés précédemment à un tel cas de couplage non linéaire entre les transports de deux espèces chimiques sont présentés. Dans le cas du modèle à deux

équations, la nécessité de développements numériques supplémentaires non triviaux pour parvenir à une telle transposition a été mise en évidence.

Par ailleurs, la conception d'un modèle expérimental de transport non réactif en milieu poreux incluant une phase biofilm a été effectuée. Ce travail a fait l'objet d'une collaboration avec le Laboratoire Chimie Physique et Microbiologie pour l'Environnement, sur l'aspect microbiologique du modèle. En outre, une collaboration avec le Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de la Surface de Strasbourg a été initiée (Financement sur 3 ans dans le cadre du programme EC2CO-CYTRIX : INSU-CNRS). Elle vise à comparer les résultats de transport en présence de biofilm au sein d'un milieu poreux artificiel (lit de billes de verre - Laboratoire Environnement Géomécanique et Ouvrage) et en milieu poreux naturel (carotte de Grés de Fontainebleau - Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de la Surface de Strasbourg). Le modèle expérimental de transport non réactif en milieu poreux incluant une phase biofilm développé dans cette thèse est actuellement en cours de validation. Les premiers résultats publiables sont attendus pour les prochains mois.

## **10.2 Possibilités de développements numériques**

Un des premiers points à aborder pour améliorer les codes numériques associés aux différents modèles développés est la prise en compte des conditions de moyenne nulle par phase. L'approche classique qui consiste à retrancher la valeur moyenne du champ de fermeture après calcul de la solution (la solution d'un problème de fermeture est obtenue à une constante près) ne peut être appliquée dans les cas des modèles LEA et TEM compte tenu de l'existence de deux conditions de moyenne nulle (une par phase). Actuellement, elles sont implémentées directement dans le solveur utilisé (généralement un Bi-Gradient Conjugué Stabilisé), ce qui pose parfois des problèmes de convergence, en particulier à fort nombre de

Péclet. L'usage d'un solveur de type SOR (*Successive Over Relaxation*) peut être dans ce cas envisagé. Néanmoins, cela augmentera considérablement les temps de calcul et ne permettra que partiellement de résoudre ce problème. L'optimisation des méthodes numériques utilisées pour les calculs à fort nombre de Péclet est donc un des chantiers d'amélioration possible des codes numériques développés. Plus généralement, une diminution des temps de calcul (particulièrement intéressante dans le cas de géométries 3D) pourrait être atteinte par l'optimisation de l'implémentation des codes numériques (redondances, stockages des intermédiaires de calcul, format des données, ...).

Il serait aussi intéressant de procéder à l'application des modèles de non équilibre (RRLC, MTLC, TEM) sur une géométrie tridimensionnelle réaliste, comme cela a été fait pour le modèle d'équilibre (LEA).

Enfin, le développement de techniques numériques adaptées à l'usage du modèle de transport à deux équations dans le cas d'une cinétique de biodégradation de type Monod double, permettrait d'avoir le champ d'application le plus large possible des modèles de transport bioréactifs présentés ici.

### **10.3 Possibilités d'amélioration du modèle expérimental**

Un premier point pour l'amélioration du modèle expérimental est la maîtrise du remplissage de la cellule par les billes de verre. Dans l'état actuel, il faut introduire les billes par un des réservoirs d'admission de fluide de la cellule. Cela empêche de disposer un tamis de maintien des billes de verre du côté où est effectué le remplissage. On opte alors pour une couche de laine d'acier inoxydable tassée. La symétrie de l'écoulement est ainsi mise en défaut quant on inverse le sens de circulation dans la cellule. Ce problème pourrait être résolu par l'ajout d'un port de remplissage pour les billes de verre sur un des côtés de la cellule.

Par ailleurs, la mise au point d'une technique de micro-LIF pour observer le milieu à l'échelle du pore et caractériser la morphologie du biofilm serait un apport important pour la qualité de la comparaison entre résultats expérimentaux et modélisations numériques. L'identification d'un fluorophore adapté (qui permette de marquer le biofilm sans toxicité pour les populations bactériennes et qui convienne au matériel de LIF à disposition – longueurs d'onde d'absorption et d'émission) sera un des points clés de cette mise au point.

Enfin, l'utilisation de grains de cryolite à la place des billes de verre, si ceux-ci se révélaient bio-colonisables, pourrait améliorer les propriétés optiques du montage. Cela augmenterait la précision de l'acquisition des champs de concentration et pourrait permettre une observation par micro-LIF en profondeur du milieu.

#### **10.4 Perspectives à long terme**

La poursuite de ce travail expérimental avec la prise en compte des processus réactifs (*i.e.* : avec biodégradation) est un des objectifs de la thèse de Tiangoua Koné (2008-2011), doctorant au LAEGO dans l'équipe « Transport en Milieux Poreux ». Le travail de doctorat présenté ici s'inscrit donc dans un programme à plus long terme d'étude de la dynamique des biofilms en milieux poreux. La première prise en compte des processus réactifs sera effectuée pour un traceur modèle, *i.e.* : un colorant biodégradable non toxique. Cela constituera un premier pas vers l'étude de la biodégradation de polluants organiques réels (type HAP ou solvant chloré, par exemple) en milieux poreux incluant une phase biofilm. Dans cette optique, une instrumentation de chromatographie en phase gazeuse, nécessaire pour la caractérisation des produits de biodégradation d'un composé organique, est en cours d'installation au LAEGO (Groupe de travail thématique 2 - Transport des polluants et procédés physico-chimiques de dépollution - GISFI). L'utilisation conjointe des modèles

numériques développés au cours de ce travail et d'un modèle expérimental de transport avec biodégradation permettra dans un premier temps la validation expérimentale des modèles de transport dans le cas réactif (avec le colorant non toxique), puis dans un second temps l'étude approfondie des phénomènes complexes de biodégradation d'un polluant réel.

Par ailleurs, l'utilisation des modèles de transport couplés avec un modèle de croissance, comme celui actuellement développé au LAEGO (*e.g.* : Golfier *et al.*, 2007b), permettra d'étudier la dynamique des biofilms en milieux poreux, et en particulier les couplages transport-croissance. La mise au point de la technique de micro-LIF d'observation du milieu poreux à l'échelle du pore permettrait de plus de procéder à l'étude de cette dynamique par comparaison de résultats numériques et expérimentaux.



## **RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES**



- AHMADI A., QUINTARD M., WHITAKER S. (1998). - Transport in chemically and mechanically heterogeneous porous media, V, two-equation model for solute transport with adsorption. *Adv. Water Resour.*, Vol. 22, pp. 59–86.
- ANCEAUX C. (2008). – Construction de biofilms : étude en chambre d'écoulement. Rapport de stage d'initiation à la recherche effectué au LCPME, Université Henri Poincaré, Nancy 1.
- ANDERSON T. B. et JACKSON R. (1967). - A fluid mechanical description of fluidized beds. *Ind. Engng Chem. Fundam.*, Vol. 6, pp. 527-538.
- ANDERSON J.E. et MCCARTY P.L. (1994). – Model for treatment of trichloroethylene by methanotrophic biofilms. *J. Environ. Eng. Div. Am. Soc. Civ. Eng.*, Vol. (120) (2), pp. 379-400.
- ANDREWS J.S., MASON V.P., THOMPSON I.P., STEPHENS G.M., MARKX G.H. (2006). – Construction of artificially structured microbial consortia (ASMC) using dielectrophoresis: Examining bacterial interactions via metabolic intermediates within environmental biofilms. *Journal of Microbiological Methods*, Vol. 64, pp. 96-106.
- ASPA Y, DEBENEST G, QUINTARD M. (*sous presse*). Effective dispersion in channeled biofilms. *Int J Environ Waste Manage, sous presse*.
- ATKINSON B. et DAVIES I. J. (1974). - The overall rate of substrate uptake (reaction) by microbial films I: Biological rate equation. *Trans., Inst. Chem. Engr.*, Vol. 52, pp. 248-259.
- BADIOU A. (1970). – Le concept de modèle – Introduction à une épistémologie matérialiste des mathématiques. François Maspero, Paris.
- BAUER R.D., MALOSZEWSKI P., ZHANG Y., MECKENSTOCK R.U. GRIEBLER C. (2008). – Mixing-controlled biodegradation in a toluene plume – Results from two-dimensional laboratory experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 96; pp. 150-168.
- BAVEYE P. et VALOCCHI A. (1989). - An evaluation of mathematical models of the transport of biologically reacting solutes in saturated soils and aquifers. *Water Resour. Res.*, Vol. 25 (6), pp. 1413-1421.
- BEYENAL H. et LEWANDOWSKI Z. (2002). – Internal and External Mass Transfer in Biofilms Grown at Various Flow Velocities. *Biotechnol. Prog.*, Vol. 18, pp. 55-61.
- BIBBY R. (1981). Mass transport of solutes in dual-porosity media. *Water Resour. Res.*, Vol. 17 (4), pp. 1075-1081.
- BIELEFELT A.R. et STENSEL H.D. (1999). - Modeling competitive inhibition effects during biodegradation of BTex mixtures, *Wat. Res.*, Vol. 33 (3), pp. 707-714.
- BISCHOFF K. B. (1965). Effectiveness Factor for General Reaction Rates forms. *A.I.Ch.E J.*, Vol. 11, pp. 351.
- BLANCH H.W. et CLARK D.S. (1996). - Biochemical Engineering. Marcel Dekker Ltd, 702 pp.
- BLOCK J. C. (1992). - Biofilms in drinking water distribution system. In *Biofilms--Science and technology* (Edited by Melo L. F., Bott T. R., Fletcher M. & Capdeville B.), Kluwer Academic, Dordrecht, , pp. 469-485.
- BORDEN R. C. et BEDIENT P. B. (1986). - Transport of Dissolved Hydrocarbons Influenced by Reaeration and Oxygen limited Biodegradation: 1. Theoretical Development, *Water Resources Research*, Vol. 22 (13), pp. 1973-1982.
- BUÈS M. A., ZILLIOX L. (1990). - Déplacements Miscible avec Contraste de Densité et de Viscosité en milieu Poreux, Identification des paramètres de Déplacement et Stabilité en Régime de Dispersion Mécanique. *Journal of Hydrology*, Vol. 120, pp. 125-141.
- CHARACKLIS W.G. (1973). – Attached microbial growths-II. Frictional resistance due to microbial slimes. *Water Res*, Vol 7, pp. 1249-1258.
- CHARBONNEAU A., NOVAKOWSKI K., ROSS N. (2006). - The effect of a biofilm on solute diffusion in fractured porous media. *J. Contam. Hydrol.*, Vol. 85 (3-4), pp. 212-228.

- CHEN Y.M., ABRIOLA L.M., ALVAREZ P.J.J., ANID P.J., VOGEL T.M. (1992). – Modeling transport and biodegradation of benzene and toluene in sandy aquifer material: comparisons with experimental measurements, *Water Resour. Res.*, Vol. 28 (7), pp. 1833-1847.
- CHEN-CHARPENTIER B. (1999). - Numerical simulation of biofilm growth in porous media. *Journal of Computational and Applied Mathematics*, Vol. 103, pp. 55-66.
- CHEN-CHARPENTIER B., DIMITROV D.T., KOJOUHAROV H.V. (2009). – Numerical simulation of multi-species biofilms in porous media for different kinetics. *Mathematics and Computers in Simulation*, Vol. 79, pp. 1846-1861.
- CHEN B. et LI Y. (1999). – Numerical modeling of biofilm growth at the pore scale. *Proceedings of the 1999 Conference on Hazardous Waste Research*.
- CHERBLANC F. (1999). - Étude du transport miscible en milieux poreux hétérogènes : prise en compte du non-équilibre. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux I.
- CHERBLANC F., AHMADI A., QUINTARD M. (2007). - Two-domain description of solute transport in heterogeneous porous media: Comparison between theoretical predictions and numerical experiments. *Adv. Water Resour.*, Vol. 30, pp. 1127-1143.
- CIRPKA O.A., FRIND E.O., HELMIG R. (1999). - Numerical simulation of biodegradation controlled by transverse mixing. *Journal of contaminant hydrology*, Vol. 40, pp. 159-182.
- CIRPKA O.A. (2002). - Choice of dispersion coefficients in reactive transport calculations on smoothed fields. *J. Contam. Hydrol.*, Vol. 58, pp. 261-282.
- CLEMENT T.P., PEYTON B.M., SKEEN R.S., JENNINGS D.A., PETERSEN J.N. (1997) – Microbial growth and transport in porous media under denitrification conditions: experiments and simulations. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 24, pp. 269-285.
- CLEMENT T.P. (1997). - RT3D (Version 1.0) A Modular Computer Code for Simulating Reactive Transport in 3-Dimensional Groundwater Systems. PNNL-11720, Battelle, United States Department of Energy.
- COLE A.C., SEMMENS M.J., LAPARA T.M. (2004). - Stratification of activity and bacterial community structure in biofilms grown on membranes transferring oxygen. *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol. 70 (4), pp. 1982-1989.
- COSTERTON J.W., GEESEY G.G., CHENG K-J. (1978). – How bacteria stick. *Sci Am*, Vol. 238, pp. 86-95.
- COSTERTON J.W. (1999). – Introduction to biofilm. *International Journal of Antimicrobial Agents*, Vol. 11, pp. 217-221.
- CUNNINGHAM A.B., SHARP R.R., CACCAVO F. JR, GERLACH R. (2007). – Effects of starvation on bacterial transport through porous media. *Advances in Water Resources*, Vol. 30, pp. 1583-1592.
- CUNY J. (2007). - Modélisation du transport de soluté biologiquement actif en milieux poreux incluant une phase biofilm : Automate cellulaire. Rapport de stage de master 2 effectué au LAEGO (LG.X3.MAS.PSI.RPRE.07.0089.A), Institut National Polytechnique de Lorraine.
- CUSHMANN J.H. et GINN T.R. (1993). - Nonlocal dispersion in media with continuously evolving scales of heterogeneity. *Trans Porous Media*, Vol. 13, pp.123–38.
- DAGAN G. (1979). - The generalization of Darcy's law for non uniform flows. *Water Resour. Res.*, Vol. 15, pp. 1-7.
- DAGAN G. (1990). - *Flow and Transport in Porous Formation*. Springer Verlag, New York.
- DAVIES D.G., PARSEK M.R., PEARSON J.P., IGLEWSKI B.H., COSTERTON J.W., GREENBERG E.P. (1998). – The involvement of cell-to-cell signals in the development of a bacterial biofilm. *Science*, Vol. 280, pp. 295-298.

- DAVIT Y., DEBENEST G., WOOD B.D., QUINTARD M. (soumis). – A one-equation non equilibrium model for mass transport in biologically reactive porous media. *Advances in Water Resources*.
- DI IACONI C., RAMADORI R., LOPEZ A., PASSINO R. (2004). – Preliminary biomass characterization in a sequencing batch biofilm reactor. *Annali di Chimica*, Vol. 94.
- DONLAN R.M. (2002). – Biofilms: Microbial Life on Surface. *Emerging Infectious Disease*, Vol. 8 (9), pp. 881-890.
- DUPIN H.J., KITANIDIS P.K., MCCARTY P.L. (2001). – Pore-scale modelling of biological clogging due to aggregate expansion: a material mechanics approach. *Water Research*, Vol. 37 (12) pp. 2965-2979.
- DYBAS M.J., BARCELONA M., BEZBORODNIKOV S., DAVIES S., FORNEY L., HEUER H., KAWKA O., MAYOTTE T., SEPULVEDA-TORRES LYCELY, SMALLA K., SNEATHEN M., TIEDJE J., VOICE T., WIGGERT D.C., WITT M.E., CRIDDLE C.S. (1998). – Pilot-Scale Evaluation of Bioaugmentation for In-Situ Remediation of a Carbon Tetrachloride-Contaminated Aquifer. *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 32, pp. 3598-3611.
- DYKAAR B.B., KITANIDIS P.K. (1996). - Macrotransport of a biologically reacting solute through porous media. *Water Resour. Res.*, Vol. 32 (2), pp. 307–320.
- EBRAHIMI S., PICIOREANU C., XAVIER J.B. KLEEREBEZEM R., KREUTZER M., KAPTEIJN F., MOULIJN J.A., VAN LOOSDRECHT M.C.M. (2005). – Biofilm growth pattern in honeycomb monolith packings: Effect of shear rate and substrate transport limitations. *Catalysis Today*, Vol. 105, pp. 448-454.
- EDWARDS D.A., SHAPIRO M., BRENNER H. (1993). - Dispersion and reaction in 2-dimensional model porous-media. *Phys Fluids A*, Vol. 5 (4), pp. 837–848.
- FARHADIAN M., VACHELARD C., DUCHEZ D., LARROCHE C. (2008). – In situ bioremediation of monoaromatic pollutants in groundwater : A review. *Bioresource Technology*, Vol. 99, pp. 5296-5308.
- FELDER C. (2003). - Transport d'une solution saline en cellule de Hele-Shaw - Expériences et simulations numériques. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- FINK D.J., NA T., SCHULTZ J.S. (1973). - Effectiveness factor calculations for immobilized enzyme catalysts. *Biotechnol Bioeng*, Vol. 15 (5), pp. 879-888.
- FOGLER H.S., (1999). - Elements of Chemical Reaction Engineering, 3rd edition. Prentice Hall.
- GEHLAR L. W. (1984). - Fundamental of Transport Phenomena in Porous Media, chapitre Stochastic Analysis of Flow in Heterogeneous Porous Media. Martinus Nijho Publishers, The Netherlands.
- GEESEY G.G., LEWANDOWSKI Z., FLEMMING H.-S. (1994) – Biofouling and Biocorrosion in Industrial Water Systems. CRC Press.
- GHIGO J.M. (2001). – Natural conjugative plasmids induce bacterial biofilm development. *Nature*, Vol. 412, pp. 442-445.
- GHIGO J.M. (2003). – Are there biofilm-specific physiological pathways beyond a reasonable doubt ? *Research in Microbiology*, Vol. 154, pp. 1-8.
- GLOWINSKI R. (1984). - Numerical methods for Nonlinear Variational Problems, Springer Verlag: New York, NY, U.S.A.
- GOLFIER F. (2001). - Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- GOLFIER F., ZARCONE C., BAZIN B., LENORMAND R., LASSEUX D., QUINTARD M. (2002a). On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium. *J. Fluid Mech.*, Vol. 457, pp. 213-254.
- GOLFIER F., QUINTARD M., WHITAKER S. (2002b). - Heat and Mass Transfer in Tubes: An Analysis Using the Method of Volume Averaging. *J. Porous Media*, Vol. 5, pp. 169-85.

- GOLFIER F., QUINTARD M., CHERBLANC F., ZINN B., WOOD B. (2007a). - Comparison of theory and experiment for solute transport in highly heterogeneous porous medium. *Adv. Water Resour.*, Vol. 30, pp. 2235-2261.
- GOLFIER F., CUNY J., OLTEAN C., BUÈS M. (2007b). - Impact de la croissance de biofilm en milieu poreux sur les processus hydrodynamiques. 8ème journée d'étude sur les milieux poreux, Lyon, 24-25 octobre.
- GOLFIER F., WOOD B., ORGOGOZO L., QUINTARD M., BUÈS M.A. (2009). - Biofilms in Porous Media: Development of Macroscopic Transport Equations via Volume Averaging with Closure for Local Mass Equilibrium Conditions. *Adv. Water Resour.*, Vol. 32 (3), pp. 463-485.
- GRAY W.G., LEIJNSE A., KOLAR R.L., BLAIN C.A. (1993). - Mathematical Tools for Changing Spatial Scales in the Analysis of Physical Systems. CRC Press: Boca Raton, FL.
- HAGGERTY R., MCKENNA S.A., MEIGS L.C. (2000). - On the late-time behavior of tracer breakthrough curves. *Water Resour Res*, Vol. 36, pp. 3467-79.
- HALL-STOODLEY L. et STOODLEY P. (2002). - Developmental regulation of microbial biofilms. *Current Opinion in Biotechnology*, Vol. 13, pp. 228-233.
- HARMON T.C., BALL W.P., ROBERTS P.V. (1989). - Nonequilibrium transport of organic contaminants in groundwater. Reactions and movement of organic chemicals in soils, édité par B.L. Sawheny et K. Brown, Chap. 16, pp. 405-437, Soil Sci. Soc. Of Am, Madison, Wisconsin.
- HEBE F., RADU F.A., THULLNER M., ATTINGER S. (2009). - Upscaling of the advection-diffusion-reaction equation with Monod reaction. *Adv. Water Resour.*, Vol. 32, pp. 1336-1351.
- HEUKELEKIAN H., HELLER A. (1940). - Relation between food concentration and surface for bacterial growth. *J. Bacteriol*, Vol. 40, pp. 547-558.
- HORN H., HEMPEL D.C. (1997). - Growth and decay in an auto-/heterotrophic biofilm, *Water Res*, Vol. 31(9), pp. 2243-2252.
- HOWES F.A. et WHITAKER S. (1985). - The spatial averaging theorem revisited. *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 40, pp. 1387-1392.
- HUANG A.Y.L. HUANG M.Y.F., CAPART H., CHEN R.-H. (2008). - Optical measurements of pore geometry and fluid velocity in a bed of irregularly packed spheres. *Exp Fluids*, Vol. 45 (2), pp. 309-321.
- HUNT J.R., HOLDEN P.A., FIRESTONE M.K. (1995). - Coupling Transport and Biodegradation of VOCs in Surface and Subsurface Soils. *Environ Health Perspect*. Vol. 103 (5), pp. 75-78.
- JAKOB M. (1949). - Heat Transfer. John Wiley & Sons, Inc., New York.
- JAMES G.A., BEAUDETTE L., COSTERTON J.W. (1995). - Interspecies bacterial interactions in biofilms. *Journal of Industrial Microbiology*, Vol. 15, pp. 257-262.
- JENNINGS P.A., SNOEYINK V.L., CHIAN E.S.K. (1976). Theoretical model for a submerged biological filter. *Biotechnol. Bioeng.*, Vol. 18, pp. 1249-1273.
- JEWETT D.G., LOGAN B.E., ARNOLD R.G., BALES R.C. (1999). - Transport of *Pseudomonas fluorescens* strain P17 through quartz sand columns as a function of water content. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 36, pp. 73-89.
- JOSE S.C. et CIRPKA O.A. (2004). - Measurement of mixing-controlled reactive transport in homogeneous porous media and its prediction from conservative tracer test data. *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 38, pp. 2089-2096.
- JONES H.C., ROTH I.L., SAUNDERS W.M. III (1969). - Electron microscopic study of a slime layer. *J. Bacteriol*, Vol. 99, pp. 316-325.

- KAPELLOS G.E., ALEXIOU T.S., PAYATAKES A.C. (2007) – Hierarchical simulator of biofilm growth and dynamics in granular porous materials. *Advances in Water Resources*, Vol. 30 (6-7), pp. 1648-1667.
- KECHAGIA P.E., TSIMPONOYIANNIS I.N., YOTSOSO Y.C., LISCHTNER P.C. (2001). - On the upscaling of reaction-transport processes in porous media with fast or finite kinetics. *Chem Eng Sci*, Vol. 57, pp. 2565-2577.
- KILDGAARD J. et ENGESGAARD P. (2001) – Numerical analysis of biological clogging in two-dimensional sand box experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 50, pp. 261-285.
- KILDGAARD J. et ENGESGAARD P. (2002). – Tracer Tests and Image Analysis of biological Clogging in a Two-Dimensional Sandbox Experiment. *GWRM*, Vol. 60, pp. 60-67.
- KIM H.S., JAFFÉ P.R., YOUNG L.Y. (2004). - Simulating biodegradation of toluene in sand column experiments at the macroscopic and pore level scale for aerobic and denitrifying condition. *Adv. Water Resour.*, Vol. 27, pp. 335-348.
- KINDRED J.S. et CELIA M.A. (1989). - Contaminant transport and biodegradation, 2, Conceptual model and test simulations. *Water Resour Res*, Vol. 25 (6), pp. 1149-1159.
- KNUTSON C., VALOCCHI A., WERTH C. (2006). Comparison of continuum and pore-scale models of nutrient biodegradation under transverse mixing conditions. *Advances in water resources*, Vol 30 (6-7), pp. 1421-1431.
- LASPIDOU C.S. et RITTMAN B.E. (2002). - A unified theory for extracellular polymeric substances, soluble microbial products, and active and inert biomass, *Water Research*, Vol. 36, pp. 2711-2720.
- LASSEUX D., AHMADI A., CLEIS X., GARNIER J. (2004). - A macroscopic model for species transport during in vitro tissue growth obtained by the volume averaging method. *Chem Eng Sci*, Vol. 59, pp. 1949–64.
- LEIS A.P., SCHLICHER S., FRANKE H., STRATHMANN M. (2005). – Optically transparent porous medium for non-destructive studies of microbial biofilm architecture and transport dynamics. *Applied and Environmental Microbiology*, Vol 71 (8), pp. 4801-4808.
- LEON-MORALES C.F., LEIS A.P., STRATHMANN M., FLEMMING H.-C. (2004). – Interactions between laponite and microbial biofilms in porous media: implications for colloid transport and biofilm stability. *Water Research*, Vol. 38, pp. 3614-3626.
- LEWANDOWSKA J., SZYMKIEWICZ A., BURZYŃSKI K., VAUCLIN M. (2004). - Modeling of unsaturated water flow in double-porosity soils by the homogenization approach. *Advances in Water Resources*, Vol. 27, pp. 283-296.
- LEWANDOWSKA J., SZYMKIEWICZ A., AURIAULT J.L. (2005). – Upscaling of Richard's equation for soils containing highly conductive inclusions. *Advances in Water Resources*, Vol. 28 (11), pp. 1159-1170.
- LEWANDOWSKI Z. (2000). – Notes on biofilm porosity. *Wat. Res.*, Vol. 34 (9), pp. 2620-2624.
- LOEB G.I. et NEIHOF R.A. (1975). – Marine conditioning films. *Advances in Chemistry*, Vol. 145, pp. 319-335.
- LÖFFLER F.E. et EDWARDS E.A. (2006). – Harnessing microbial activities for environmental cleanup. *Current Opinion in Biotechnology*, Vol. 17, pp. 274-284.
- LYNCH J.M. et HOBIE J.E. (1988). – *Micro-organisms in Action: Concepts and Applications in Microbial Ecology*. Blackwell Scientific Publications.
- MAIER W.J., BEHN V.C., GATES C.D. (1967). - Simulation of the trickling filter process. *J Sanit Eng Divn, ASCE*, Vol. 93, pp. 91-112.
- MAJORS P.D., MCLEAN J.S., FREDRICKSON J.K., WIND R.A. 2005 - NMR methods for in situ biofilm metabolism studies: spatial and temporal resolved measurements. *Water Sci Technol*, Vol. 52 (7), pp. 7–12.

- MARLE C. M. (1967). - Ecoulements monophasiques en milieu poreux. *Rev. Inst. Français du Pétrole*, Vol. 22 (10), pp. 1471-1509.
- MATHERON G. (1965). - Les Variables Régionalisées et Leur Estimation : Une Application de la Théorie Aléatoire Aux Sciences de la Nature, Masson, Paris.
- MEGEE R.D., KINOSHITA S., FREDRICKSON A.G., TSUCHIYA H.M. (1970). - Differentiation and product formation in molds. *Biotechnol. Bioeng.*, Vol. 12, pp. 771-801.
- MEUWLY F. (2005). - Characterization of fibra-cel® packed-bed bioreactors for the culture of cho cells. Thèse de doctorat, section de chimie et d'ingénierie chimique, École Polytechnique Fédérale de Lausanne.
- MILLER C.T., POIRIER-MCNEILL M.M., MAYER A.S. (1990). – Dissolution of trapped nonaqueous phase liquids : Mass transfer characteristics. *Water Resour. Res.*, Vol 26 (11), pp. 2783-2796.
- MIRALLES-WILHELM F., GELHAR L.W., KAPOOR V. (1997). - Stochastic analysis of oxygen-limited biodegradation in three-dimensionally heterogeneous aquifers. *Water Resour. Res.*, Vol. 33 (6), pp. 1251–1263.
- MOHSENI M., ALLEN D.G. (2000). - Biofiltration of mixtures of hydrophilic and hydrophobic volatile organic compounds. *Chemical Engineering Science*, Vol. 55, pp. 1545-1558.
- MORGENROTH E. et WILDERER P.A. (2000). – Influence of detachment mechanisms on competition in biofilms. *Wat. Res.*, Vol. 34 (2), pp. 417-426.
- MOYNE C. (1996). - Two-equation model for a diffusive process in porous media using the volume averaging method with an unsteady state closure. *Adv Water Resour*, Vol. 20, pp. 63–76.
- MURGA R., FOSTER T.S., BROWN E., PRUCKLER J.M., FIELDS B.S., DONLAN R.M. (2001). – The role of biofilms in the survival of *Legionella pneumophila* in a model potable water system. *Microbiology*, Vol. 147, pp. 3121-3126.
- NATIONAL RESEARCH COUNCIL (1993). – In situ bioremediation: When does it work?, Natioanle Academy Press, Washington DC.
- NUÑEZ M.E., MARTIN M.O., CHAN P.H., SPAIN E.M (2005). – Predation, death, and survival in a biofilm: Bdellovibrio investigated by atomic force microscopy. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, Vol. 42, pp. 263-271.
- OATES P.M., CASTENSON C., HARVEY C.F., POLZ M., CULLIGAN P. (2005). – Illuminating reactive microbial transport in saturated porous media : Demonstartion of a visualization method and conceptual transport model. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 77, pp. 233-245.
- OCHOA-TAPIA J.A., STROEVE P., WHITAKER S. (1994). - Diffusive transport in two-phase media: Spatially periodic models and Maxwell's theory for isotropic and anisotropic systems. *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 49, pp. 709-726.
- OFEK I. et DOYLE R.J. (1994). – Bacterial adhesion to cells and tissues. Chapman & Hall, New York.
- ORGOGOZO L., GOLFIER F., BUÈS M.A., WOOD B.D., QUINTARD M. (2008). - Modelling of reactive transport processes in porous media including a biofilm phase in non equilibrium conditions. Euromech colloquium 499 Nonlinear mechanics of multiphase flow in porous media, Nancy, 2008.
- ORGOGOZO L., GOLFIER F., BUÈS M.A. (2009). - Upscaling of Transport processes in porous Media with Biofilms in Equilibrium and Non-Equilibrium Conditions. *Applicable Analysis*, (DOI:101080/00036810902913862).
- PALMER R.J Jr et STERNBERG C. (1999). - Modern microscopy in biofilm research: confocal microscopy and other approaches. *Current Opinion in Biotechnology*, Vol. 10, pp. 263-268.



- PARKER J.C. et VALOCCHI A.J. (1986). - Constraints on the validity of equilibrium and first-order kinetic transport models in structured soils. *Water Resour Res*, Vol. 22, pp. 399–407.
- PICIOREANU C., VAN LOOSDRECHT M.C.M., HEIJNEN J.J. (1998). - Mathematical modeling of biofilm structure with a hybrid differential-discrete cellular automaton approach. *Biotechnol Bioeng*, Vol. 58 (1), pp.101–16.
- QUINTARD M., (1993). - Diffusion in isotropic and anisotropic porous systems. *Transport in Porous Media*, Vol. 11, pp. 187-199.
- QUINTARD M. et WHITAKER S. (1993). - One- and two-equation models for transient diffusion processes in two-phase system. *Advances in Heat Transfer*, Vol. 23, pp. 369-465.
- QUINTARD M. et WHITAKER S. (1994). - Convection, dispersion, and interfacial transport of contaminants: homogeneous porous media. *Adv. Water Resour.*, Vol. 17, pp. 221-239.
- QUINTARD M., KAVIANY M., WHITAKER S. (1997). - Two-medium treatment of heat transfer in porous media: Numerical results for effective properties. *Adv. Water Resour.*, Vol. 20, pp. 77–94.
- QUINTARD M., CHERBLANC F., WHITAKER S. (2001). - Dispersion in heterogeneous porous media: One-equation non-equilibrium model. *Transport in Porous Media*, Vol. 44 (1), pp. 181–203.
- RAO P.S.C., ROLSON D.E., JESSUP R.E., DAVIDSON J.M. (1980). - Solute transport in aggregated porous media: Theoretical and experimental evaluation. *Soil Sci. Am. J.*, Vol. 44 (6), pp. 1139-1146.
- RASETARINERA P. (1995). - Etude Mathématique et Numérique de la Restauration Biologique En Milieu Poreux. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux 1.
- RIFAI H.S. et BEDIENT P.B. (1990). – Comparison of biodegradation kinetics with an instantaneous reaction model for groundwater, *Water Resour. Res.*, Vol. 26 (4), pp. 637-645.
- RITTMANN B.E. et McCARTY P.L. (1981). - Substrate flux into biofilms of any thickness. *J. Environ. Engr.*, Vol. 107, pp. 831-849.
- RICHTER A., SMITH R., RIES R., WILDENAUER F. (1999). – Features of Biofilm Growth on Solid Surfaces Analysed by Monte-Carlo Simulations. *Phys. Stat. sol.*, Vol. 176, pp. 953-968.
- ROBERTS M.E., STEWART P.S. (2005). - Modelling protection from antimicrobial agents in biofilms through the formation of persister cells. *Microbiol.*, Vol. 151, pp. 75-80.
- ROCKHOLD M.L., YARWOOD R.R., NIEMET M.R., BOTTOMLEY P.J., BROCKMAN F.J., SELKER J.S. (2007). – Visualization and modelling of the colonization dynamics of a bioluminescent bacterium in variably saturated, translucent quartz sand. *Advances in Water Resources*, Vol. 30, pp. 1593-1607.
- ROCKHOLD M.L., YARWOOD R.R., NIEMET M.R., BOTTOMLEY P.J., BROCKMAN F.J., SELKER J.S. (2007). – Visualization and modelling of the colonization dynamics of a bioluminescent bacterium in variably saturated, translucent quartz sand. *Water Resources*, Vol. 30, pp. 1593-1607.
- RÖLING W.F.M. et VAN VERSEVELD H.W. (2002). – Natural attenuation: What does the subsurface have in store? *Biodegradation*, Vol. 13, pp. 56-64.
- RUBINSTEIN R. Y. et TORQUATO S. (1989). - Flow in random porous media ; mathematical formulation ; variational principles and rigorous bounds. *J. Fluid Mech.*, Vol. 206, pp. 25-46.
- SANCHEZ-PALENCIA E. (1980). - Lecture Notes in Physics, chapitre Non-homogeneous media and vibration theory. Vol. 127, Springer-Verlaag, New York.
- SAVAGE D.C. et FLETCHER M. (1985). - Bacterial Adhesion. Plenum press.

- SAUER K.; CAMPER A.K., EHRLICH G.D., COSTERTON J.W., DAVIES D.G. (2002). – *Pseudomonas aeruginosa* Displays Multiple Phenotypes during Development as a Biofilm. *J. Bacteriol*, Vol 184 (4), pp. 1140-1154.
- SEIFERT D. ENGESGAARD P. (2007) – Use of tracer tests to investigate changes in flow and transport properties due to bioclogging of porous media. *Journal of contaminant hydrology*, Vol. 93, pp. 58-71.
- SHAFABI M. et VAFAI K. (2009). – Biofilm affected characteristic of porous structures. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 52 (3-4), pp. 574-581.
- SKOWLUND C.T. (1990) - Effect of biofilm growth on steady-state biofilm models. *Biotechnol Bioeng*, Vol. 35 (5), pp. 502–510.
- SLATTERY J. C. (1967). - Flow of viscoelastic fluids through porous media. *AIChE J.*, Vol. 13, pp. 1066-1071.
- SOUTO H.P.A., MOYNE C. (1997). - Dispersion in two-dimensional periodic porous media. Part II: Dispersion tensor. *Phys Fluids*, Vol. 9, pp. 2253–63.
- STEVIK T.K., AA K., Ausland G., Hanssen J.F. (2004). - Retention and removal of pathogenic bacteria in wastewater percolating through porous media: a review. *Water Research*, Vol. 38, pp. 1355-1367.
- STEWART P.S., MCFETERS G.A., HUANG C.T. (2000). - Biofilm control by antimicrobial agents. Extrait de *Biofilms II: Process analysis and applications*. Edité par J.D. Bryers., New York:Wiley-Liss. pp. 373-405.
- STURMAN P.J., STEWART P.S., CUNNINGHAM A.B., BOUWER E.J., WOLFRAM J.H. (1995). - Engineering Scale-up of in-Situ Bioremediation Processes - a Review. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 19, pp. 171-203.
- SUCHOMEL B.J., CHEN B.M., ALLEN B.M. (1998a). - Network model of flow, transport and biofilm effects in porous media. *Transport in porous media*, Vol. 30, pp. 1-23.
- SUCHOMEL B.J., CHEN B.M., ALLEN B.M. (1998b). - Macroscale properties of porous media from a Network model of biofilm processes. *Transport in porous media*, Vol. 31, pp. 39-66.
- SUN Y., PETERSEN J.N., BEAR J., CLEMENT T.P., HOOKER B.S. (1999). – Modeling microbial transport and biodegradation in a dual-porosity system. *Transport in porous media*, Vol. 45, pp. 49-65.
- SYKES J.F., SOYUPAK S., FARQUHAR G.J. (1982). – Modeling of leachate organic migration and attenuation in groundwater below sanitary landfills. *Water Resources Research*, Vol. 18 (1), pp. 135–145.
- TAYLOR G.I. (1953). - Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube. *Proc. Royal Soc. A.*, Vol. 219, pp. 186-203.
- TAYLOR S.W. et JAFFE P.R. (1990). - Substrate and biomass transport in a porous medium. *Water Resour. Res.*, Vol. 26, pp. 2181–2194.
- THULLNER M., MAUCLAIRE L., SCHROTH M.H., KINZELBACH W., ZEYER J. (2002). – Interaction between water flow and spatial distribution of microbial growth in a two-dimensional flow field in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 58, pp. 169-189.
- TIWARI S.K. et BOWERS K.L. (2001). – Modeling Biofilm Growth for Porous Media Applications. *Mathematical and Computer Modelling*, Vol. 33, pp. 299-319.
- VAYENAS D.V. et LYBERATOS G. (1995). - On the design of nitrifying trickling filters for potable water treatment. *Wat Res*, Vol. 29 (4), pp.1079-1084.
- VAYENAS D.V., PAVLOU S., LYBERATOS G. (1997). - Development of a dynamic model describing nitrification and denitrification in trickling filters. *Water Res*, Vol. 31 (5), pp. 1135-1147.

- VAYENAS D.V., MICHALOPOULOU E., CONSTANTINIDES G.N., PAVLOU S., PAYATAKES A.C. (2002). – Visualization experiments of biodegradation in porous media and calculation of the biodegradation rate. *Advances in Water Resources*, Vol. 25 pp. 203-219.
- WEBER W.J., McGinley P.M., KATZ L.E. (1991). – Sorption phenomena in subsurface systems: concepts, models, and effects on contaminant fate and transport. *Water Resour.*, Vol. 25 (5), pp. 499-528.
- WEISS J.V. et COZZARELLI I.M. (2008). – Biodegradation in Contaminated Aquifers: Incorporating Microbial/Molecular Methods. *Ground water*, Vol. 46, pp. 305-322.
- WALKER J.T. et MARSH P.D. (2004). – A review of biofilms and their role in microbial contamination of dental unit water systems (DUWS). *International Biodeterioration and Biodegradation*, Vol. 54, pp. 87-98.
- WANNER O., EBERL H.J., MORGENROTH E., NOGUERA D.R., PICIOREANU C., RITTMANN B.E., VAN LOOSDRECHT M.C.M. (2006). Mathematical modelling of biofilms. Report of the IWA task group. IWA publishing.
- WHITAKER S. (1967). - Diffusion and dispersion in porous media. *AIChE J.*, Vol. 13, pp. 420-427.
- WHITAKER S. (1981). - Introduction to fluid mechanics. R.E. Krieger, Malabar, FL, U.S.A.
- WHITAKER S. (1986). - Flow in porous media I: A theoretical Derivation of Darcy's Law. *Transport In Porous Media*, Vol. 1, pp. 3-25.
- WHITAKER S. (1999). - The method of volume averaging. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers.
- WOLFRUM E.J., WATT A.S. (2002). - Bioreactor design studies for a Hydrogen-producing bacterium. *Appl Biochem Biotechnol*, Vol. 98-100, pp. 611-625.
- WOOD B.D. et WHITAKER S. (1998). - Diffusion and reaction in biofilms. *Chem. Engng. Sci.*, Vol. 53 (3), pp. 397-425.
- WOOD B.D. et WHITAKER S. (1999). - Cellular growth in biofilms. *Biotechnol. Bioeng.*, Vol. 64, pp. 656-670.
- WOOD B.D. et WHITAKER S. (2000). - Multi-species diffusion and reaction in biofilms and cellular media. *Chem. Engng. Sci.*, Vol. 55, pp. 3397-3418.
- WOOD B., RADA KOVICH K., GOLFIER F. (2007). - Effective Reaction at a Fluid-Solid Interface: Applications to Biotransformation in Porous Media. *Adv. Water Resour.*, Vol. 30, pp. 1630-1647.
- WOOD B.D. (2009). - The role of scaling laws in upscaling. *Adv. Water Resour.*, Vol. 32 (5), pp. 723-736.
- WU W.-M., CARLEY J., FIENEN M., MELHORN T. LOWE K., NYMAN J., LUO J., GENTILE M.E., RAJAN R., WAGNER D., HICKEY R.F., B. GU, WATSON D., CIRPKA O.A., KITANIDIS P.K., JARDINE P.M., CRIDDLE C.S. (2006). – Pilot-Scale in Situ Bioremediation of Uranium in a Highly Contaminated Aquifer. 1. Conditioning of a Treatment Zone. *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 40, pp. 3978-3985.
- XIE H., COOK G.S., COSTERTON J.W., BRUCE G., ROSE T.M., LAMONT R.J. (2000). – Intergeneric communication in dental plaque biofilms. *J. Bacteriol*, Vol. 182, pp. 7067-7069.
- ZOBEL C.E. (1943). – The effect of solid surfaces on bacterial activity. *J. Bacteriol*, Vol. 46, pp. 39-56.



## **ANNEXE A : ANNEXE A.1 DE GOLFIER *ET AL.*, 2009**

L'annexe A.1 de Golfier et al., 2009, relative à l'établissement des équations macroscopiques ouvertes (31) et (32) à partir des équations de l'échelle du pore et du biofilm (25) à (30), est ici reportée. Les références bibliographiques utilisées dans cette annexe sont les suivantes :

[13] : Cushman et Ginn, 1993.

[24] : Howes et Whitaker, 1985.

[70] : Whitaker, 1999.

[71] : Wood et Whitaker, 1998.

[73] : Wood et Whitaker, 2000.



that apply to the upscaled representation. The single largest difficulty in this computation is that it is not currently possible to tell *a priori* what volume constitutes a ‘representative’ one, and that ‘representativeness’ depends strongly upon the particular processes of interest. To address this problem, one must essentially conduct a kind of convergence analysis by adopting a set of increasingly complex unit cells, and then examine conditions for which the effective parameter no longer depends strongly upon additional complexity within the unit cell.

These two results are each useful, depending upon the intended purpose of the macroscale model that is developed. If one is interested only in establishing the proper form of the mass balance equation and the domain of validity, then no extensive closure problem needs to be solved. In essence, in this case, the parameters would be treated as being empirically measurable, but one at least has the confidence that the macroscale model that is adopted takes a self-consistent, proper form. In the second case, one hopes that some macroscale variables will be evidently highly correlated with the macroscale parameters. From this study, for example, the results suggest that the macroscale effective dispersion tensor is correlated strongly with the volume fraction of the biofilm and fluid phases, and with the correlation structure of the medium (i.e., the results from periodic and random media lead to different behaviors). The goal for this second approach is that ultimately a handful of such parameters can be established such that the effective dispersion tensor can be predicted with reasonable accuracy for a wide range of media. Although this study represents only an initial foray into the various kinds of media that might be encountered, it nonetheless lays out an approach which can be adopted in principle for any kind of structure within a representative volume characterized at the microscale.

## Acknowledgements

This work has been partially supported by the EC2CO-CNRS/INSU program and the French Scientific Interest Group – Industrial Wasteland (GISFI), and by GdR 2990. B.D. Wood was supported in part by the National Science Foundation under Grant CBET 0449452 (‘Microbial Transport and Adhesion – A Multiscale Approach’) and the Department of Energy, Office of Science, Grant DE-PS02-07ER07-01. Paul Majors is thanked for providing MRI expertise in the measurement of the tomographic images of the porous media.

## Appendix A. Development of the volume averaged equations

### A.1. Averaging and simplifications

Although forming the volume average equations is conceptually straight forward, it does involve significant algebraic effort. We have provided the details of this development in this appendix. In Fig. 1, we have illustrated the three-phase system (biofilm, fluid, and solid) defining the microscale physical problem. The microscale equations are provided in the body of the paper, and are rewritten here for convenience

#### Biofilm phase

$$\frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) + R_{A\omega} \quad \text{in the } \omega\text{-phase,} \quad (\text{A.1a})$$

$$\text{B.C.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = 0 \quad \text{at } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{A.1b})$$

$$\text{B.C.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma} = 0 \quad \text{at } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{A.1c})$$

$$\text{B.C.3} \quad c_{A\gamma} = K_{A,eq} c_{A\omega} \quad \text{at } A_{\gamma\omega}, \quad (\text{A.1d})$$

$$\text{B.C.4} \quad -\mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} = -\mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma} \quad \text{at } A_{\omega\gamma}, \quad (\text{A.1e})$$

#### Fluid phase

$$\frac{\partial c_{A\gamma}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_{\gamma} c_{A\gamma}) = \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) \quad \text{in the } \gamma\text{-phase.} \quad (\text{A.1f})$$

In Eq. (A.1a),  $R_{A\omega}$  is the nonlinear reaction kinetic term

$$R_{A\omega} = -\mu_{A\omega} \rho_{\omega} \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}}. \quad (\text{A.2})$$

In the developments that follow, we assume that within the averaging volume we can ignore variations in the parameters  $\mathbf{D}_{A\omega}$ ,  $\mathbf{D}_{A\gamma}$ ,  $\mu_{A\omega}$ ,  $\rho_{\omega}$ ,  $K_{A,\omega}$ ,  $K_{B,\omega}$ , and  $K_{A,eq}$ .

We wish to determine the macroscale transport equations that apply at the scale of the averaging volume illustrated in Fig. 1. To develop these expressions, we form the volume average of the two phases in which there is non-negligible transport. We begin by forming the superficial average of the transport equation for the  $\omega$ -phase, Eq. (2), yielding

$$\left\langle \frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} \right\rangle = \langle \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) \rangle + \langle R_{A\omega} \rangle. \quad (\text{A.3})$$

For the system under study, microbial growth will create conditions where the surface of biofilm phase moves at a velocity  $\mathbf{w}$  due to the increasing volume of the  $\omega$ -phase. Under these conditions the *general transport theorem* [70] is required to interchange spatial integration and time differentiation,

#### General transport theorem

$$\left\langle \frac{\partial c_{A\omega}}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle}{\partial t} - \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{w} c_{A\omega} dA \quad (\text{A.4})$$

For interchanging spatial differentiation and integration, we need to make use of the *spatial averaging theorem* [24]. For three-phase systems, the averaging theorem takes the form [70]

#### Spatial averaging theorems

$$\langle \nabla c_{A\omega} \rangle = \nabla \langle c_{A\omega} \rangle + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} c_{A\omega} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} c_{A\omega} dA, \quad (\text{A.5})$$

$$\langle \nabla c_{A\gamma} \rangle = \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\gamma\omega}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} c_{A\gamma} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} c_{A\gamma} dA. \quad (\text{A.6})$$

Applying Eqs. (A.4) and (A.5) to Eq. (A.3), we find

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}{\partial t} &= \nabla \cdot \langle \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega} \rangle + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{w} c_{A\omega} dA \\ &\quad + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \\ &\quad + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA + \langle R_{A\omega} \rangle^{\omega}. \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Applying Eq. (A.5) a second time and using the definition of the intrinsic average ( $\langle c_{A\omega} \rangle = \varepsilon_{\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}$ ) yields

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\varepsilon_{\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega})}{\partial t} &= \nabla \cdot \left[ \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \varepsilon_{\omega} \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} \nabla \varepsilon_{\omega} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} c_{A\omega} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} c_{A\omega} dA \right] \\ &\quad + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{w} c_{A\omega} dA \\ &\quad + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \\ &\quad + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA + \varepsilon_{\omega} \langle R_{A\omega} \rangle^{\omega}. \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

We will adopt two simplifications to the averaged transport equation for the  $\omega$ -phase. The first is that the term involving convection

of the boundary can be neglected. Generally, the rate of biofilm growth will yield a boundary flux that is much smaller than the diffusive interfacial flux, i.e.,

$$\mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{w}c_{A\omega} \ll \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}, \tag{A.9}$$

or, in other words, the time-scale associated to the geometry evolution is much longer than the other physical and chemical process time scales. A similar restriction has been discussed in more detail by Wood and Whitaker [71]. The second simplification is that the nonlinear reaction term can be averaged to yield a result of the form

$$\langle R_{A\omega} \rangle^\omega = -\mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}}. \tag{A.10}$$

Although the reaction rate term is nonlinear, it is a particularly benign nonlinearity that is bounded by linear forms in the limits  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega \ll K_{A\omega}$ ,  $\langle c_{B\omega} \rangle^\omega \ll K_{B\omega}$  and  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega \gg K_{A\omega}$ ,  $\langle c_{B\omega} \rangle^\omega \gg K_{B\omega}$ .

For this reason, the averaged reaction rate can be put in the form of Eq. (A.10) under the very mild restrictions. The development of Eq. (A.10) and the restrictions associated with its use are developed by Wood and Whitaker [73]. The simplified averaged transport equation takes the form

*Averaged equation for the biofilm*

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon_\omega \langle c_{A\omega} \rangle^\omega)}{\partial t} = \nabla \cdot \left[ \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \varepsilon_\omega \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \nabla \varepsilon_\omega \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} c_{A\omega} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} c_{A\omega} dA \right) \right] \\ + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \\ + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \\ - \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}}. \end{aligned} \tag{A.11}$$

The same basic procedure can be followed to develop the average of Eq. (A.1e), yielding

Here we have imposed a constraint similar to the inequality (A.9)

$$\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{w}c_{A\gamma} \ll \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}, \tag{A.13}$$

that allows us to neglect the convective flux that arises from the growth of the microbial phase.

The velocity term that appears in Eq. (A.12) requires some special treatment. First note that by the spatial average theorem

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \rangle = \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma} \rangle + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\gamma\omega}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma} dA \\ + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma} dA. \end{aligned} \tag{A.14}$$

Note that at the  $\gamma$ - $\kappa$  and the  $\gamma$ - $\omega$  interfaces the normal convective flux is identically zero, allowing Eq. (A.14) to be simplified to

$$\langle \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \rangle = \nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma} \rangle. \tag{A.15}$$

To simplify further, we define the spatial decompositions

$$\mathbf{v}_\gamma = \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma, \tag{A.16a}$$

$$c_{A\omega} = \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega}, \tag{A.16b}$$

$$c_{A\gamma} = \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \tilde{c}_{A\gamma}, \tag{A.16c}$$

so that

$$\nabla \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma} \rangle = \nabla \cdot \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \tilde{c}_{A\gamma} + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \right). \tag{A.17}$$

For the purposes of this analysis, we will impose the restrictions

$$\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \rangle \ll \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle, \tag{A.18}$$

$$\langle \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle \ll \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle. \tag{A.19}$$

These restrictions have been examined in more detail by Whitaker [70, Sections 3.2.1, 3.2.3, 3.3.1]. When this restriction is valid, Eq. (A.14) can be simplified to the form

$$\langle \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \rangle = \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle. \tag{A.20}$$

Substituting Eq. (A.20) into the volume averaged representation given in Eq. (A.12) yields

*Averaged equation for the fluid*

---


$$\begin{aligned} \underbrace{\frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Convection}} = \nabla \cdot \left[ \underbrace{\mathbf{D}_{A\gamma} (\varepsilon_\gamma \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \nabla \varepsilon_\gamma)}_{\text{Diffusion}} + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} c_{A\gamma} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} c_{A\gamma} dA \right] \\ + \underbrace{\frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA}_{\text{Interfacial Flux}} - \underbrace{\nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle}_{\text{Dispersion}}. \end{aligned} \tag{A.21}$$


---

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \langle \nabla \cdot (\mathbf{v}_\gamma c_{A\gamma}) \rangle = \nabla \cdot \left[ \mathcal{D}_{A\gamma} (\varepsilon_\gamma \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \nabla \varepsilon_\gamma \right. \\ \left. + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} c_{A\gamma} dA \right. \\ \left. + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} c_{A\gamma} dA \right) \\ + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA \\ + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA, \end{aligned} \tag{A.12}$$

Eqs. (A.11) and (A.21) represent the volume averaged equations for the  $\omega$ - and  $\gamma$ -phases, respectively. One difficulty with these expressions is that the microscale concentrations  $c_{A\gamma}$  and  $c_{A\omega}$  still appear on the right-hand side of the equation, so the equations are not yet closed (i.e., the independent variables are not yet expressed solely in terms of averages). Additionally, the equations are nonlocal in the sense of Cushman and Ginn [13]. We will discuss the method for closing the averaged equations in more detail below. First, however, we will examine the problem of nonlocality, and the constraints required to localize the transport equations.



## Annexe B : Développement du problème de fermeture pour le modèle RRLC

Si on considère l'égalité :

$$\tilde{c}_{A\gamma} = c_{A\gamma} - \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (\text{B.1})$$

Et si on soustrait l'équation de transport macroscopique ouverte pour la phase fluide (32) à l'équation de transport microscopique dans la phase fluide (33), on obtient l'équation suivante

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{c}_{A\gamma}}{\partial t} + \varepsilon_\gamma^{-1} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \frac{\partial \varepsilon_\gamma}{\partial t} &= \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} - \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + (\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \varepsilon_\gamma) \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \\ &- \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \left[ \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \right] \\ &- \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA - \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA \\ &- \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

On simplifie ensuite cette équation par des comparaisons des ordres de grandeurs de différents termes et en utilisant l'hypothèse de séparation des échelles. Ces estimations mènent aux relations suivantes (e.g. Quintard and Whitaker, 1993) :

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg (\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \varepsilon_\gamma) \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \quad (\text{B.3})$$

$$\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} \gg \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle \quad (\text{B.4})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) dA \quad (\text{B.5})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) dA \quad (\text{B.6})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \left[ \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \right] \quad (\text{B.7})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \frac{\partial \tilde{c}_{A\gamma}}{\partial t} \quad (\text{B.8})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \varepsilon_\gamma^{-1} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \frac{\partial \varepsilon_\gamma}{\partial t} \quad (\text{B.9})$$

Les termes négligés dans les estimations ci dessus sont des termes non-locaux, c'est à dire des termes pour lesquels la déviation spatiale est évaluée dans d'autres points que le centre du volume de prise de moyenne. Ces valeurs sont des quantités moyennées, dont l'ordre de grandeur est  $\circ\left(\frac{1}{L}\right)$  alors que les autres termes sont de l'ordre de  $\circ\left(\frac{1}{l_\gamma}\right)$  ce qui autorise à les négliger. L'équation en déviation devient :

$$\begin{aligned} \mathbf{v}_\gamma \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma = \\ \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\omega, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{B.11})$$

$$\text{C.L.2} \quad \tilde{c}_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{B.12})$$

La dernière condition aux limites est imposée par l'hypothèse  $c_{A\omega} = K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$ , en  $A_{\gamma\omega}$  du modèle RRLC. Afin d'obtenir le problème de fermeture du modèle RRLC, on injecte l'hypothèse de fermeture

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (\text{B.13})$$

dans l'équation en déviation. Une hypothèse importante est faite a ce stade de l'analyse : il s'agit de l'hypothèse de petites variations à l'échelle inférieure des gradients de concentrations macroscopiques (*cf.* Kechagia *et al.*, 2001, pour une analyse des limites d'une telle hypothèse), qui nous autorise à écrire :

$$\nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma} \quad (\text{B.14})$$

Et si on considère  $\varepsilon_\gamma$  comme une quantité constante dans l'espace à petite échelle, on obtient le problème de fermeture suivant :

$$\mathbf{v}_\gamma \nabla \mathbf{b}_{A_\gamma} + \tilde{\mathbf{v}}_\gamma = \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A_\gamma} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A_\gamma}) - \mathcal{D}_{A_\gamma} \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega_\gamma(t)}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A_\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa(t)}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A_\gamma} dA \right) \quad (\text{B.15})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A_\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{B.16})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{b}_{A_\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{B.17})$$

Des conditions de périodicité et de moyennes nulles par phases doivent être ajoutées pour clore ce problème.



## Annexe C : Développement du calcul du facteur d'efficacité

Nous débutons ce développement par l'écriture du flux interfacial entre les phases  $\gamma$  et  $\omega$  sous la forme :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA = \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla S_{A\omega}) dA \quad (C.1)$$

Dans le cadre de l'hypothèse de quasi-stationnarité des échanges entre phases à l'échelle microscopique, on peut considérer que la valeur du flux interfacial et celle du taux de dégradation total dans la phase biofilm sont égales. Nous définissons ensuite le facteur d'efficacité de la réaction comme le rapport entre le taux de réaction observé et le taux de réaction maximal, qui serait observé si la totalité de la phase biofilm était exposée à la concentration de l'interface biofilm-fluide. Le facteur d'efficacité  $\eta_A$  peut donc être exprimé sous la forme :

$$\eta_A = \frac{V}{V_\omega} \frac{1}{c_{B\omega}^*} \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}}{\mu_{A\omega} \rho_\omega V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla S_{A\omega}) dA \quad (C.2)$$

Considérant cette définition du facteur d'efficacité, le flux interfacial peut être réécrit de la manière suivante :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA = \eta_A \frac{1}{V} \int_{V_\omega} \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} dV \quad (C.3)$$

et finalement, il vient

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA = \eta_A \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \quad (C.4)$$

Si on met l'expression du facteur d'efficacité sous une forme adimensionnelle, on obtient :

$$\eta_A = \frac{(K_{eff,A} + 1)}{c_{B\omega}^* \varepsilon_\omega Da_A} \int_{A_{\gamma\omega}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \cdot (S_{A\omega}) dA \quad (C.5)$$

Dans cette expression, nous avons utilisé les grandeurs adimensionnées suivantes :

$$Da_A = \frac{\ell_\omega^2 \mu_{A\omega} \rho_\omega}{D_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (C.6)$$

$$K_{eff,A} = \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A\omega}} \quad (C.7)$$

## Annexe D : Résultat des comparaisons entre modèle par changement d'échelle et simulations directes

On présente ici les tableaux récapitulatifs des différences relatives entre les différents moments des distributions (dérivés des courbes de percée ou profils de concentration) obtenues à l'aide des modèles par changement d'échelle et des simulations directes. Les conditions hydrodynamiques vérifiant nos critères de comparaison sont surlignées en vert.

### modèle LEA

Moment d'ordre 0

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				19,57%			
2,E+05			0,00%	0,00%	5,90%	132,07%	22,56%
1,E+05			0,00%	0,00%	0,76%	36,19%	
1,E+04		0,00%	0,00%	0,00%	-0,04%		
1,E+03		0,00%		0,47%	-6,47%	1,91%	
1,E+02							
1,E+00	-0,18%	-0,08%			0,08%		
1,E-02				-0,04%			

Moment d'ordre 1

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				-91,57%			
2,E+05			-57,37%	-87,75%	-90,18%	-52,08%	-15,27%
1,E+05			-99,98%	-83,92%	-82,15%	-73,69%	
1,E+04		-42,25%	-57,53%	-75,24%	584,61%		
1,E+03		-24,15%		-29,49%	-2,22%	4,22%	
1,E+02							
1,E+00	-0,02%	0,53%			2,77%		
1,E-02				1,34%			

Moment d'ordre 2

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				-100,00%			
2,E+05			-100,00%	-99,99%	-99,41%	-59,88%	-10,11%
1,E+05			-99,98%	-99,90%	-97,76%	-90,33%	
1,E+04		-97,15%	-98,15%	-97,39%	4209,67%		
1,E+03		-63,87%		-61,51%	-4,46%	9,15%	
1,E+02							
1,E+00	-0,04%	1,09%			5,86%		
1,E-02				2,78%			

### Modèle RRLC

Moment d'ordre 0

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				19,57%			
2,E+05			0,00%	0,00%	5,90%	9,80%	2,62%
1,E+05			0,00%	0,00%	0,52%	4,01%	
1,E+04		0,00%	0,00%	0,00%	-12,18%		
1,E+03		0,00%		0,40%	-0,55%	1,21%	
1,E+02							
1,E+00	-6,57%	0,35%			-0,03%		
1,E-02				-0,03%			

Moment d'ordre 1

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				-91,57%			
2,E+05			-54,83%	-78,71%	-56,11%	-3,90%	0,91%
1,E+05			-87,00%	-60,89%	-6,40%	0,14%	
1,E+04		-16,42%	-40,20%	-42,13%	1305,08%		
1,E+03		-16,03%		-13,41%	3,00%	2,84%	
1,E+02							
1,E+00	0,29%	4,99%			8,82%		
1,E-02				7,50%			



Moment d'ordre 2

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				-100,00%			
2,E+05			-98,54%	-98,76%	-84,03%	-7,86%	-4,57%
1,E+05			-94,76%	-92,44%	-21,11%	-11,59%	
1,E+04		-48,88%	-83,61%	-75,46%	15087,82%		
1,E+03		-49,21%		-31,34%	6,30%	6,10%	
1,E+02							
1,E+00	0,58%	10,57%			19,14%		
1,E-02				16,12%			

### Modèle MTLC

Moment d'ordre 0

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				19,28%			
2,E+05			0,00%	-0,11%	-47,75%	-95,74%	-96,69%
1,E+05			0,00%	-0,11%	-50,28%	-76,39%	
1,E+04		0,00%	0,00%	-0,11%	-50,66%		
1,E+03		0,00%		0,36%	-20,00%	-1,27%	
1,E+02							
1,E+00	-100,00%	-100,00%			-49,81%		
1,E-02				-99,79%			

Moment d'ordre 1

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				28,54%			
2,E+05			10,11%	83,16%	64,07%	-16,19%	-12,27%
1,E+05			27,66%	131,75%	111,18%	16,96%	
1,E+04		-6,54%	1,46%	62,13%	1638,93%		
1,E+03		-25,57%		-28,71%	12,79%	5,48%	
1,E+02							
1,E+00	0,98%	4.10^5%			17,62%		
1,E-02				25,09%			

Moment d'ordre 2

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+06				48,97%			
2,E+05			-1,87%	145,35%	34,33%	-30,63%	-8,56%
1,E+05			22,50%	382,18%	124,65%	-6,83%	
1,E+04		-27,61%	-7,89%	153,08%	17760,54%		
1,E+03		-59,27%		-37,01%	28,34%	11,87%	
1,E+02							
1,E+00	2,89%	1,7.10^9%			39,99%		
1,E-02				59,32%			

### Modèle TEM

Moment d'ordre 0

Da\Pe	1,E-02	1,E-01	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04
1,E+04							
1,E+03					7,86%	3,68%	
1,E+02				7,68%	0,38%	0,26%	
1,E+01	9,54%		3,17%	0,19%			0,71%
1,E+00	1,60%		0,14%				
1,E-01							
1,E-02	1,79%					-0,25%	4,34%

Moment d'ordre 1

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+04							
1,E+03					0,19%	2,54%	
1,E+02				0,67%	0,62%	1,18%	
1,E+01	0,08%		0,26%	0,74%			5,67%
1,E+00	0,20%		0,32%				
1,E-01							
1,E-02	0,15%					1,87%	6,59%

Moment d'ordre 2

Da\Pe	1,E-02	1,E+00	1,E+01	1,E+02	1,E+03	1,E+04	1,E+05
1,E+04							
1,E+03					0,40%	5,35%	
1,E+02				1,39%	1,30%	2,51%	
1,E+01	0,16%		0,53%	1,53%			12,43%
1,E+00	0,42%		0,67%				
1,E-01							
1,E-02	0,15%					3,94%	14,18%



## Annexe E : Établissement du problème gouvernant les déviations en concentration associé au modèle à deux équations

Si nous soustrayons les équations macroscopiques de transport ouvertes (équations (32) et (33)) aux équations de transport à l'échelle du pore (équations (26) et (27)), nous obtenons les équations suivantes :

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \tilde{c}_{A\gamma}}{\partial t} + \varepsilon_\gamma^{-1} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \frac{\partial \varepsilon_\gamma}{\partial t} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} - \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \\
 &+ (\varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \varepsilon_\gamma) \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \\
 &- \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \left[ \varepsilon_\gamma \mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \right] \\
 &- \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA - \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA \\
 &- \varepsilon_\gamma^{-1} \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle
 \end{aligned} \tag{E.1}$$

*Phase  $\gamma$*

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \tilde{c}_{A\omega}}{\partial t} + \varepsilon_\omega^{-1} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \frac{\partial \varepsilon_\omega}{\partial t} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) + (\varepsilon_\omega^{-1} \nabla \varepsilon_\omega) \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\
 &- \varepsilon_\omega^{-1} \nabla \cdot \left[ \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \right] \\
 &- \varepsilon_\omega^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA - \varepsilon_\omega^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \\
 &- \varepsilon_\omega^{-1} (R_{A\omega} - \langle R_{A\omega} \rangle^\omega)
 \end{aligned} \tag{E.2}$$

Avec

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \tag{E.3}$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{E.4})$$

$$\text{C.L.3} \quad \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} = K_{A,\text{eq}} (\tilde{c}_{A\gamma} + \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma), \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{E.5})$$

$$\begin{aligned} \text{C.L.4} \quad & \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega = \\ & \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \end{aligned} \quad (\text{E.6})$$

Où

$$R_{A\omega} = \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \quad (\text{E.7})$$

et

$$\langle R_{A\omega} \rangle^\omega = \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \quad (\text{E.8})$$

La prise de moyenne du terme réactif présentée par l'équation (E.8) a été établie dans Wood et Whitaker, 1998. Il est important de noter que cette prise de moyenne nécessite l'hypothèse suivante :

$$\langle c_{A\omega} \rangle^\omega \gg \tilde{c}_{A\omega} \quad (\text{E.9})$$

Nous simplifions ensuite ces équations par des comparaisons des ordres de grandeurs des différents termes et en utilisant l'hypothèse de séparation des échelles (Quintard et Whitaker, 1993). Ces estimations mènent aux relations suivantes:

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg (\boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \nabla \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma) \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \quad (\text{E.10})$$

$$\mathbf{v}_\gamma \nabla \tilde{c}_{A\gamma} \gg \nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle \quad (\text{E.11})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \nabla \cdot \left[ \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \right] \quad (\text{E.12})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \boldsymbol{\varepsilon}_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) dA \quad (\text{E.13})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \varepsilon_\gamma^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \left( \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) dA \quad (\text{E.14})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \frac{\partial \tilde{c}_{A\gamma}}{\partial t} \quad (\text{E.15})$$

$$\nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \gg \varepsilon_\gamma^{-1} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \frac{\partial \varepsilon_\gamma}{\partial t} \quad (\text{E.16})$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \gg (\varepsilon_\omega^{-1} \nabla \varepsilon_\omega) \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \quad (\text{E.17})$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \gg \varepsilon_\omega^{-1} \nabla \cdot \left[ \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \right] \quad (\text{E.18})$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \gg \varepsilon_\omega^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \left( \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \right) dA \quad (\text{E.19})$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \gg \varepsilon_\omega^{-1} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \left( \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \right) dA \quad (\text{E.20})$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \gg \frac{\partial \tilde{c}_{A\omega}}{\partial t} \quad (\text{E.21})$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \gg \varepsilon_\omega^{-1} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \frac{\partial \varepsilon_\omega}{\partial t} \quad (\text{E.22})$$

Les termes négligés dans les estimations ci dessus sont des termes non-locaux, c'est à dire des termes pour lesquels la déviation spatiale est évalué dans d'autres points que le centre du volume de prise de moyenne. Ces termes sont des quantités moyennées, dont l'ordre de grandeur est  $\circ\left(\frac{1}{L}\right)$  alors que les autres termes sont de l'ordre de  $\circ\left(\frac{1}{l_\gamma}\right)$  ce qui autorise à

les négliger. Les équations en déviation deviennent :

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{c}_{A\gamma}}{\partial t} &= \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} - \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \\ &\quad - \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \left( \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \end{aligned} \quad (\text{E.23})$$

Phase  $\gamma$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{c}_{A\omega}}{\partial t} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \\ &\quad - \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \\ &\quad - \varepsilon_\omega^{-1} (R_{A\omega} - \langle R_{A\omega} \rangle^\omega) \end{aligned} \quad (\text{E.24})$$

Nous exprimons ensuite le terme déviationnel de réaction de la manière suivante :

$$\begin{aligned} R_{A\omega} - \langle R_{A\omega} \rangle^\omega &= \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \left( \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} - \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \right) \\ &= \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \left( \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega}} - \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \right) \\ &= \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega})(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}) - \langle c_{A\omega} \rangle^\omega (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega})}{(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega})(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega})} \\ &= \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega})(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}) - \langle c_{A\omega} \rangle^\omega (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega})}{(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega})(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega})} \\ &= \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\left( (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega)^2 + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} K_{A\omega} \right)}{\left( (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega)^2 + \tilde{c}_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega}^2 \right)} \\ &= \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\tilde{c}_{A\omega} K_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega}^2} \\ &\approx \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\tilde{c}_{A\omega} K_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}^2} \\ &\approx \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\tilde{c}_{A\omega} K_{A\omega}}{(\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega})^2} \end{aligned} \quad (\text{E.25})$$

On a alors un problème en déviation qui s'exprime de la manière suivante :



Phase  $\omega$

$$\begin{aligned} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} c_{B\omega}^* \frac{K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega}}{\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + K_{A\omega}\right)^2} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) \\ &- \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \frac{1}{V_{\omega} A_{\omega\gamma}(t)} \int \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{V_{\omega} A_{\omega\kappa}(t)} \int \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \end{aligned} \quad (\text{E.26})$$

Phase  $\gamma$

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} &= \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) \\ &- \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V_{\gamma} A_{\omega\gamma}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_{\gamma} A_{\gamma\kappa}} \int \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \end{aligned} \quad (\text{E.27})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{E.28})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{E.29})$$

$$\text{C.L.3} \quad \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + \tilde{c}_{A\omega} = K_{A,eq} (\tilde{c}_{A\gamma} + \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}), \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{E.30})$$

$$\begin{aligned} \text{C.L.4} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} &= \\ \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}, &\quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \end{aligned} \quad (\text{E.31})$$

Et finalement, en considérant les conditions aux limites associées, on peut établir la forme finale du problème gouvernant les champs de déviations  $\tilde{c}_{A\gamma}$  et  $\tilde{c}_{A\omega}$ :

*Équation en déviation pour la phase biofilm  $\omega$*

$$\begin{aligned} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} c_{B\omega}^* \frac{K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega}}{\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + K_{A\omega}\right)^2} &= \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) - \frac{1}{V_{\omega} A_{\omega\gamma}(t)} \int \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) dA &- \frac{1}{V_{\omega} A_{\omega\kappa}(t)} \int \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) dA \end{aligned} \quad (\text{E.32})$$

*Équation en déviation pour la phase fluide  $\gamma$*

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \\ \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\text{op}}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\text{sp}}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA \end{aligned} \quad (\text{E.33})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{E.34})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{E.35})$$

$$\text{C.L.3} \quad (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{A,\text{eq}} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \tilde{c}_{A\omega} = K_{A,\text{eq}} \tilde{c}_{A\gamma} \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{E.36})$$

$$\begin{aligned} \text{C.L.4} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega = \\ \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \end{aligned} \quad (\text{E.37})$$

## Annexe F : Établissement des problèmes de fermeture associé aux modèles à deux équations, ou « c'est tellement plus drôle quand c'est compliqué ».

En premier lieu, on peut noter qu'on a le droit d'écrire le problème gouvernant les champs de déviations associé au modèle à deux équations de la manière suivante :

*Problème en déviation : phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} \mu_{A\omega} \rho_{\omega} c_{B\omega}^* \frac{K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega}}{\left(\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + K_{A\omega}\right)^2} = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) - \frac{1}{V_{\omega}} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) dA - \frac{1}{V_{\omega}} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega}) dA \end{aligned} \quad (\text{F.1})$$

*Problème en déviation : phase  $\gamma$*

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \\ \nabla \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) - \frac{1}{V_{\gamma}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA - \frac{1}{V_{\gamma}} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma}) dA \end{aligned} \quad (\text{F.2})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \underbrace{\nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.3})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \underbrace{\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.4})$$

$$\text{C.L.3} \quad \underbrace{\langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}_{\text{source}} + \tilde{c}_{A\omega} = K_{A,eq} \left( \tilde{c}_{A\gamma} + \underbrace{\langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}} \right), \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.5})$$

$$\begin{aligned} \text{C.L.4} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla \tilde{c}_{A\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \underbrace{\nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega}}_{\text{source}} \\ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \tilde{c}_{A\gamma} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \underbrace{\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}_{\text{source}}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \end{aligned} \quad (\text{F.6})$$

En d'autres termes, on considère ici que  $\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma$  et  $\langle c_{A\omega} \rangle^\omega$  sont deux termes sources des champs de déviations qui sont indépendants l'un de l'autre. Ce n'est pas malin (l'auteur a fini par en prendre conscience), mais c'est licite. Cela nous amène évidemment à formuler les hypothèses de fermeture suivante :

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\gamma\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + r_{A\gamma\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (\text{F.7})$$

$$\tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{b}_{A\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\omega\gamma} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + r_{A\omega\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (\text{F.8})$$

En injectant ces hypothèses de fermetures dans le problème en déviation, nous obtenons 4 problèmes de fermetures distincts. Pour l'établissement de ces problèmes de fermetures, nous utilisons de manière classique des conditions de périodicité aux limites de la cellule et des conditions de moyenne nulle par phase (voir paragraphe 4.1).

*Problème de fermeture vectorielle I :*

( $\gamma$ -phase)

$$Pe_A (\tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA \quad (\text{F.9})$$

( $\omega$ -phase)

$$\nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}'_{A\omega\gamma}}{(K_{\text{eff},A}^{-1} + 1)^2} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.10})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.11})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.12})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.13})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.14})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.15})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.16})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.17})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{F.18})$$

*Problème de fermeture vectorielle II :*

*( $\gamma$ -phase)*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (\text{F.19})$$

*( $\omega$ -phase)*

$$\nabla^2 \mathbf{b}_{A\omega\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}}{(K_{eff,A}^{-1} + 1)^2} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\kappa\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA \quad (\text{F.20})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.21})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.22})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{D}_\Gamma + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.23})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.24})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.25})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.26})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.27})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{F.28})$$

*Problème de fermeture scalaire I*

*( $\gamma$ -phase)*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma}) = \nabla^2 r_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma} dA \quad (\text{F.29})$$

( $\omega$ -phase)

$$\nabla^2 s_{A\omega\gamma} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{(s_{A\omega\gamma} + 1)}{(K_{eff,A\omega} + 1)^2} = -\frac{1}{V_{\omega}^{A\omega\gamma(t)}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega\gamma} dA \quad (F.30)$$

$$C.L.1 \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla s_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (F.31)$$

$$C.L.2 \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (F.32)$$

$$C.L.3 \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{\Gamma} \cdot \nabla s_{A\omega\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (F.33)$$

$$C.L.4 \quad s_{A\omega\gamma} = r_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (F.34)$$

$$C.L.5 \text{ (Périodicité)} \quad s_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = s_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (F.35)$$

$$C.L.6 \text{ (Périodicité)} \quad r_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = r_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (F.36)$$

$$C.L.7 \quad \langle r_{A\gamma\gamma} \rangle^{\gamma} = 0 \quad (F.37)$$

$$C.L.8 \quad \langle s_{A\omega\gamma} \rangle^{\omega} = -1 \quad (F.38)$$

*Problème de fermeture scalaire II*

( $\gamma$ -phase)

$$Pe_A (\mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 r'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_{\gamma}^{A\omega\gamma(t)}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega} dA \quad (F.39)$$

( $\omega$ -phase)

$$\nabla^2 s_{A\omega\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{(s_{A\omega\omega} - 1)}{(K'_{eff,A} + 1)^2} = -\frac{1}{V_{\omega}^{A\omega\gamma(t)}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega\omega} dA \quad (F.40)$$

$$C.L.1 \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla s_{A\omega\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (F.41)$$

$$C.L.2 \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (F.42)$$

$$C.L.3 \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{\Gamma} \cdot \nabla s_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (F.43)$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega\omega} = r'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.44})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.45})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.46})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle r'_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.47})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle s_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{F.48})$$

Avec

$$\mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}}{l_\gamma} \quad (\text{F.49})$$

$$\mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\gamma}}{l_\gamma K_{A,eq}} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = \frac{K_{A,eq} \mathbf{b}_{A\gamma\omega}}{l_\gamma} \quad (\text{F.50})$$

$$s_{A\omega\gamma} = -1 + \frac{r_{A\omega\gamma}}{K_{A,eq}} \quad ; \quad s_{A\omega\omega} = 1 + r_{A\omega\omega} \quad ; \quad r'_{A\gamma\omega} = K_{A,eq} r_{A\gamma\omega} \quad (\text{F.51})$$

$$K_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{\langle \mathbf{c}_{A\omega} \rangle^\omega} \quad ; \quad \mathbf{D}_\Gamma = \frac{K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\omega}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (\text{F.52})$$

$$Da_A = \frac{\mu_{A\omega} \rho_\omega l_\omega^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (\text{F.53})$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (\text{F.54})$$

$$Pe = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| \ell_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (\text{F.55})$$

Où on utilise la notation :

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{F.56})$$

De plus, si on injecte les hypothèses de fermeture présentées ci-dessus dans les équations de transport macroscopique ouverte (32) et (33), nous obtenons la forme fermée suivante de ces équations :

*Équation de transport macroscopique fermée pour la phase biofilm  $\omega$  :*

$$\begin{aligned}
\varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\
&+ \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\omega\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\omega\omega}^* \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\
&+ \mathbf{u}_{A\omega\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{u}_{\omega\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \\
&+ \alpha_{A\omega\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \alpha_{A\omega\omega}^* \langle c_{A\omega} \rangle^\omega
\end{aligned} \tag{F.57}$$

*Équation de transport macroscopique fermée pour la phase fluide  $\gamma$  :*

$$\begin{aligned}
\varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\
&+ \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma\omega}^* \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\
&+ \mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{u}_{A\gamma\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \\
&+ \alpha_{A\gamma\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \alpha_{A\gamma\omega}^* \langle c_{A\omega} \rangle^\omega
\end{aligned} \tag{F.58}$$

où les coefficients qui interviennent dans ces équations sont donnés par

$$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle + \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} \tag{F.59}$$

$$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle \tag{F.60}$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} r_{A\gamma\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} r_{A\gamma\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma r_{A\gamma\gamma} \rangle \tag{F.61}$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma\omega}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} r_{A\gamma\omega} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} r_{A\gamma\omega} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma r_{A\gamma\omega} \rangle \tag{F.62}$$

$$\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA \tag{F.63}$$



$$\mathbf{u}_{A\gamma\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA \quad (\text{F.64})$$

$$\alpha_{A\gamma\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma\gamma}) dA \quad (\text{F.65})$$

$$\alpha_{A\gamma\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma\omega}) dA \quad (\text{F.66})$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.67})$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \varepsilon_{\omega} \mathbf{D}_{A\omega} \quad (\text{F.68})$$

$$\mathbf{d}_{A\omega\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega\omega} dA \quad (\text{F.69})$$

$$\mathbf{d}_{A\omega\gamma}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega\gamma} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.70})$$

$$\mathbf{u}_{A\omega\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA \quad (\text{F.71})$$

$$\mathbf{u}_{A\omega\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA \quad (\text{F.72})$$

$$\alpha_{A\omega\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega\omega}) dA \quad (\text{F.73})$$

$$\alpha_{A\omega\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega\gamma}) dA \quad (\text{F.74})$$

On a donc 4 problèmes de fermetures, permettant de calculer les 16 paramètres macroscopiques du modèle de transport associés, définis par 64 scalaires. A ce stade de l'analyse, il est légitime de se demander si le modèle développé n'est pas un petit peu trop complexe. Y aurait il une erreur quelque part ? Allons néanmoins jusqu'au bout de notre calcul.

Les problèmes de fermeture ci-dessus sont résolus à l'aide d'une méthode de décomposition des variables (Quintard et Whitaker, 1994). L'usage de cette méthode aboutit aux 8 problèmes suivants qui peuvent maintenant aisément être calculés :

*Problème de fermeture vectoriel I sous forme décomposée*

$$\mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ + \mathbf{C}_{A\gamma} \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^\circ \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.75})$$

$$\mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ + \mathbf{C}_{A\gamma} \mathbf{B}'_{A\omega\gamma}^\circ \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{F.76})$$

avec

$$\mathbf{C}_{A\gamma} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.77})$$

D'où

$$\mathbf{C}_{A\gamma} = - \frac{\langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle}{\langle \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle} = - \frac{\langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ \rangle}{\langle \mathbf{B}'_{A\omega\gamma}^\circ \rangle} \quad (\text{F.78})$$

Et donc, résoudre le problème de fermeture vectoriel I revient à résoudre les deux problèmes vectoriels Ia et Ib présentés ci dessous.

$$\mathbf{Ia} \quad (\text{phase } \gamma) \quad Pe_A (\tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ) = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ \quad (\text{F.79})$$

$$(\text{phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ}{(K_{eff,A}^{-1} + 1)^2} \quad (\text{F.80})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.81})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.82})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.83})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^\circ = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.84})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.85})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^{\circ}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}^{\circ}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.86})$$

$$\text{Ib (phase } \gamma) \quad \text{Pe}_A(\mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ}) = \nabla^2 \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ} - \varepsilon_{\gamma}^{-1} \mathbf{I} \mathbf{I} \quad (\text{F.87})$$

$$\text{(phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 \mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ}}{(K_{\text{eff},A}^{-1} + 1)^2} + \varepsilon_{\omega}^{-1} \mathbf{D}_{\Gamma}^{-1} \mathbf{I} \quad (\text{F.88})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.89})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.90})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{\Gamma} \nabla \mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.91})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ} = \mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.92})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ}(\mathbf{r}) = \mathbf{B}_{A\omega\gamma}^{\circ}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.93})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ}(\mathbf{r}) = \mathbf{B}_{A\gamma\gamma}^{\circ}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.94})$$

*Problème de fermeture vectoriel II sous forme décomposée*

$$\mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = \mathbf{b}^{\circ}_{A\gamma\omega} + \mathbf{C}_{A\omega} \mathbf{B}^{\circ}_{A\gamma\omega} \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} \rangle^{\gamma} = 0 \quad (\text{F.95})$$

$$\mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{b}^{\circ}_{A\omega\omega} + \mathbf{C}_{A\omega} \mathbf{B}^{\circ}_{A\omega\omega} \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle \mathbf{b}_{A\omega\omega} \rangle^{\omega} = 0 \quad (\text{F.96})$$

avec

$$\mathbf{C}_{A\omega} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{\Gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\kappa\omega} \cdot \mathbf{D}_{\Gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA \quad (\text{F.97})$$

D'où

$$\mathbf{C}_{A\omega} = - \frac{\langle \mathbf{b}^{\circ}_{A\gamma\omega} \rangle}{\langle \mathbf{B}^{\circ}_{A\gamma\omega} \rangle} = - \frac{\langle \mathbf{b}^{\circ}_{A\omega\omega} \rangle}{\langle \mathbf{B}^{\circ}_{A\omega\omega} \rangle} \quad (\text{F.98})$$

De même, résoudre le problème de fermeture vectoriel II revient à résoudre les deux problèmes vectoriels IIa et IIb présentés ci dessous.

$$\text{IIa} \quad (\text{phase } \gamma) \quad Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ) = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ \quad (\text{F.99})$$

$$(\text{phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ}{(K_{\text{eff},A}^{-1} + 1)^2} \quad (\text{F.100})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ = -\mathbf{n}_{\omega\kappa}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.101})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.102})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.103})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.104})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.105})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.106})$$

$$\text{IIb} \quad (\text{phase } \gamma) \quad Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ) = \nabla^2 \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ - \varepsilon_\gamma^{-1} \mathbf{I} \mathbf{I} \quad (\text{F.107})$$

$$(\text{phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 \mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ}{(K_{\text{eff},A}^{-1} + 1)^2} - \varepsilon_\omega^{-1} \mathbf{D}_\Gamma^{-1} \cdot \mathbf{I} \quad (\text{F.108})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.109})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.110})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.111})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ = \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.112})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r}) = \mathbf{B}_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.113})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r}) = \mathbf{B}_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.114})$$

*Problème de fermeture scalaire I sous forme décomposée*

$$r_{A\gamma\gamma} = r_{A\gamma\gamma}^\circ + T_{A\gamma} R_{A\gamma\gamma}^\circ \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle r_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.115})$$

$$s_{A\omega\gamma} = s_{A\omega\gamma}^\circ + T_{A\gamma} S_{A\omega\gamma}^\circ \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle s_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = -1 \quad (\text{F.116})$$

avec

$$T_{A\gamma} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma} dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \cdot \nabla s_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.117})$$

D'où

$$T_{A\gamma} = - \frac{\langle r_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle}{\langle R_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle} = - \frac{1 + \langle s_{A\omega\gamma}^\circ \rangle}{\langle S_{A\omega\gamma}^\circ \rangle} \quad (\text{F.118})$$

Et donc, résoudre le problème de fermeture scalaire I revient à résoudre les deux problèmes vectoriels IIIa et IIIb présentés ci dessous.

$$\mathbf{IIIa} \quad (\text{phase } \gamma) \quad Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma}^\circ) = \nabla^2 r_{A\gamma\gamma}^\circ \quad (\text{F.119})$$

$$(\text{phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 s_{A\omega\gamma}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{(s_{A\omega\gamma}^\circ + 1)}{(K_{eff,A}^{\prime -1} + 1)^2} \quad (\text{F.120})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega\gamma}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.121})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r_{A\gamma\gamma}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.122})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla s_{A\omega\gamma}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r_{A\gamma\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.123})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega\gamma}^\circ = r_{A\gamma\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.124})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega\gamma}^\circ(\mathbf{r}) = s_{A\omega\gamma}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.125})$$

$$\text{C.L.6 ((Périodicité)} \quad r_{A\gamma\gamma}^\circ(\mathbf{r}) = r_{A\gamma\gamma}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.126})$$

$$\mathbf{IIIb} \quad (\text{phase } \gamma) \quad Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla R_{A\gamma\gamma}^\circ) = \nabla^2 R_{A\gamma\gamma}^\circ - \varepsilon_\gamma^{-1} \quad (\text{F.127})$$

$$(\text{phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 s_{A\omega\gamma}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{s_{A\omega\gamma}^\circ}{(K_{eff,A}^{\prime -1} + 1)^2} - \varepsilon_\omega^{-1} \mathbf{D}_\Gamma^{-1} \cdot \mathbf{I} \quad (\text{F.128})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega\gamma}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.129})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla R_{A\gamma\gamma}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.130})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla S_{A\omega\gamma}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla R_{A\gamma\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega}$$

$$\text{C.L.4} \quad S_{A\omega\gamma}^\circ = R_{A\gamma\gamma}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.131})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad S_{A\omega\gamma}^\circ(\mathbf{r}) = S_{A\omega\gamma}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.132})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad R_{A\gamma\gamma}^\circ(\mathbf{r}) = R_{A\gamma\gamma}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.133})$$

*Problème de fermeture scalaire II sous forme décomposée*

$$r'_{A\gamma\omega} = r'_{A\gamma\omega}^\circ + T_{A\omega} R_{A\gamma\omega}^\circ \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle r'_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.134})$$

$$s_{A\omega\omega} = s_{A\omega\omega}^\circ + T_{A\omega} S_{A\omega\omega}^\circ \quad ; \quad \text{on rappelle que} \quad \langle s_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{F.135})$$

avec

$$T_{A\omega} = \frac{1}{V_{A\omega\gamma(t)}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega} dA = \frac{\mathbf{D}_\Gamma}{V_{A\omega\gamma(t)}} \int \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega\omega} dA \quad (\text{F.136})$$

D'où

$$T_{A\omega} = - \frac{\langle r'_{A\gamma\omega}^\circ \rangle}{\langle R_{A\gamma\omega}^\circ \rangle} = \frac{1 - \langle s_{A\omega\omega}^\circ \rangle}{\langle S_{A\omega\omega}^\circ \rangle} \quad (\text{F.137})$$

Et donc, résoudre le problème de fermeture scalaire II revient à résoudre les deux problèmes vectoriels IVa et IVb présentés ci dessous.

$$\text{IVa} \quad (\text{phase } \gamma) \quad Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega}^\circ) = \nabla^2 r'_{A\gamma\omega}^\circ \quad (\text{F.138})$$

$$(\text{phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 s_{A\omega\omega}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{(s_{A\omega\omega}^\circ - 1)}{(K_{eff,A}^{-1} + 1)^2} \quad (\text{F.139})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.140})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r'_{A\gamma\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.141})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla s_{A\omega\omega}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.142})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega\omega}^\circ = r'_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.143})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad S_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r}) = S_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.144})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r}) = r_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.145})$$

$$\text{IVb (phase } \gamma) \quad Pe_A(\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla R_{A\gamma\omega}^\circ) = \nabla^2 R_{A\gamma\omega}^\circ - \varepsilon_\gamma^{-1} \quad (\text{F.146})$$

$$\text{(phase } \omega) \quad 0 = \nabla^2 S_{A\omega\omega}^\circ - Da_A c_{B\omega}^* \frac{S_{A\omega\omega}^\circ}{(K_{eff,A}^{-1} + 1)^2} - \varepsilon_\omega^{-1} D_\Gamma^{-1} \quad (\text{F.147})$$

$$\text{B.C.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla S_{A\omega\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.148})$$

$$\text{B.C.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla R_{A\gamma\omega}^\circ = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.149})$$

$$\text{B.C.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla S_{A\omega\omega}^\circ = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla R_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.150})$$

$$\text{B.C.4} \quad S_{A\omega\omega}^\circ = R_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.151})$$

$$\text{B.C.5 (Périodicité)} \quad S_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r}) = S_{A\omega\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.152})$$

$$\text{B.C.6 (Périodicité)} \quad R_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r}) = R_{A\gamma\omega}^\circ(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.153})$$

Ou  $D_\Gamma$  est le terme courant du tenseur supposé sphérique  $\mathbf{D}_\Gamma$ . On se servira ultérieurement de ces formes décomposées des problèmes de fermetures pour les validations analytiques des codes de calculs associés aux modèles à deux équations (voir annexe G). Mais revenons au notre développement.

Ici, le doute s'installe définitivement : les formes très similaires des formes décomposées des problèmes de fermeture scalaires semble nous suggérées qu'il y a peut être une solution plus directe. De plus, les calculs numériques mettent en évidence que les coefficient d'échange de masse  $\alpha_{A\omega\omega}^*$ ,  $\alpha_{A\omega\gamma}^*$ ,  $\alpha_{A\gamma\omega}^*$  et  $\alpha_{A\gamma\gamma}^*$  sont toujours égaux au signe près et à un facteur  $K_{A,eq}$  près.

Il en va de même pour les termes non classiques  $\mathbf{d}_{A\gamma\gamma}^*$  et  $\mathbf{d}_{A\gamma\omega}^*$ , ainsi que pour les termes non classiques  $\mathbf{d}_{A\omega\gamma}^*$  et  $\mathbf{d}_{A\omega\omega}^*$ , tous fonctions des variables de fermetures scalaires ... Aïe aïe aïe.

Pour en avoir le cœur net, nous allons examiner de manière plus approfondie le calcul de ces variables de fermeture scalaires. Tout d'abord, on peut remarquer que les problèmes IIIa (équations (F.119) à (F.127)) et IVa (équations (F.138) à (F.145)) admettent tous deux une solution évidentes :  $s_{A\omega\gamma}^{\circ} = r_{A\gamma\gamma}^{\circ} = -1$  dans le premier cas et  $s_{A\omega\omega}^{\circ} = r_{A\gamma\omega}^{\circ} = 1$  dans le second. De plus, les problèmes IIIb (équations (F.127) à (F.133)) et IVb (équations (F.146) à (F.153)) sont exactement identiques. Un bref coup d'œil aux hypothèses de départ des décompositions de variables associées à ces 4 problèmes (équations (F.115) à (F.118) et (F.134) à (F.137)), nous montre que :

$$r_{A\gamma\gamma} = -r_{A\gamma\omega}^{\prime} \quad (\text{F.154})$$

et

$$s_{A\omega\gamma} = -s_{A\omega\omega} \quad (\text{F.155})$$

On voit donc que les deux problèmes de fermetures scalaires adimensionnés donnent des résultats égaux au signe près. Il n'est donc pas nécessaire de résoudre le deuxième problème scalaire lorsqu'on a déjà résolu le premier (et inversement). Si on se ramène aux variables de fermetures initialement utilisées dans les hypothèses de fermeture (équations (F.7) et (F.8)), on constate que :

$$r_{A\gamma\gamma} = -K_{A,eq} r_{A\gamma\omega} \quad (\text{F.156})$$

et

$$r_{A\omega\gamma} = -K_{Aeq} r_{A\omega\omega} \quad (\text{F.157})$$

Relations qui, introduites dans les définitions des coefficient d'échange  $\alpha_{A\omega\omega}^*$ ,  $\alpha_{A\omega\gamma}^*$ ,  $\alpha_{A\gamma\omega}^*$  et  $\alpha_{A\gamma\gamma}^*$  (équations (F.65), (F.66), (F.73) et (F.74)), ainsi que des termes non classiques  $\mathbf{d}_{A\gamma\omega}^*$  et  $\mathbf{d}_{A\omega\gamma}^*$ ,  $\mathbf{d}_{A\omega\omega}^*$  et  $\mathbf{d}_{A\gamma\gamma}^*$  (équations (F.61), (F.62), (F.69) et (F.70)) conduisent aux égalités suivantes :



$$\alpha_{A\gamma\gamma}^* = -K_{Aeq} \alpha_{A\gamma\omega}^* \quad (\text{F.158})$$

$$\alpha_{A\omega\gamma}^* = -K_{Aeq} \alpha_{A\omega\omega}^* \quad (\text{F.159})$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma\omega}^* = -\frac{\mathbf{d}_{A\gamma\gamma}^*}{K_{Aeq}} = \mathbf{d}_{A\gamma}^* \quad (\text{F.160})$$

et

$$\mathbf{d}_{A\omega\omega}^* = -\frac{\mathbf{d}_{A\omega\gamma}^*}{K_{Aeq}} = \mathbf{d}_{A\omega}^* \quad (\text{F.161})$$

Enfin, l'examen de la condition aux limites 3 du problème scalaire II (équation (F.43)) nous permet d'écrire la suite d'égalités suivantes :

$$\begin{aligned} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla S_{A\omega\omega} &= \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \\ \Leftrightarrow \\ \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla r_{A\omega\omega} &= \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot K_{Aeq} \nabla r_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \\ \Leftrightarrow \\ \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla r_{A\omega\omega} &= \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla r_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \end{aligned} \quad (\text{F.162})$$

D'où il découle que (si on considère les définitions des coefficients d'échanges (F.66) et (F.73)) :

$$\alpha_{A\gamma\omega}^* = -\alpha_{A\omega\omega}^* = \alpha_A^* \quad (\text{F.163})$$

On peut effectuer une dernière simplification en considérant les conditions aux limites (F.13) et (F.23). En effet, on a

$$\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA \quad (\text{F.164})$$

et

$$\mathbf{u}_{A\omega\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA \quad (\text{F.165})$$

Or on peut écrire la condition aux limites (F.13) sous la forme :

$$\mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\gamma} - \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathcal{D}_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.166})$$

D'où

$$\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA - \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{n}_{\gamma\omega} dA - \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} dA \quad (\text{F.167})$$

C'est-à-dire

$$\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \quad (\text{F.168})$$

Hors de l'équation (F.11) on peut tirer

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA = 0 \quad (\text{F.169})$$

Il vient donc

$$\mathbf{u}_{A\gamma\gamma}^* = -\mathbf{u}_{A\omega\gamma}^* - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma = \mathbf{u}_{A\gamma}^* \quad (\text{F.170})$$

De même pour

$$\mathbf{u}_{A\gamma\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA \quad (\text{F.171})$$

Et

$$\mathbf{u}_{A\omega\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA \quad (\text{F.172})$$

On voit qu'on peut écrire la condition aux limites (F.23) sous la forme :

$$\mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\omega} - \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.173})$$

D'où

$$\mathbf{u}_{A\omega\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} dA - \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} dA \quad (\text{F.174})$$

C'est-à-dire

$$\mathbf{u}_{A\omega\omega}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \nabla \varepsilon_\omega \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \quad (\text{F.175})$$

De plus de l'équation (F.22) on peut tirer que

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA = 0 \quad (\text{F.176})$$

Il vient donc

$$\mathbf{u}_{A\omega\omega}^* = -\mathbf{u}_{A\gamma\omega}^* - \nabla \varepsilon_{\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} = \mathbf{u}_{A\omega}^* \quad (\text{F.177})$$

Bilan : si on pose

$$r_{A\gamma} = r_{A\gamma\omega} \quad (\text{F.178})$$

et

$$r_{A\omega} = r_{A\omega\omega} \quad (\text{F.179})$$

Les hypothèses de fermetures (équations (F.7) et (F.8)) prennent alors la forme

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + r_{A\gamma} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \right) \quad (\text{F.180})$$

$$\tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{b}_{A\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} + \mathbf{b}_{A\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} + r_{A\omega} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega} - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma} \right) \quad (\text{F.181})$$

On a plus que trois problèmes de fermeture qui s'écrivent

*Problème de fermeture vectorielle I :*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A \left( \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} + \mathbf{v}_{\gamma} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} \right) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_{\gamma}} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} dA - \frac{1}{V_{\gamma}} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} dA \quad (\text{F.182})$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}'_{A\omega\gamma}}{\left( K_{eff,A}^{-1} + 1 \right)^2} = -\frac{1}{V_{\omega}} \int_{A_{\omega\gamma(t)}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.183})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{F.184})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{F.185})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_{\Gamma} \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.186})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.187})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.188})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.189})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.190})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{F.191})$$

*Problème de fermeture vectorielle II :*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A(\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (\text{F.192})$$

*Phase  $\omega$*

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{\mathbf{b}'_{A\omega\omega}}{(K'_{eff,A}{}^{-1} + 1)^2} = \\ - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega} dA - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\kappa\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega} dA \end{aligned} \quad (\text{F.193})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.194})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.195})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{D}_\Gamma + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.196})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.197})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.198})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.199})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.200})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{F.201})$$

*Problème de fermeture scalaire*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r'_{A\gamma}) = \nabla^2 r'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma} dA \quad (\text{F.202})$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 s_{A\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \frac{(s_{A\omega} - 1)}{(K_{eff,A}^{-1} + 1)^2} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} dA \quad (\text{F.203})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla s_{A\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{F.204})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla r'_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{F.205})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla s_{A\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.206})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{F.207})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{F.208})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{F.209})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{F.210})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{F.211})$$

Avec

$$\mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}}{l_\gamma} \quad (\text{F.212})$$

$$\mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\gamma}}{l_\gamma K_{A,eq}} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = \frac{K_{A,eq} \mathbf{b}_{A\gamma\omega}}{l_\gamma} \quad (\text{F.213})$$

$$s_{A\omega} = 1 + r_{A\omega} \quad ; \quad r'_{A\gamma} = K_{A,eq} r_{A\gamma} \quad (\text{F.214})$$

$$K'_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega} \quad ; \quad \mathbf{D}_\Gamma = \frac{K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\omega}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (\text{F.215})$$

$$Da_A = \frac{\mu_{A\omega} \rho_\omega l_\omega^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (\text{F.216})$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (\text{F.217})$$

$$Pe = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| \ell_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (\text{F.218})$$

Où on utilise la notation :

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{F.219})$$

Et les formes fermées des équations de transport macroscopiques peuvent se réécrire sous la forme :

*Équation de transport macroscopique fermé pour la phase biofilm  $\omega$  :*

$$\begin{aligned} \varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega c_{B\omega}^* \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\ &- \alpha_A^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \\ &+ \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\omega}^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) - (\mathbf{u}_{A\gamma}^* + \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{u}_\omega^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \end{aligned} \quad (\text{F.220})$$

*Équation de transport macroscopique fermé pour la phase fluide  $\gamma$  :*

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) &= \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega) \\ &+ \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma - (\mathbf{u}_{A\omega}^* + \nabla \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega}) \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \\ &+ \alpha_A^* (\langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (\text{F.221})$$

Avec

$$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle + \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} \quad (\text{F.222})$$

$$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle \quad (\text{F.223})$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} r_{A\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} r_{A\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma r_{A\gamma\omega} \rangle \quad (\text{F.224})$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\gamma}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA \right) - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \end{aligned} \quad (\text{F.225})$$

$$\begin{aligned} \alpha_A^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(r_{A\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(r_{A\omega}) dA \right) \end{aligned} \quad (\text{F.226})$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{F.227})$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \quad (\text{F.228})$$

$$\mathbf{d}_{A\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA \quad (\text{F.229})$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\omega}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla(\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla(\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA \right) - \nabla \varepsilon_\omega \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \end{aligned} \quad (\text{F.230})$$

Il ne reste plus maintenant que trois problèmes de fermetures au lieu de 4, et 9 paramètres macroscopiques au lieu de 16. C'est tout de suite beaucoup mieux. Une choix judicieux des bonnes hypothèses de fermeture, (F.180) et (F.181), dès le début, comme Cherblanc (1999) et Ahmadi *et al.* (1998), aurait permis de considérablement raccourcir cette annexe. L'auteur

tient à remercier le lecteur pour sa patience, et l'assure qu'il a bien compris qu'il était dans l'intérêt de tous de poser les bonnes hypothèses au début d'un calcul plutôt que de les retrouver à la fin.



# Annexe G : Validations analytiques et numériques des codes de résolution des problèmes de fermeture associées au modèle TEM

## G.1 Configuration considérée

On voit sur la figure ci dessous la cellule unitaire considérée pour mener à bien le travail de validation des codes de calculs. Pour les validations analytiques, on considère qu'il n'y a pas d'écoulement dans la phase fluide. Pour les validations numériques, on considère un écoulement type poiseuille suivant l'axe des x croissant (le cas avec écoulement aurait aussi pu être résolu de manière analytique mais au prix de calculs un peu plus longs). Dans les deux cas on prend  $\mathbf{D}_T = 1$  et on considère une cinétique linéaire d'ordre 1 pour la réaction afin de s'affranchir de la non-linéarité du problème. Enfin, on considère par souci de simplification que  $\nabla \varepsilon_\gamma = \nabla \varepsilon_\omega = 0$ , ce qui permet de simplifier l'écriture des termes intégraux.

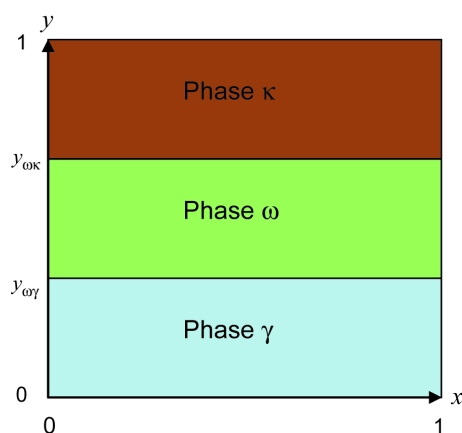


Figure 1G : Configuration considérée pour les validations analytiques et numériques.

## G.2 Validation analytique

On va ici comparer les solutions analytiques des différents problèmes de fermeture avec les solutions obtenus grâce aux codes de calculs développés.

### G.2.1 Premier problème de fermeture vectoriel

Dans la configuration considérée, on peut exprimer le premier problème de fermeture vectoriel de la manière suivante (*cf.* équations (174) à (183)) :

*Phase  $\gamma$*

$$0 = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} + \mathbf{I}) dA \quad (\text{G.1})$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{G.2})$$

$$\text{C.L..1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{G.3})$$

$$\text{C.L..2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{G.4})$$

$$\text{C.L..3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.5})$$

$$\text{C.L..4} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.6})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{G.7})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{G.8})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.9})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.10})$$

Pour la géométrie stratifiée considérée, la composante x du vecteur de fermeture à une valeur évidente nulle. De plus, l'invariance de la configuration le long de l'axe des x implique que la seconde composante du vecteur de fermeture ne dépend que de la variable y. Le problème gouvernant la composante y du vecteur de fermeture s'écrit alors :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 b_{A\gamma\gamma,y}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} c_{\gamma,y} \quad (\text{G.11})$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 b'_{A\omega\gamma,y}}{dy^2} = Da_A b'_{A\omega\gamma,y} + \varepsilon_\omega^{-1} c_{\omega\gamma,y} \quad (\text{G.12})$$

$$\text{C.L.1} \quad \frac{db'_{A\omega\gamma,y}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega x} \quad (\text{G.13})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{db_{A\gamma\gamma,y}}{dy} = -1, \quad \text{en } y = 0 \quad (\text{G.14})$$

$$\text{C.L.3} \quad 1 + \frac{db_{A\gamma\gamma,y}}{dy} = \frac{db'_{A\omega\gamma,y}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.15})$$

$$\text{C.L.4} \quad b_{A\gamma\gamma,y} = b'_{A\omega\gamma,y}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.16})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma,y} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.17})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma,y} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.18})$$

avec

$$c_{\gamma,y} = \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \left( \frac{db_{A\gamma\gamma,y}}{dy} + 1 \right) dA \quad (\text{G.19})$$

$$c_{\omega\gamma,y} = -\frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db_{A\omega\gamma,y}}{dy} dA \quad (\text{G.20})$$

où

$$c_{\omega\gamma,y} = -c_{\gamma\gamma,y} \quad (\text{G.21})$$

On utilise maintenant la méthode de décomposition des variables (Quintard et Whitaker, 1994) pour transformer ce problème intégral-différentiel en deux problèmes différentiels. Si on suppose que

$$b_{A\gamma\gamma,y} = b_{A\gamma\gamma,y}^\circ + c_{\gamma\gamma,y} B_{A\gamma\gamma}^\circ \quad (\text{G.22})$$

$$b'_{A\omega\gamma,y} = b_{A\omega\gamma,y}^\circ + c_{\gamma\gamma,y} B_{A\omega\gamma}^\circ \quad (\text{G.23})$$

ceci implique

$$c_{\gamma\gamma,y} = -\frac{\langle b_{A\gamma\gamma,y}^\circ \rangle^\gamma}{\langle B_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle^\gamma} \quad (\text{G.24})$$

$$c_{\gamma\gamma,y} = -\frac{\langle b_{A\omega\gamma,y}^\circ \rangle^\omega}{\langle B_{A\omega\gamma}^\circ \rangle^\omega} \quad (\text{G.25})$$

et conduit aux deux problèmes différentiels suivants

**Ia**

$$\text{Phase } \gamma \quad \frac{d^2 b_{A\gamma\gamma,y}^\circ}{dy^2} = 0 \quad (\text{G.26})$$

$$\text{Phase } \omega \quad \frac{d^2 b_{A\omega\gamma,y}^\circ}{dy^2} = Da_A b_{A\omega\gamma,y}^\circ \quad (\text{G.27})$$

$$\text{C.L.1} \quad b_{A\gamma\gamma,y}^\circ = b_{A\omega\gamma,y}^\circ, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.28})$$

$$\text{C.L.2} \quad 1 + \frac{db_{A\gamma\gamma,y}^\circ}{dy} = \frac{db_{A\omega\gamma,y}^\circ}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.29})$$

$$\text{C.L.3} \quad -1 = \frac{db_{A\gamma\gamma,y}^\circ}{dy}, \quad \text{en } y = 0 \quad (\text{G.30})$$

$$\text{C.L.4} \quad \frac{db_{A\omega\gamma,y}^{\circ}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.31})$$

**Ib**

$$\text{Phase } \gamma \quad \frac{d^2 B_{A\gamma\gamma}^{\circ}}{dy^2} = \varepsilon_{\gamma}^{-1} \quad (\text{G.32})$$

$$\text{Phase } \omega \quad \frac{d^2 B_{A\omega\gamma}^{\circ}}{dy^2} = Da_A B_{A\omega\gamma}^{\circ} - \varepsilon_{\omega}^{-1} \quad (\text{G.33})$$

$$\text{C.L.1} \quad B_{A\gamma\gamma}^{\circ} = B_{A\omega\gamma}^{\circ}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.34})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{dB_{A\gamma\gamma}^{\circ}}{dy} = \frac{dB_{A\omega\gamma}^{\circ}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.35})$$

$$\text{C.L.3} \quad \frac{dB_{A\omega\gamma}^{\circ}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.36})$$

$$\text{C.L.4} \quad \frac{dB_{A\gamma\gamma}^{\circ}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0 \quad (\text{G.37})$$

Ces deux problèmes peuvent être résolus analytiquement, et une fois leurs solutions recombinaées selon (G.22) et (G.23), on obtient la solution analytique du premier problème de fermeture vectoriel, qui peut être comparée avec celle obtenue par le calcul numérique.

#### G.2.1.1 Résolution analytique du problème Ia

On suppose que

$$b_{A\gamma\gamma,y}^{\circ} = Ay + B \quad (\text{G.38})$$

$$b_{A\omega\gamma,y}^{\circ} = Ce^{y\sqrt{Da_A}} + De^{-y\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.39})$$

La condition aux limite (G.30) conduit à

$$A = -1 \quad (\text{G.40})$$

Puis la condition aux limites (G.31) donne

$$D = Ce^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.41})$$

avec la condition aux limites (G.29) on a

$$1-1 = \frac{C}{\sqrt{Da_A}} \left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right) \quad (\text{G.42})$$

C'est à dire

$$C = 0 \quad (\text{G.43})$$

Et enfin la condition aux limite (G.28) donne

$$B = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.44})$$

On a donc

$$b_{A\gamma\gamma,y}^{\circ} = -y + y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.45})$$

$$b_{A\omega\gamma,y}^{\circ} = 0 \quad (\text{G.46})$$

### G.2.1.2 Résolution du problème Ib

On suppose que

$$B_{A\gamma\gamma}^{\circ} = \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1}}{2} y^2 + Ay + B \quad (\text{G.47})$$

$$B_{A\omega\gamma}^{\circ} = Ce^{y\sqrt{Da_A}} + De^{-y\sqrt{Da_A}} + \frac{\varepsilon_{\omega}^{-1}}{Da_A} \quad (\text{G.48})$$

Avec la condition aux limites (G.37) on a

$$A = 0 \quad (\text{G.49})$$

Puis la condition aux limites (G.36) conduit à

$$D = Ce^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.50})$$

La condition aux limites (G.35) donne

$$C = \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{1}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} \quad (\text{G.51})$$

Donc la condition aux limites (G.34) peut s'exprimer

$$\frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{2} y_{\omega\gamma}^2 + B = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_\omega^{-1}}{Da_A} \quad (G.52)$$

Ce qui conduit à

$$B = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_\omega^{-1}}{Da_A} - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{2} y_{\omega\gamma}^2 \quad (G.53)$$

Et donc

$$B_{A\gamma\gamma}^\circ = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{2} y^2 + \frac{\varepsilon_\gamma^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_\omega^{-1}}{Da_A} - \frac{\varepsilon_\gamma^{-1}}{2} y_{\omega\gamma}^2 \quad (G.54)$$

$$B_{A\omega\gamma}^\circ = \frac{\varepsilon_\gamma^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_\omega^{-1}}{Da_A} \quad (G.55)$$

### G.2.1.3. Comparaison des solutions analytiques et numériques

On peut donc maintenant calculer les expressions analytiques de  $b_{A\gamma\gamma,y}$  et  $b'_{A\omega\gamma,y}$  par les expressions (G.22) et (G.23).

$$b_{A\gamma\gamma,y} = b_{A\gamma\gamma,y}^\circ - \frac{\langle b_{A\gamma\gamma,y}^\circ \rangle^\gamma}{\langle B_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle^\gamma} B_{A\gamma\gamma}^\circ \quad (G.56)$$

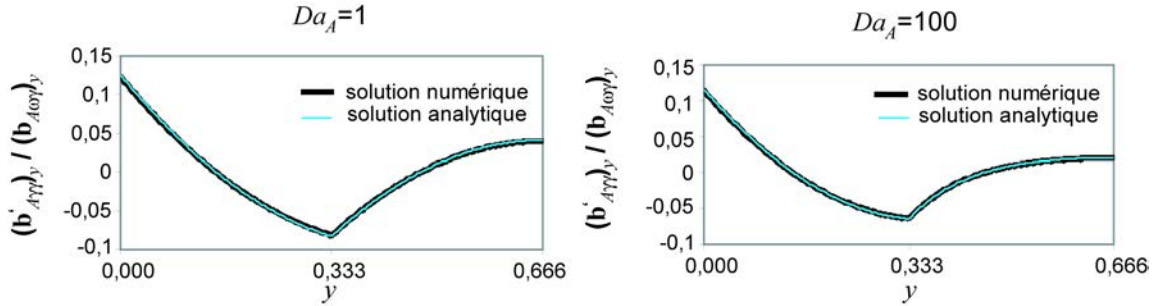
$$b'_{A\omega\gamma,y} = b_{A\omega\gamma,y}^\circ - \frac{\langle b_{A\omega\gamma,y}^\circ \rangle^\gamma}{\langle B_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle^\gamma} B_{A\omega\gamma}^\circ \quad (G.57)$$

Apparemment on a  $0 \neq -\frac{\langle b_{A\gamma\gamma,y}^\circ \rangle^\gamma}{\langle B_{A\gamma\gamma}^\circ \rangle^\gamma} = -\frac{\langle b_{A\omega\gamma,y}^\circ \rangle^\omega}{\langle B_{A\omega\gamma}^\circ \rangle^\omega} = 0$ , puisque  $b_{A\gamma\gamma,y}^\circ \neq 0$  tandis que

$b_{A\omega\gamma,y}^\circ = 0$ , ce qui ressemble à une contradiction. Ce n'est pas le cas car on a en fait

$\langle B_{A\omega\gamma}^\circ \rangle^\omega = 0$ , le quotient  $\frac{\langle b_{A\omega\gamma,y}^\circ \rangle^\omega}{\langle B_{A\omega\gamma}^\circ \rangle^\omega}$  est donc un quotient indéterminé non nécessairement nul.

On peut voir sur la figure suivante les comparaisons des champs  $b_{A\gamma\gamma,y}$  et  $b_{A\omega\gamma,y}^\circ$  calculés analytiquement et numériquement pour  $Da_A = 1$  et  $Da_A = 100$



**Figure 2G : Comparaison entre solutions analytiques et numériques du premier problème de fermeture associé au modèle TEM pour une configuration stratifiée**

On observe un très bon accord entre les solutions numériques et théoriques.

### G.2.2 Second problème de fermeture vectoriel

Dans la configuration considérée, on peut exprimer le second problème de fermeture vectoriel de la manière suivante (voir équations (184) à (193)) :

*Phase  $\gamma$*

$$0 = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (\text{G.58})$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 \mathbf{b}_{A\omega\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \mathbf{b}_{A\omega\omega} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} + \mathbf{I}) dA \quad (\text{G.59})$$



$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{G.60})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{G.61})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.62})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.63})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{G.64})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{G.65})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.66})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.67})$$

Pour la géométrie stratifié considérée, la composante x du vecteur de fermeture à une valeur évidente nulle. De plus, l'invariance de la configuration le long de l'axe des x implique que la seconde composante du vecteur de fermeture ne dépend que de la variable y. Le problème gouvernant la composante y du vecteur de fermeture s'écrit alors :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 b'_{A\gamma\omega,y}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} c_{\gamma\omega,y} \quad (\text{G.68})$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 b_{A\omega\omega,y}}{dy^2} = Da_A b_{A\omega\omega,y} + \varepsilon_\omega^{-1} c_{\omega\omega,y} \quad (\text{G.69})$$

$$\text{C.L.1} \quad -1 = \frac{db_{A\omega\omega,y}}{dy}, \quad \text{sur } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.70})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{db'_{A\gamma\omega,y}}{dy} = 0, \quad \text{sur } y = 0, \quad (\text{G.71})$$

$$\text{C.L.3} \quad 1 + \frac{db_{A\omega\omega,y}}{dy} = \frac{db'_{A\gamma\omega,y}}{dy}, \quad \text{sur } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.72})$$

$$\text{C.L.4} \quad b_{A\omega\omega,y} = b'_{A\gamma\omega,y}, \quad \text{sur } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.73})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle b'_{A\gamma\omega,y} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.74})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle b_{A\omega\omega,y} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.75})$$

Avec

$$c_{\gamma\omega,y} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db'_{A\gamma\omega,y}}{dy} dA \quad (\text{G.76})$$

$$c_{\omega\omega,y} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \left( \frac{db_{A\omega\omega,y}}{dy} + 1 \right) dA \quad (\text{G.77})$$

D'où

$$c_{\omega\omega,y} = -c_{\gamma\omega,y} \quad (\text{G.78})$$

On utilise maintenant la méthode de décomposition des variables (Quintard et Whitaker (1994)) pour transformer ce problème intégro-différentiel en deux problèmes différentiels. Si on suppose que

$$b'_{A\gamma\omega,y} = b^{\circ}_{A\gamma\omega,y} + c_{\gamma\omega,y} B^{\circ}_{A\gamma\omega} \quad (\text{G.79})$$

$$b_{A\omega\omega,y} = b^{\circ}_{A\omega\omega,y} + c_{\gamma\omega,y} B^{\circ}_{A\omega\omega} \quad (\text{G.80})$$

cela implique

$$c_{\gamma\omega,y} = -\frac{\langle b^{\circ}_{A\gamma\omega,y} \rangle^\gamma}{\langle B^{\circ}_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma} \quad (\text{G.81})$$

$$c_{\gamma\omega,y} = -\frac{\langle b^{\circ}_{A\omega\omega,y} \rangle^\omega}{\langle B^{\circ}_{A\omega\omega} \rangle^\omega} \quad (\text{G.82})$$

et conduit aux deux problèmes différentiels suivants

## IIa

$$\text{Phase } \gamma \quad \frac{d^2 b_{A\gamma\omega,y}^\circ}{dy^2} = 0 \quad (\text{G.83})$$

$$\text{Phase } \omega \quad \frac{d^2 b_{A\omega\omega,y}^\circ}{dy^2} = Da_A b_{A\omega\omega,y}^\circ \quad (\text{G.84})$$

$$\text{C.L.1} \quad \frac{db_{A\gamma\omega,y}^\circ}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0, \quad (\text{G.85})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{db_{A\omega\omega,y}^\circ}{dy} = -1, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.86})$$

$$\text{C.L.3} \quad 1 + \frac{db_{A\omega\omega,y}^\circ}{dy} = \frac{db_{A\gamma\omega,y}^\circ}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.87})$$

$$\text{C.L.4} \quad b_{A\omega\omega,y}^\circ = b_{A\gamma\omega,y}^\circ, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.88})$$

## IIb

$$\text{Phase } \gamma \quad \frac{d^2 B_{A\gamma\omega}^\circ}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} \quad (\text{G.89})$$

$$\text{Phase } \omega \quad \frac{d^2 B_{A\omega\omega}^\circ}{dy^2} = Da_A B_{A\omega\omega}^\circ - \varepsilon_\omega^{-1} \quad (\text{G.90})$$

$$\text{C.L.1} \quad \frac{dB_{A\omega\omega}^\circ}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.91})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{dB_{A\gamma\omega}^\circ}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0, \quad (\text{G.92})$$

$$\text{C.L.3} \quad \frac{dB_{A\omega\omega}^\circ}{dy} = \frac{dB_{A\gamma\omega}^\circ}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.93})$$

$$\text{C.L.4} \quad B_{A\omega\omega}^\circ = B_{A\gamma\omega}^\circ, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.94})$$

On constate que le problème IIb est exactement analogue au problème Ib. On ne présente donc ici que la résolution du problème IIa.

### G.2.2.1 Résolution du problème IIa

On suppose que

$$b_{A\gamma\omega,y}^{\circ} = Ay + B \quad (\text{G.95})$$

$$b_{A\omega\omega,y}^{\circ} = Ce^{y\sqrt{Da_A}} + De^{-y\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.96})$$

La condition aux limites (G.85) conduit à

$$A = 0 \quad (\text{G.97})$$

Puis la condition aux limites (G.86) donne

$$\sqrt{Da_A} \left( Ce^{y\omega\kappa\sqrt{Da_A}} - De^{-y\omega\kappa\sqrt{Da_A}} \right) = -1 \quad (\text{G.98})$$

ce qui conduit à

$$D = \frac{1}{e^{-y\omega\kappa\sqrt{Da_A}}} \left( \frac{1}{\sqrt{Da_A}} + Ce^{y\omega\kappa\sqrt{Da_A}} \right) \quad (\text{G.99})$$

Et donc

$$D = \frac{e^{y\omega\kappa\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} + Ce^{2y\omega\kappa\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.100})$$

avec la condition aux limites (G.87) on a

$$1 + \sqrt{Da_A} \left( Ce^{y\omega\gamma\sqrt{Da_A}} - \left( \frac{e^{y\omega\kappa\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} + Ce^{2y\omega\kappa\sqrt{Da_A}} \right) e^{-y\omega\gamma\sqrt{Da_A}} \right) = 0 \quad (\text{G.101})$$

ce qui implique

$$1 + \sqrt{Da_A} \left( C \left( e^{y\omega\gamma\sqrt{Da_A}} - e^{(2y\omega\kappa - y\omega\gamma)\sqrt{Da_A}} \right) - \frac{e^{(y\omega\kappa - y\omega\gamma)\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} \right) = 0 \quad (\text{G.102})$$

D'où

$$C = \left( \frac{-1}{\sqrt{Da_A}} + \frac{e^{(y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} \right) \frac{1}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)} \quad (\text{G.103})$$

Et enfin la condition aux limites (G.88) donne

$$B = \frac{\left( e^{(y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} + 1 \right)}{\sqrt{Da_A} \left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)} e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \\ + \left( \frac{\left( e^{(y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} + 1 \right) e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A} \left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{e^{y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} \right) e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.104})$$

On a donc

$$b_{A\gamma\omega, y}^{\circ} = \frac{e^{(y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} + \frac{\left( e^{y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} - e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{(3y_{\omega\kappa} - 2y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)}{\sqrt{Da_A} \left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)} \quad (\text{G.105})$$

$$b_{A\omega\omega, y}^{\circ} = \frac{\left( e^{(y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} + 1 \right)}{\sqrt{Da_A} \left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)} e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \\ + \left( \frac{\left( e^{(y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} + 1 \right) e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A} \left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{(2y_{\omega\kappa} - y_{\omega\gamma})\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{e^{y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}}}{\sqrt{Da_A}} \right) e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \quad (\text{G.106})$$

En considérant l'analogie entre les problèmes IIb et Ib, il vient immédiatement :

$$B_{A\gamma\omega}^{\circ} = \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1}}{2} y^2 + \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_{\omega}^{-1}}{Da_A} - \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1}}{2} y_{\omega\gamma}^2 \quad (\text{G.107})$$

$$B_{A\omega\omega}^{\circ} = \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_{\omega}^{-1}}{Da_A} \quad (\text{G.108})$$

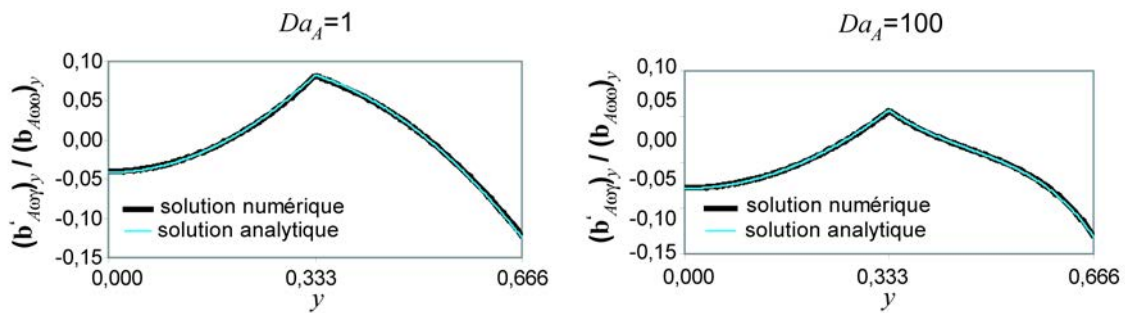
### G.2.2.2. Comparaison des solutions analytiques et numériques

On peut donc maintenant calculer les expressions analytiques de  $b'_{A\gamma\omega,y}$  et  $b_{A\omega\omega,y}$  par les expressions (G.79) et (G.80).

$$b'_{A\gamma\omega,y} = b^{\circ}_{A\gamma\omega,y} - \frac{\langle b^{\circ}_{A\gamma\omega,y} \rangle^{\gamma}}{\langle B^{\circ}_{A\gamma\omega} \rangle^{\gamma}} B^{\circ}_{A\gamma\omega} \quad (G.109)$$

$$b_{A\omega\omega,y} = b^{\circ}_{A\omega\omega,y} - \frac{\langle b^{\circ}_{A\gamma\omega,y} \rangle^{\gamma}}{\langle B^{\circ}_{A\gamma\omega} \rangle^{\gamma}} B^{\circ}_{A\omega\omega} \quad (G.110)$$

On peut voir sur la figure suivante les comparaisons des champs  $b'_{A\gamma\omega,y}$  et  $b_{A\omega\omega,y}$  calculer analytiquement et numériquement pour  $Da_A = 1$  et  $Da_A = 100$



**Figure 3G : Comparaison entre solutions analytiques et numériques du second problème de fermeture vectoriel associé au modèle TEM pour une configuration stratifiée**

On peut voir qu'on a un très bon accord entre les solutions numériques et théoriques.

### G.2.3 Problème de fermeture scalaire

Dans la configuration considérée, on peut exprimer le problème de fermeture scalaire de la manière suivante (voir équations (194) à (203)) :

*Phase  $\gamma$*

$$0 = \nabla^2 r'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma} dA \quad (\text{G.111})$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 s_{A\omega} - Da_A (s_{A\omega} - 1) = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} dA \quad (\text{G.112})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{G.113})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r'_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{G.114})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.115})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{at } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.116})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{at } A_{\omega e} \quad (\text{G.117})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{at } A_{\gamma e} \quad (\text{G.118})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.119})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{G.120})$$

Pour la géométrie stratifiée considérée, le champ de fermeture ne dépend que de la variable  $y$ .

Le problème gouvernant le champ de fermeture s'écrit alors :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 r_{A\gamma\omega}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} t_{\gamma\omega} \quad (\text{G.121})$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 s_{A\omega\omega}}{dy^2} = Da_A (s_{A\omega} - 1) + \varepsilon_\omega^{-1} t_{\omega\omega} \quad (\text{G.122})$$

$$\text{C.L.1} \quad \frac{ds_{A\omega}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.123})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{dr'_{A\gamma}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0, \quad (\text{G.124})$$

$$\text{C.L.3} \quad \frac{ds_{A\omega}}{dy} = \frac{dr'_{A\gamma}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.125})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.126})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.127})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{G.128})$$

avec

$$t_{\gamma\omega} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{dr'_{A\gamma}}{dy} dA \quad (\text{G.129})$$

$$t_{\omega\omega} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{ds_{A\omega}}{dy} dA \quad (\text{G.130})$$

D'où

$$t_{\gamma\omega} = -t_{\omega\omega} \quad (\text{G.131})$$

On utilise maintenant la méthode de décomposition des variables (Quintard et Whitaker (1994)) pour transformer ce problème intégro-différentiel en deux problèmes différentiels. Si on suppose que

$$r'_{A\gamma} = r'_{A\gamma}{}^\circ + t_{\gamma\omega} R'_{A\gamma}{}^\circ \quad (\text{G.132})$$

$$s_{A\omega} = s_{A\omega}{}^\circ + t_{\gamma\omega} S_{A\omega}{}^\circ \quad (\text{G.133})$$

Cela implique



$$t_{\gamma\omega} = -\frac{\langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\langle R'_{A\gamma} \rangle^\gamma} \quad (\text{G.134})$$

$$t_{\gamma\omega} = \frac{1 - \langle s'_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle S'_{A\omega} \rangle^\omega} \quad (\text{G.135})$$

Et conduit au deux problèmes différentiels suivants

### IIIa

*Phase  $\gamma$*  
$$\frac{d^2 r'_{A\gamma}}{dy^2} = 0 \quad (\text{G.136})$$

*Phase  $\omega$*  
$$\frac{d^2 s'_{A\omega}}{dy^2} = Da_A (s'_{A\omega} - 1) \quad (\text{G.137})$$

C.L.1 
$$\frac{ds'_{A\omega}}{dy} = 0, \text{ en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.138})$$

C.L.2 
$$\frac{dr'_{A\gamma}}{dy} = 0, \text{ en } y = 0, \quad (\text{G.139})$$

C.L.3 
$$\frac{ds'_{A\omega}}{dy} = \frac{dr'_{A\gamma}}{dy}, \text{ en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.140})$$

C.L.4 
$$s'_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \text{ en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.141})$$

### IIIb

*Phase  $\gamma$*  
$$\frac{d^2 R'_{A\gamma}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} \quad (\text{G.142})$$

*Phase  $\omega$*  
$$\frac{d^2 S'_{A\omega}}{dy^2} = Da_A S'_{A\omega} - \varepsilon_\omega^{-1} \quad (\text{G.143})$$

C.L.1 
$$\frac{dS'_{A\omega}}{dy} = 0, \text{ en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.144})$$

C.L.2 
$$\frac{dR'_{A\gamma}}{dy} = 0, \text{ en } y = 0, \quad (\text{G.145})$$

$$\text{C.L.3} \quad \frac{dS_{A\omega}^{\circ}}{dy} = \frac{dR_{A\gamma}^{\prime \circ}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.146})$$

$$\text{C.L.4} \quad S_{A\omega}^{\circ} = R_{A\gamma}^{\prime \circ}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.147})$$

### G.2.3.1 Résolutions des problèmes IIIa et IIIb

On constate que le problème IIIa admet une solution évidente égale à 1.

$$r_{A\gamma}^{\prime \circ} = 1 \quad (\text{G.148})$$

$$s_{A\omega}^{\circ} = 1 \quad (\text{G.149})$$

De plus, on peut voir que le problème IIIb est exactement analogue au problème Ib. On a donc immédiatement

$$R_{A\gamma}^{\prime \circ} = \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1}}{2} y^2 + \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_{\omega}^{-1}}{Da_A} - \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1}}{2} y_{\omega\gamma}^2 \quad (\text{G.150})$$

$$S_{A\omega}^{\circ} = \frac{\varepsilon_{\gamma}^{-1} y_{\omega\gamma}}{\sqrt{Da_A}} \frac{e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} + e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}}}{\left( e^{y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} - e^{2y_{\omega\kappa}\sqrt{Da_A}} e^{-y_{\omega\gamma}\sqrt{Da_A}} \right)} + \frac{\varepsilon_{\omega}^{-1}}{Da_A} \quad (\text{G.151})$$

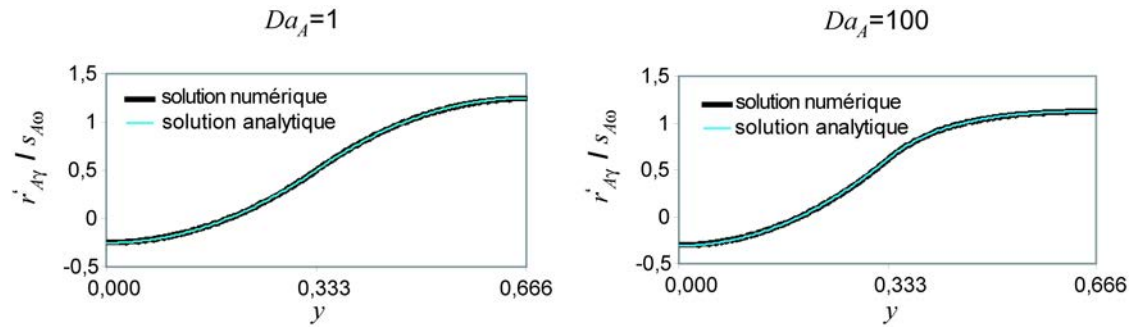
### G.2.3.2 Comparaison des solutions analytiques et numériques

Nous pouvons donc maintenant calculer les expressions analytiques de  $r_{A\gamma}^{\prime}$  et  $s_{A\omega}$  par les expressions (G.132) et (G.133).

$$r_{A\gamma}^{\prime} = 1 - \frac{R_{A\gamma}^{\prime \circ}}{\langle R_{A\gamma}^{\prime \circ} \rangle^{\gamma}} \quad (\text{G.152})$$

$$s_{A\omega} = 1 - \frac{S_{A\omega}^\circ}{\langle S_{A\omega}^\circ \rangle^\gamma} \quad (\text{G.153})$$

Sur la figure suivante, les comparaisons des champs  $r'_{Ay}$  et  $s_{A\omega}$  calculés analytiquement et numériquement pour  $Da_A = 1$  et  $Da_A = 100$  sont représentées.



**Figure 4G : Comparaison entre solutions analytiques et numériques du problème de fermeture scalaire associé au modèle TEM pour une configuration stratifiée**

Un très bon accord entre les solutions numériques et théoriques est observé.

### G.3 Validation numérique

Afin d'effectuer une validation des codes de calculs dans un cas où il y a apparition de phénomènes convectifs, on va comparer les résultats des codes développés avec ceux d'un logiciel commercial de référence en matière de résolution d'équations aux dérivées partielles pour la physique, COMSOL Multiphysics. Cela nous permet de considérer, pour la même géométrie stratifiée que celle utilisée précédemment, le cas où la phase fluide est le siège d'un écoulement de poiseuille orienté selon le sens croissant de l'axe des  $x$ . L'expression du champ de vitesse  $\mathbf{v}_\gamma$  et du champ de déviation associé  $\tilde{\mathbf{v}}_\gamma$  sont données ci-dessous.

$$\begin{aligned}
\mathbf{v}_\gamma &= \begin{pmatrix} \mathbf{v}_{\gamma,x} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\left(1 - \frac{2y_{\gamma\omega}}{3}\right)} \left(1 - \frac{\left(y - \frac{y_{\gamma\omega}}{2}\right)^2}{\frac{y_{\gamma\omega}}{2}}\right) \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} \\
\tilde{\mathbf{v}}_\gamma &= \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma,x} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\left(1 - \frac{2y_{\gamma\omega}}{3}\right)} \left(1 - \frac{\left(y - \frac{y_{\gamma\omega}}{2}\right)^2}{\frac{y_{\gamma\omega}}{2}}\right) - 1 \\ \mathbf{0} \end{pmatrix}
\end{aligned} \tag{G.154}$$

### G.3.1 Premier problème de fermeture vectoriel

Dans la configuration considérée, le premier problème de fermeture vectoriel s'écrit (voir équation (174) à (183)) :

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} + \mathbf{I}) dA \tag{G.155}$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \tag{G.156}$$

$$C.L.1 \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \tag{G.157}$$

$$C.L.2 \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \tag{G.158}$$

$$C.L.3 \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \tag{G.159}$$

$$C.L.4 \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \tag{G.160}$$

$$C.L.5 \text{ (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \tag{G.161}$$

C.L.6 (*Périodicité*)  $\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e}$  (G.162)

C.L.7  $\langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0$  (G.163)

C.L.8  $\langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0$  (G.164)

Nous constatons que l'invariance de la configuration selon l'axe des x conduit au fait que l'ensemble des variables ne dépendent que de y. La composante x du vecteur de fermeture est donc régie par le problème intégral-différentiel suivant :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 b_{A\gamma\gamma,x}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} c_{\gamma\gamma,x} + P e_A \tilde{v}_{\gamma,x} \quad (\text{G.165})$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 b'_{A\omega\gamma,x}}{dy^2} = D a_A b'_{A\omega\gamma,x} + \varepsilon_\omega^{-1} c_{\omega\gamma,x} \quad (\text{G.166})$$

C.L.1  $\frac{db'_{A\omega\gamma,x}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega x}$  (G.167)

C.L.2  $\frac{db_{A\gamma\gamma,x}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0$  (G.168)

C.L.3  $\frac{db_{A\gamma\gamma,x}}{dy} = \frac{db'_{A\omega\gamma,x}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma}$  (G.169)

C.L.4  $b_{A\gamma\gamma,x} = b'_{A\omega\gamma,x}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma}$  (G.170)

C.L.5  $\langle b_{A\gamma\gamma,x} \rangle^\gamma = 0$  (G.171)

C.L.6  $\langle b'_{A\omega\gamma,x} \rangle^\omega = 0$  (G.172)

Avec

$$c_{\gamma\gamma,x} = \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db_{A\gamma\gamma,x}}{dy} dA \quad (\text{G.173})$$

$$c_{\omega\gamma,x} = -\frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db_{A\omega\gamma,x}}{dy} dA \quad (\text{G.174})$$

D'où

$$c_{\omega\gamma,y} = -c_{\mathcal{N},y} \quad (\text{G.175})$$

La composante y du vecteur de fermeture est quant à elle régie par le problème intégral-différentiel suivant :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 b_{A\gamma\gamma,y}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} c_{\mathcal{N},y} \quad (\text{G.176})$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 b'_{A\omega\gamma,y}}{dy^2} = Da_A b'_{A\omega\gamma,y} + \varepsilon_\omega^{-1} c_{\omega\gamma,y} \quad (\text{G.177})$$

$$\text{C.L.1} \quad \frac{db'_{A\omega\gamma,y}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.178})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{db_{A\gamma\gamma,y}}{dy} = -1, \quad \text{en } y = 0 \quad (\text{G.179})$$

$$\text{C.L.3} \quad 1 + \frac{db_{A\gamma\gamma,y}}{dy} = \frac{db'_{A\omega\gamma,y}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.180})$$

$$\text{C.L.4} \quad b_{A\gamma\gamma,y} = b'_{A\omega\gamma,y}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.181})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle b_{A\gamma\gamma,y} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.182})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle b'_{A\omega\gamma,y} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.183})$$

Avec

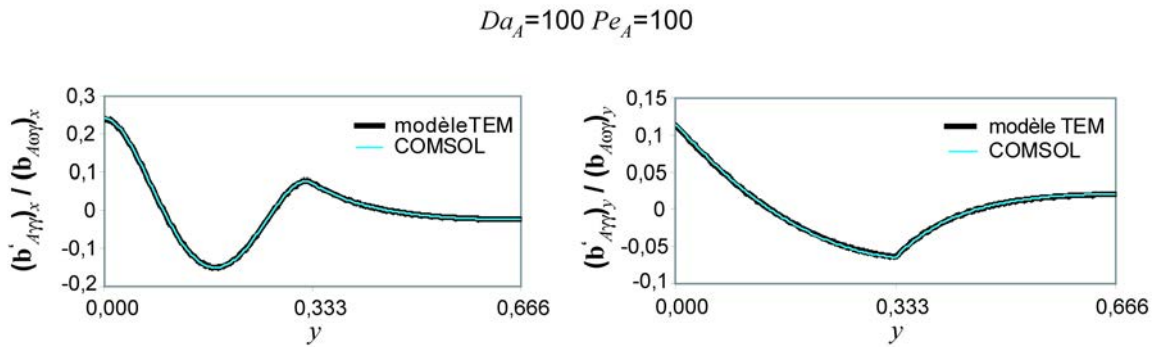
$$c_{\mathcal{N},y} = \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \left( \frac{db_{A\gamma\gamma,y}}{dy} + 1 \right) dA \quad (\text{G.184})$$

$$c_{\omega\gamma,y} = -\frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db_{A\omega\gamma,y}}{dy} dA \quad (\text{G.185})$$

D'où

$$c_{\omega\gamma,y} = -c_{\gamma\gamma,y} \quad (\text{G.186})$$

Ces deux problèmes sont résolus par les codes de calculs développés pour le modèle TEM et sous COMSOL Multiphysics. On peut voir sur la figure ci-dessous les deux composantes de ce champ de fermeture calculées par chacune des deux méthodes, dans le cas où  $Pe_A = 100$  et  $Da_A = 100$ .



**Figure 5G : Comparaison entre solutions du premier problème de fermeture du modèle TEM obtenues par le code développé pour le modèle TEM et par COMSOL Multiphysics pour une configuration stratifiée avec écoulement ( $Pe_A = 100$  et  $Da_A = 100$ ).**

La comparaison montre un bon accord entre les solutions obtenues selon chaque méthodes, et ce même pour des nombres de Péclet et de Damköhler relativement élevés.

### G.3.2 Second problème de fermeture vectoriel

Dans la configuration considérée, le second problème de fermeture vectoriel s'écrit (voir équations (184) à (194)) :

Phase  $\gamma$

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (\text{G.187})$$

Phase  $\omega$

$$\nabla^2 \mathbf{b}_{A\omega\omega} - Da_A c_{B\omega}^* \mathbf{b}_{A\omega\omega} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} + \mathbf{I}) dA \quad (\text{G.188})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{G.189})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{G.190})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.191})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{G.192})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{G.193})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{G.194})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.195})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.196})$$

l'invariance de la configuration selon l'axe des x conduit au fait que l'ensemble des variables ne dépendent que de y. La composante x du vecteur de fermeture est donc régie par le problème intégral-différentiel suivant :

Phase  $\gamma$

$$\frac{d^2 b'_{A\gamma\omega,x}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} c_{\gamma\omega,x} \quad (\text{G.197})$$

Phase  $\omega$

$$\frac{d^2 b_{A\omega\omega,x}}{dy^2} = Da_A b_{A\omega\omega,x} + \varepsilon_\omega^{-1} c_{\omega\omega,x} \quad (\text{G.198})$$



$$\text{C.L.1} \quad 0 = \frac{db_{A\omega\omega,x}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.199})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{db'_{A\gamma\omega,x}}{dy} = 0, \quad \text{sur } y = 0, \quad (\text{G.200})$$

$$\text{C.L.3} \quad \frac{db_{A\omega\omega,x}}{dy} = \frac{db'_{A\gamma\omega,x}}{dy}, \quad \text{sur } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.201})$$

$$\text{C.L.4} \quad b_{A\omega\omega,x} = b'_{A\gamma\omega,x}, \quad \text{sur } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.202})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle b'_{A\gamma\omega,x} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.203})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle b_{A\omega\omega,x} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.204})$$

Avec

$$c_{\gamma\omega,x} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db'_{A\gamma\omega,x}}{dy} dA \quad (\text{G.205})$$

$$c_{\omega\omega,x} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db_{A\omega\omega,x}}{dy} dA \quad (\text{G.206})$$

D'où

$$c_{\omega\omega,x} = -c_{\gamma\omega,x} \quad (\text{G.207})$$

La composante y du vecteur de fermeture est quant à elle régie par le problème intégral différentiel suivant :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 b'_{A\gamma\omega,y}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} c_{\gamma\omega,y} \quad (\text{G.208})$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 b_{A\omega\omega,y}}{dy^2} = Da_A b_{A\omega\omega,y} + \varepsilon_\omega^{-1} c_{\omega\omega,y} \quad (\text{G.209})$$

$$\text{C.L.1} \quad -1 = \frac{db_{A\omega\omega,y}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.210})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{db'_{A\gamma\omega,y}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0, \quad (\text{G.211})$$

$$\text{C.L.3} \quad 1 + \frac{db_{A\omega\omega,y}}{dy} = \frac{db'_{A\gamma\omega,y}}{dy}, \quad \text{sur } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.212})$$

$$\text{C.L.4} \quad b_{A\omega\omega,y} = b'_{A\gamma\omega,y}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.213})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle b'_{A\gamma\omega,y} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.214})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle b_{A\omega\omega,y} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{G.215})$$

Avec

$$c_{\gamma\omega,y} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{db'_{A\gamma\omega,y}}{dy} dA \quad (\text{G.216})$$

$$c_{\omega\omega,y} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \left( \frac{db_{A\omega\omega,y}}{dy} + 1 \right) dA \quad (\text{G.217})$$

D'où

$$c_{\omega\omega,y} = -c_{\gamma\omega,y} \quad (\text{G.218})$$

On peut donc voir que dans cette configuration, le second champ de fermeture vectoriel ne dépend pas du nombre de Péclet et est égal pour tout nombre de Péclet à celui calculé en F.2.2. Le même comportement est observé dans les calculs menés par le code développé pour le modèle TEM et sous COMSOL Multiphysics.

### G.3.3 Problème de fermeture scalaire

Dans la configuration considérée, le second problème de fermeture vectoriel s'écrit (voir équations (194) à ((203)) :

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r'_{A\gamma}) = \nabla^2 r'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma} dA \quad (G.219)$$

*Phase  $\omega$*

$$\nabla^2 s_{A\omega} - Da_A (s_{A\omega} - 1) = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} dA \quad (G.220)$$

$$C.L.1 \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega} = 0, \quad \text{en } A_{\omega\kappa} \quad (G.221)$$

$$C.L.2 \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r'_{A\gamma} = 0, \quad \text{en } A_{\gamma\kappa}, \quad (G.222)$$

$$C.L.3 \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (G.223)$$

$$C.L.4 \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (G.224)$$

$$C.L.5 \text{ (Périodicité)} \quad s_{A\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (G.225)$$

$$C.L.6 \text{ (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (G.226)$$

$$C.L.7 \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (G.227)$$

$$C.L.8 \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (G.228)$$

Encore un fois, le problème est invariant selon l'axe des x ce conduit au fait que l'ensemble des variables ne dépendent que de y. Le champ de fermeture scalaire est donc régi par le problème intégral-différentiel suivant :

*Phase  $\gamma$*

$$\frac{d^2 r'_{A\gamma}}{dy^2} = \varepsilon_\gamma^{-1} t_{\gamma\omega} \quad (G.229)$$

*Phase  $\omega$*

$$\frac{d^2 s_{A\omega}}{dy^2} = Da_A (s_{A\omega} - 1) + \varepsilon_\omega^{-1} t_{\omega\omega} \quad (\text{G.230})$$

$$\text{C.L.1} \quad \frac{ds_{A\omega\omega}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = y_{\omega\kappa} \quad (\text{G.231})$$

$$\text{C.L.2} \quad \frac{dr'_{A\gamma}}{dy} = 0, \quad \text{en } y = 0, \quad (\text{G.232})$$

$$\text{C.L.3} \quad \frac{ds_{A\omega\omega}}{dy} = \frac{dr'_{A\gamma\omega}}{dy}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.233})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{en } y = y_{\omega\gamma} \quad (\text{G.234})$$

$$\text{C.L.5} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{G.235})$$

$$\text{C.L.6} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{G.236})$$

Avec

$$t_{\gamma\omega} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{dr'_{A\gamma}}{dy} dA \quad (\text{G.237})$$

$$t_{\omega\omega} = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \frac{ds_{A\omega}}{dy} dA \quad (\text{G.238})$$

D'où

$$t_{\gamma\omega} = -t_{\omega\omega} \quad (\text{G.239})$$

Comme précédemment, pour cette configuration, le champ de fermeture scalaire ne dépend pas du nombre de Péclet et est égal pour tout nombre de Péclet à celui calculé en F.2.3. Le même comportement est observé dans les calculs menés par le code développé pour le modèle TEM et sous COMSOL Multiphysics.

## Annexe H : Calcul des propriétés effectives d'un milieu poreux tridimensionnel dans le cadre du modèle TEM.

Les paramètres effectifs de transport du modèle TEM ont été calculés pour une géométrie tridimensionnelle simplifiée identique à celle considérée au paragraphe 3.2 : un réseau régulier de billes sphériques disposées en quinconce avec un biofilm d'épaisseur uniforme ( $\varepsilon_\omega = 0,11$  ;  $\varepsilon_\gamma = 0,31$ ). L'ensemble des valeurs des paramètres effectifs ont été calculés en fonction du nombre de Péclet  $Pe_A$  sur une plage de 0,01 à 100, pour des nombre de Damköhler  $Da_A$  égaux à 1 ou 1000 et pour des constantes de demi saturation effectives  $K'_{eff,A}$  égales à 0,1 ou 10. Le coefficient de partition  $K_{Aeq}$  a été pris égal à 1 et le rapport des coefficients de diffusion entre les phases biofilm et fluide a été pris égal à 0,5. Les composantes nulles ne sont pas représentées.

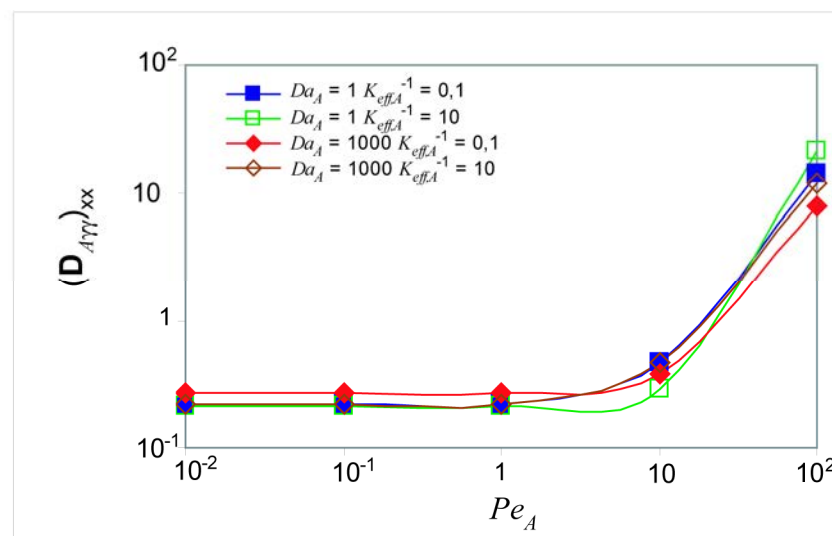


Figure H1 : composante longitudinale de  $D_{A\gamma\gamma}^*$

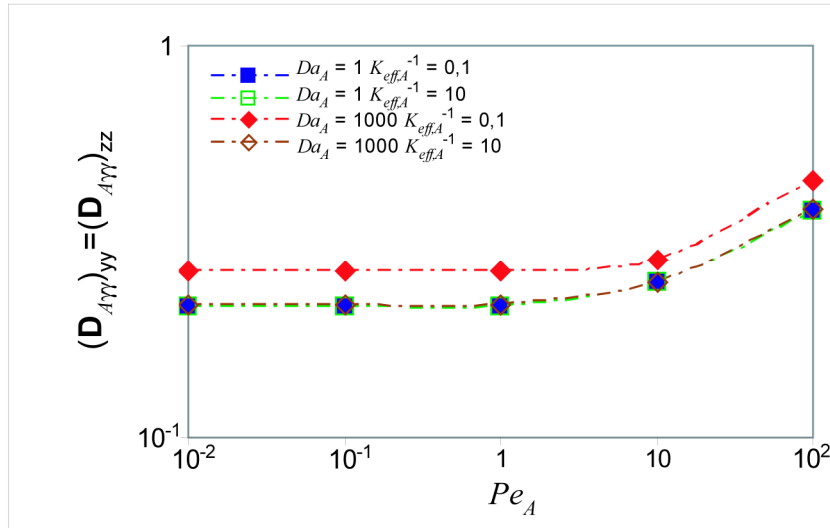


Figure H2 : Composante transversale de  $D_{A\gamma\gamma}^*$

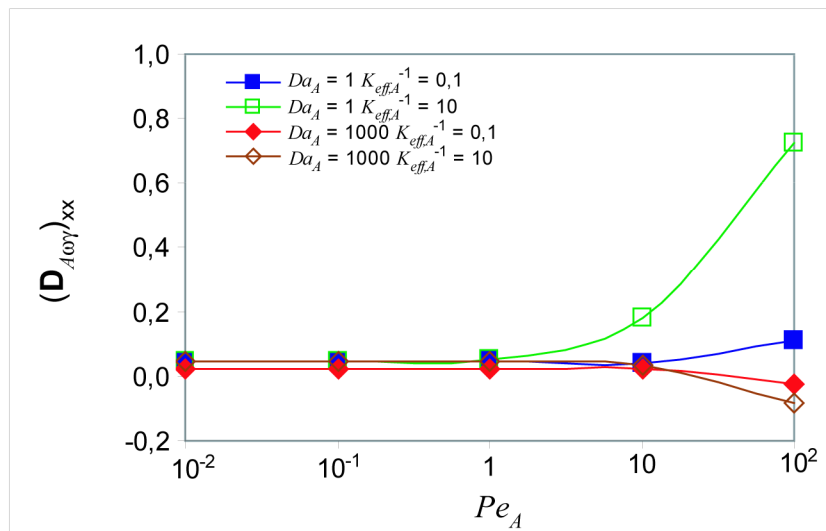


Figure H3 : Composante longitudinale de  $D_{A\omega\gamma}^*$

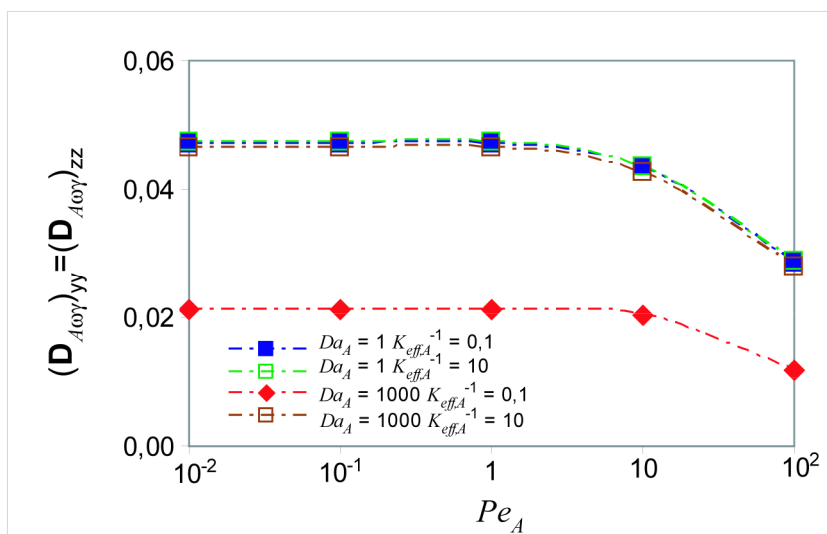


Figure H4 : Composante transversale de  $D_{A\omega\gamma}^*$

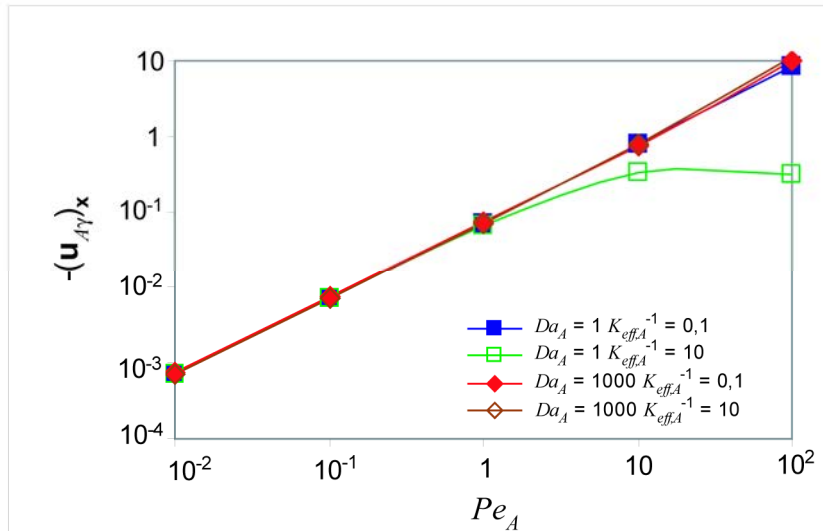


Figure H5 : Opposée de la composante longitudinale de  $\mathbf{u}_{Ay}^*$

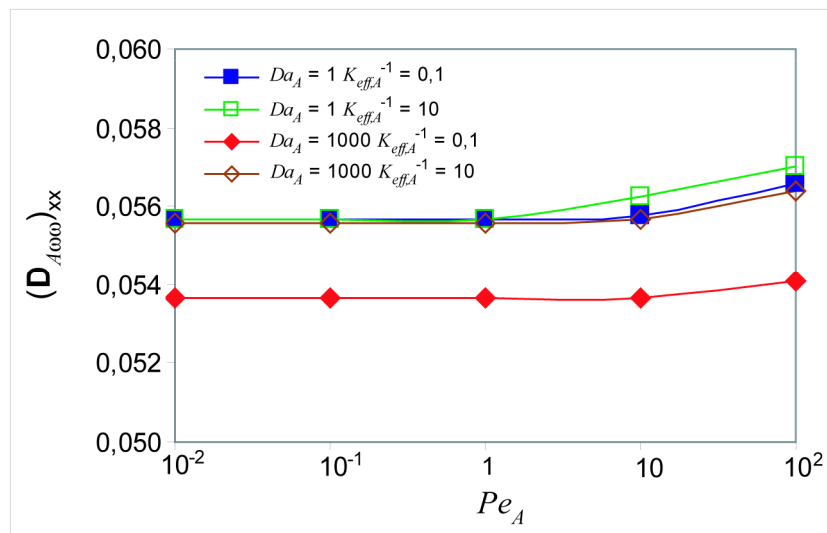


Figure H6 : Composante longitudinale de  $\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*$

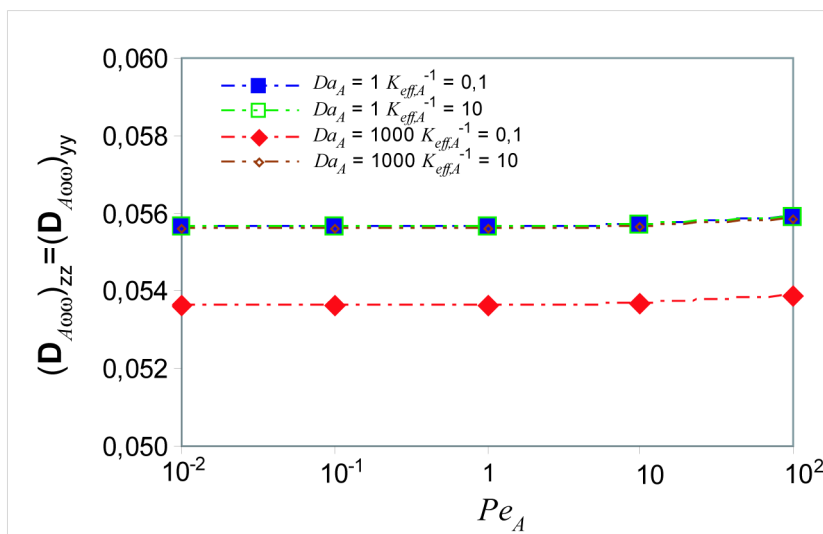


Figure H7 : Composante transversale de  $\mathbf{D}_{A\omega\omega}^*$

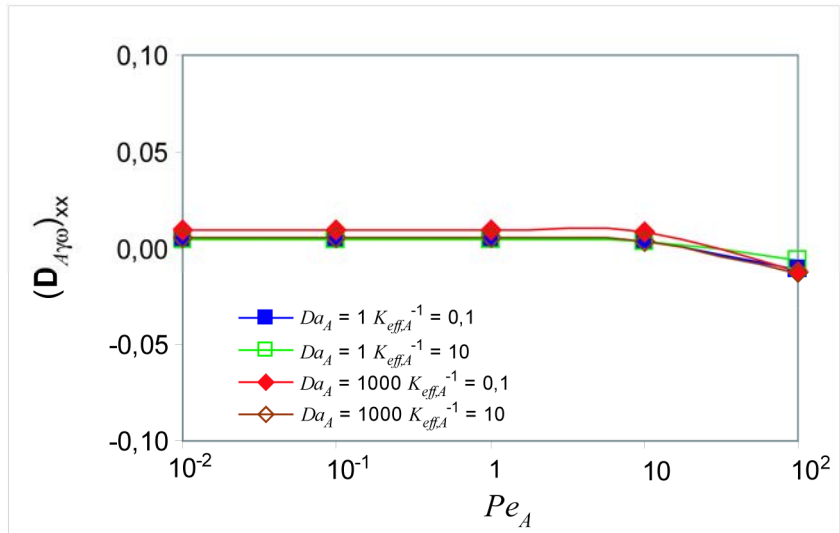


Figure H8 : Composante longitudinale de  $D_{A\gamma\omega}^*$

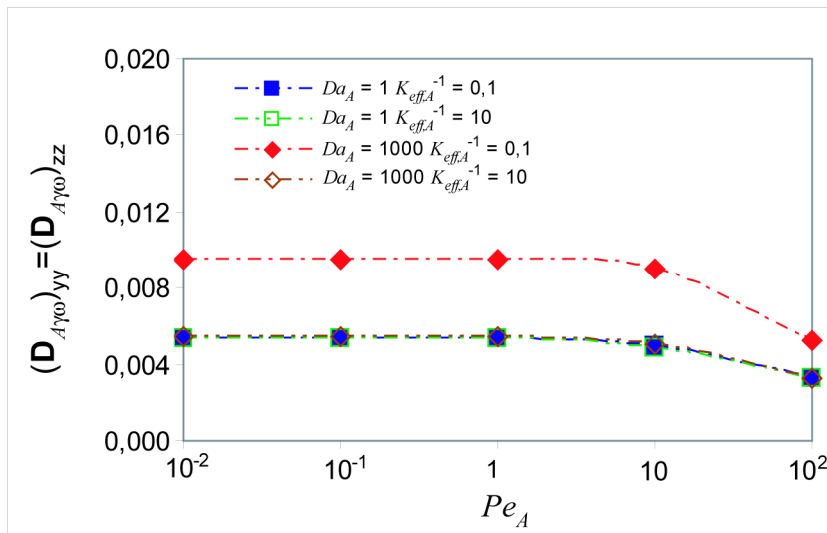


Figure H9 : Composante transversale de  $D_{A\gamma\omega}^*$

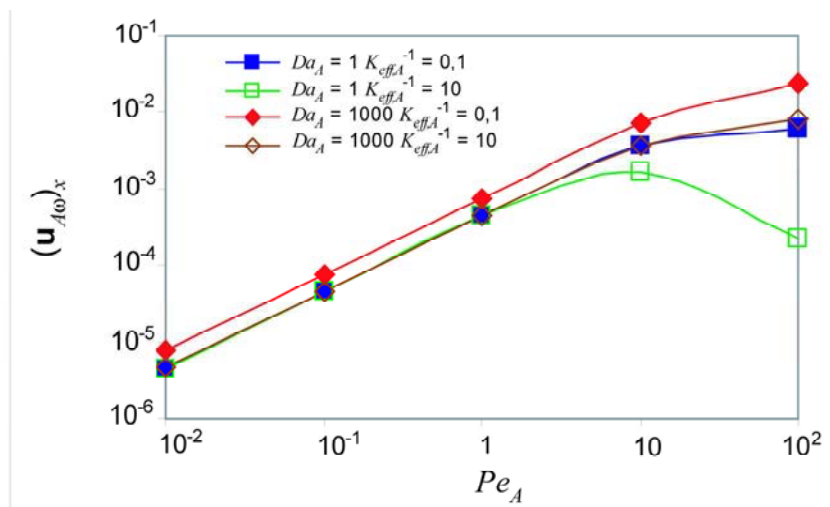


Figure H10 : Composante longitudinale de  $u_{A\gamma}^*$



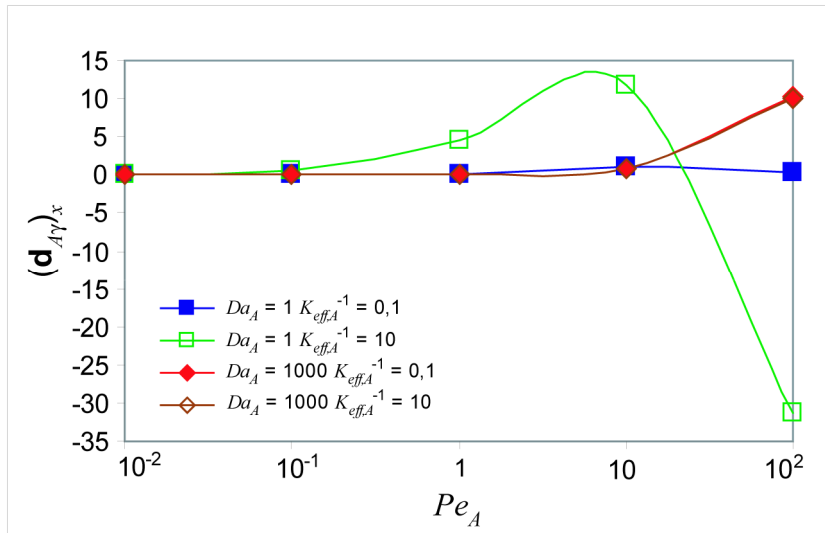


Figure H11 : Composante longitudinale de  $\mathbf{d}_{Ay}^*$

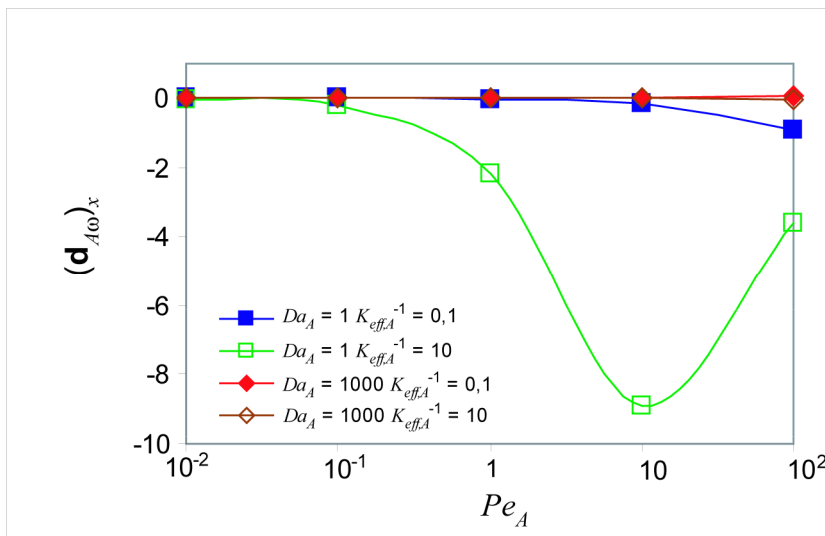


Figure H12 : Composante longitudinale de  $\mathbf{d}_{A\omega}^*$

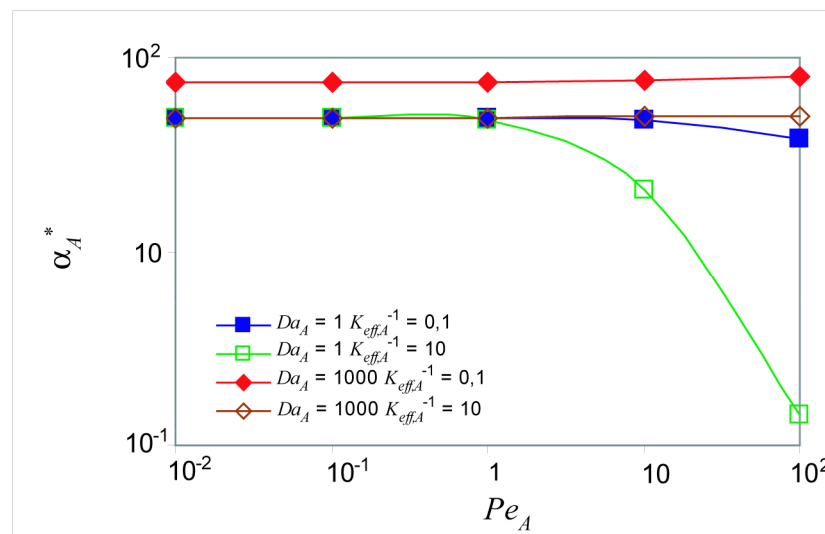


Figure H13 : Coefficient de transfert de masse  $\alpha_A^*$



# Annexe I : Développement du modèle RRLC dans le cas du transport couplé de deux solutés

Nous partons dans cette annexe de l'hypothèse classique du modèle RRLC appliquée au deux solutés

$$c_{A\omega} = K_{A,eq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \quad (I.1)$$

$$c_{B\omega} = K_{B,eq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \quad (I.2)$$

On s'intéresse au flux interfaciaux en solutés A et B de la phase fluide vers la phase biofilm, que nous pouvons simplifier sous la forme (voir conditions aux limites (240) et (246)) :

$$\underbrace{\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA}_{\text{flux interfacial macroscopique}} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA \quad (I.3)$$

$$\underbrace{\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma}) dA}_{\text{Flux interfacial macroscopique}} = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma}) dA \quad (I.4)$$

Ces flux peuvent aussi être exprimés, en se servant des conditions aux limites (242) et (247) :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA \quad (I.5)$$

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \cdot \nabla c_{B\gamma}) dA = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla c_{B\omega}) dA \quad (I.6)$$

En appliquant les hypothèses du modèle RRLC posées en début de cette annexe (équations (I.1) et (I.2)) il vient :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA = \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla S_{A\omega}) dA \quad (I.7)$$

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{B\gamma} \cdot \nabla c_{B\gamma}) dA = \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla S_{B\omega}) dA \quad (\text{I.8})$$

Nous considérons les définitions suivantes des facteurs d'efficacité :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA = \eta_A \frac{1}{V} \int_{V_\omega} \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} dV \quad (\text{I.9})$$

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla c_{B\omega}) dA = \eta_B \frac{1}{V} \int_{V_\omega} \mu_{B\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} dV \quad (\text{I.10})$$

ce qui conduit à :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla c_{A\gamma}) dA = \eta_A \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \quad (\text{I.11})$$

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \cdot \nabla c_{B\gamma}) dA = \eta_B \varepsilon_\omega \mu_{B\omega} \rho_\omega \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \quad (\text{I.12})$$

avec:

$$\eta_A = \frac{V}{V_\omega} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}}{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}}{\mu_{A\omega} \rho_\omega V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla S_{A\omega}) dA \quad (\text{I.13})$$

$$\eta_B = \frac{V}{V_\omega} \frac{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}}{K_{A,eq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \frac{K_{B,eq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}}{\mu_{B\omega} \rho_\omega V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathbf{D}_{B\omega} \cdot \nabla S_{B\omega}) dA \quad (\text{I.14})$$

Expressions qui peuvent être mis sous les formes adimensionnées suivantes :

$$\eta_A = \frac{(K_{eff,A} + 1)(K_{eff,B} + 1)}{\varepsilon_\omega Da_A K_{eff,A}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{A\omega} dA \quad (\text{I.15})$$

$$\eta_B = \frac{(K_{eff,A} + 1)(K_{eff,B} + 1)}{\varepsilon_\omega Da_B K_{eff,B}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla S_{B\omega} dA \quad (\text{I.16})$$

Dans les expressions suivantes, nous avons utilisé les grandeurs adimensionnées définies ci-dessous :

$$Da_A = \frac{\ell_\omega^2 \mu_{A\omega} \rho_\omega}{D_{A\omega} K_{A\omega}} \quad (\text{I.17})$$

$$Da_B = \frac{\ell_\omega^2 \mu_{B\omega} \rho_\omega}{D_{B\omega} K_{B\omega}} \quad (\text{I.18})$$

$$K_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \quad (\text{I.19})$$

$$K_{eff,B} = \frac{K_{B\omega}}{K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \quad (\text{I.20})$$

Pour calculer les champs  $S_{A\omega}$  et  $S_{B\omega}$ , nous injectons les hypothèses (I.1) et (I.2) dans les problèmes de transport microscopiques dans la phase biofilm (voir équations (237) à (248)), avec une hypothèse supplémentaire de stationnarité du problème (voir 4.1.2)

*Soluté A*

$$D_{A\omega} K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \nabla^2 S_{A\omega} = \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{K_{Aeq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{Aeq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \frac{K_{Beq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{Beq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \quad (\text{I.21})$$

$$\text{C.L.1} \quad -K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \cdot S_{A\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{I.22})$$

$$\text{C.L.2} \quad K_{Aeq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma = K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{I.23})$$

*Soluté B*

$$D_{B\omega} K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \nabla^2 S_{B\omega} = \mu_{B\omega} \rho_\omega \frac{K_{Beq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{K_{Beq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + K_{B\omega}} \frac{K_{Aeq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{K_{Aeq} S_{A\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + K_{A\omega}} \quad (\text{I.24})$$

$$\text{C.L.1} \quad -K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \cdot S_{B\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{I.25})$$

$$\text{C.L.2} \quad K_{Beq} S_{B\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma = K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{I.26})$$

Ces deux problèmes s'écrivent alors sous les formes adimensionnelles suivantes :

*Soluté A*

$$\nabla^2 S_{A\omega} = \frac{Da_A}{K_{eff,B}} \frac{S_{A\omega}}{\left(\frac{S_{A\omega}}{K_{eff,A}} + 1\right)} \frac{S_{B\omega}}{\left(\frac{S_{B\omega}}{K_{eff,B}} + 1\right)} \quad (I.27)$$

$$C.L.1 \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \cdot S_{A\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (I.28)$$

$$C.L.2 \quad S_{A\omega} = 1 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (I.29)$$

*Soluté B*

$$\nabla^2 S_{B\omega} = \frac{Da_B}{K_{eff,A}} \frac{S_{A\omega}}{\left(\frac{S_{A\omega}}{K_{eff,A}} + 1\right)} \frac{S_{B\omega}}{\left(\frac{S_{B\omega}}{K_{eff,B}} + 1\right)} \quad (I.30)$$

$$-\mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \cdot S_{B\omega} = 0 \text{ sur } A_{\omega\kappa} \quad (I.31)$$

$$S_{B\omega} = 1 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (I.32)$$

En résolvant ces deux problèmes couplés sur le volume de prise de moyenne, on obtient les facteurs d'efficacité de chaque soluté.

Néanmoins, il faut s'assurer que la stœchiométrie de la réaction est respectée ; en effet, on a



où  $C$  représente la biomasse produite, ce qui implique, vu l'hypothèse de quasi stationnarité formulé dans le modèle RRLC ,

$$\mu_{B\omega} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{B\gamma} \nabla c_{B\gamma}) dA = \mu_{A\omega} \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA \quad (I.34)$$

D'où

$$\eta_A = \eta_B = \eta \quad (I.35)$$

Ce que nous constatons également empiriquement au vu des calculs effectués. (voir paragraphe 8.2.3).

## Annexe J : Développement du modèle MTLC dans le cas du transport couplé de deux solutés

*A priori*, nous avons les deux modèles MTLC associés à chaque espèce dissoute (A le donneur d'électron et B l'accepteur d'électron) à coupler, avec des équations macroscopiques de transport de la forme :

*Soluté A :*

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) - \alpha_A \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^* \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + (\mathbf{u}_{A\gamma}^* - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (J.1)$$

avec

$$\mathbf{D}_{A,eff}^* = \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} + \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma} dA \right) - \left( \left\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma} \right\rangle \right) \quad (J.2)$$

$$\alpha_A = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla (s_{A\gamma}) dA \quad (J.3)$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma}^* = -\mathcal{D}_{A\gamma} \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} s_{A\gamma} dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} s_{A\gamma} dA \right) + \left( \left\langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma s_{A\gamma} \right\rangle \right) \quad (J.4)$$

$$\mathbf{u}_{A\gamma}^* = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \cdot \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma}) dA \quad (J.5)$$

Et il en est de même pour l'espèce B.

A ces équations macroscopiques, viennent s'ajouter les problèmes de fermeture microscopiques suivants :

*Soluté A :*

*Problème de fermeture vectoriel*

$$Pe_A \left( \tilde{\mathbf{v}}'_\gamma + \mathbf{v}'_\gamma \nabla \cdot (\mathbf{b}'_{A\gamma}) \right) = \nabla^2 \cdot (\mathbf{b}'_{A\gamma}) - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\omega}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \nabla \cdot (\mathbf{b}'_{A\gamma}) dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \cdot (\mathbf{b}'_{A\gamma}) dA \quad (\text{J.6})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \cdot (\mathbf{b}'_{A\gamma}) \text{ sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{J.7})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = 0 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{J.8})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{b}'_{A\gamma} = \mathbf{b}'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \text{ sur } A_{\gamma e} \quad (\text{J.9})$$

$$\text{C.L.4} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{J.10})$$

*Problème scalaire*

$$Pe_A \tilde{\mathbf{v}}'_\gamma \nabla (s_{A\gamma}) = \nabla^2 \cdot (s_{A\gamma}) + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\omega}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \nabla \cdot (s_{A\gamma}) dA \quad (\text{J.11})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \cdot (s_{A\gamma}) = 0 \text{ sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{J.12})$$

$$\text{C.L.2} \quad s_{A\gamma} = 1 \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{J.13})$$

$$\text{C.L.3} \quad s_{A\gamma} = s_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \text{ sur } A_{\gamma e} \quad (\text{J.14})$$

$$\text{C.L.4} \quad \langle s_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{J.15})$$

avec

$$\mathbf{b}'_{A\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma}}{\ell_\gamma} \quad (\text{J.16})$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (\text{J.17})$$

$$Pe_A = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| \ell_\gamma}{D_{A\gamma}} \quad (\text{J.18})$$

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{J.19})$$

et de même pour l'espèce B.



Pour tenir compte du couplage entre les deux espèces, nous devons nous assurer que le bilan réactionnel est respecté, c'est-à-dire que le flux de l'une ou l'autre espèce vers la phase biofilm n'est pas surestimé, compte tenu de la stœchiométrie de la réaction. Comme les cinétiques de réaction ne sont pas prise en compte (elles sont considérées comme quasi infini) dans ce modèle, on doit le faire a posteriori. On a en effet une stœchiométrie du type (C étant la biomasse produite):



Si on considère les quantités de solutés A et B consommé en un temps  $T$  pour un volume  $V$  du milieu (notées  $Q_A$  et  $Q_B$ ), on a :

$$\begin{aligned} Q_A &= \alpha_A T \langle c_{AY} \rangle^\gamma V \\ Q_B &= \alpha_B T \langle c_{BY} \rangle^\gamma V \end{aligned} \quad (\text{J.21})$$

En régime stationnaire on a nécessairement

$$\frac{Q_A}{\mu_{A\omega}} = \frac{Q_B}{\mu_{B\omega}} \quad (\text{J.22})$$

d'où

$$\begin{aligned} \alpha_A &= \frac{\mu_{A\omega} \langle c_{BY} \rangle^\gamma}{\mu_{B\omega} \langle c_{AY} \rangle^\gamma} \alpha_B \\ \alpha_B &= \frac{\mu_{B\omega} \langle c_{AY} \rangle^\gamma}{\mu_{A\omega} \langle c_{BY} \rangle^\gamma} \alpha_A \end{aligned} \quad (\text{J.23})$$

Ce qui veut dire que nous pouvons exprimer un coefficient de transfert à partir de l'autre, afin de s'assurer de leur compatibilité au regard de la stœchiométrie. Vu que deux coefficient de transferts,  $\alpha_A$  et  $\alpha_B$ , ont déjà déterminés, on se retrouve avec deux couples de coefficients de transferts possibles pour notre modèle couplé final :

$$(\alpha_A, \alpha'_B) = \left( \alpha_A, \frac{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_A \right)$$

(J.24)

$$(\alpha'_A, \alpha_B) = \left( \frac{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_B, \alpha_B \right)$$

Nous choisirons le minimum des deux couples, qui assure que nous ne surestimons pas un des deux flux. En d'autres termes, on considérera que les flux de solutés sont contrôlés par le réactif limitant (ce qui est logique puisque le moteur principal de ce flux est la consommation des substrats par la réaction, qui est fatalement limitée par le réactif limitant). Nous noterons le couple choisi  $(\alpha_A^L, \alpha_B^L)$ . Cela dit on va se retrouver face à un problème ; illustrons le en considérant que A est le réactif limitant de la réaction et donc que le couple de coefficient de transfert de masse finalement retenue sera

$$(\alpha_A^L, \alpha_B^L) = \left( \alpha_A, \frac{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_A \right)$$

(J.25)

On veut maintenant obtenir un nouveau champ  $s'_{B\gamma}$  générateur de  $\alpha_B^L$ , de la forme

$$\alpha_B^L = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{B\gamma} \cdot \nabla(s'_{B\gamma}) dA \quad (\text{vu l'expression } \alpha_B = \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{B\gamma} \cdot \nabla(s_{B\gamma}) dA)$$

permette de recalculer un terme  $\mathbf{d}_{B\gamma}^{*L}$  compatible avec le nouveau flux  $\alpha_B^L$  (le reste des coefficients effectifs restant inchangés).

Si on pose

$$s'_{B\gamma} = \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} s_{B\gamma}$$

(J.26)

On obtient un nouveau champ générateur de  $\alpha_B^L$ , noté  $s'_{B\gamma}$ , par simple homothétie du champ

$s_{B\gamma}$  ; la valeur de  $\mathbf{d}_{B\gamma}^{*L}$  est alors :

$$\begin{aligned} \mathbf{d}_{B\gamma}^{*L} &= -\mathcal{D}_{B\gamma} \left( \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} s'_{B\gamma} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} s'_{B\gamma} dA \right) + \left( \left\langle \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} s'_{B\gamma} \right\rangle \right) \\ &= \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma}} \left( -\mathcal{D}_{B\gamma} \left( \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} s_{B\gamma} dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\kappa\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} s_{B\gamma} dA \right) + \left( \left\langle \tilde{\mathbf{v}}_{\gamma} s_{B\gamma} \right\rangle \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{J.27})$$

c'est-à-dire

$$\mathbf{d}_{B\gamma}^{*L} = \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma}} \mathbf{d}_{B\gamma}^* \quad (\text{J.28})$$

Le problème de fermeture satisfait par  $s'_{B\gamma}$  est de la forme :

$$Pe_B \mathbf{v}'_{\gamma} \nabla (s'_{B\gamma}) = \nabla^2 \cdot (s'_{B\gamma}) + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{\gamma} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \nabla \cdot (s'_{B\gamma}) dA \quad (\text{J.29})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \cdot (s'_{B\gamma}) = 0 \text{ sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{J.30})$$

$$\text{C.L.2} \quad s'_{B\gamma} = \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^{\gamma}}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma}} \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{J.31})$$

$$\text{C.L.3} \quad s'_{B\gamma} = s'_{B\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{J.32})$$

$$\text{C.L.4} \quad \langle s'_{B\gamma} \rangle^{\gamma} = 0 \quad (\text{J.33})$$

On constate que ce problème est rigoureusement identique au problème de fermeture originel, sauf pour la condition au limite à l'interface fluide – biofilm. Que signifie cette modification ?

Reprenons l'hypothèse de fermeture du modèle de transfert de masse limitant :

$$c_{B\gamma} = \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma} + \tilde{c}_{B\gamma} \quad (\text{J.34})$$

avec

$$\tilde{c}_{B\gamma} = \mathbf{b}_{B\gamma} \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma} - s_{B\gamma} \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma} \quad (\text{J.35})$$

Qui devient donc

$$\tilde{c}_{B\gamma} = \mathbf{b}_{B\gamma} \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma} - s'_{B\gamma} \langle c_{B\gamma} \rangle^{\gamma} \quad (\text{J.36})$$

A l'interface fluide biofilm, on a donc

$$c_{B\gamma} = \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma - s'_{B\gamma} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{J.37})$$

C'est-à-dire, non plus une concentration nulle mais une concentration résiduelle de la forme :

$$c_{B\gamma} = \left( 1 - \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \right) \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \text{ sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{J.38})$$

La concentration a l'intérieur du biofilm reste bien constante égale à celle de l'interface (gradient de concentration nul dans la phase biofilm a l'échelle microscopique) puisque le réactif A étant entièrement consommé a l'interface, il n'y a pas de réaction a l'intérieur du biofilm.

NB : A étant le réactif limitant, on est bien assuré d'avoir  $0 < \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} < 1$

Le modèle macroscopique couplet final s'écrit donc dans le cas général :

*Soluté A*

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{A,eff}^* \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)) - \alpha_A^L \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{A\gamma}^{*L} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) + (\mathbf{u}_{A\gamma}^* - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \nabla (\langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (\text{J.39})$$

*Soluté B*

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\varepsilon_\gamma \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) = \\ \nabla \cdot (\mathbf{D}_{B,eff}^* \nabla (\langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma)) - \alpha_B^L \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + \nabla \cdot (\mathbf{d}_{B\gamma}^{*L} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) + (\mathbf{u}_{B\gamma}^* - \mathcal{D}_{B\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma) \nabla (\langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma) \end{aligned} \quad (\text{J.40})$$

avec :

$$\text{Si } 0 < \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} < 1, \text{ alors}$$

$$(\alpha_A^L, \alpha_B^L) = \left( \alpha_A, \frac{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_A \right) \quad \text{et} \quad (\mathbf{d}_{A\gamma}^{*L}, \mathbf{d}_{B\gamma}^{*L}) = \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^*, \frac{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma} \mathbf{d}_{B\gamma}^* \right) \quad (\text{J.41})$$

sinon

$$(\alpha_A^L, \alpha_B^L) = \left( \frac{\mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{\mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \alpha_B; \alpha_B \right) \quad \text{et} \quad (\mathbf{d}_{A\gamma}^{*L}, \mathbf{d}_{B\gamma}^{*L}) = \left( \frac{\alpha_B \mu_{A\omega} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma}{\alpha_A \mu_{B\omega} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma} \mathbf{d}_{A\gamma}^*; \mathbf{d}_{B\gamma}^* \right) \quad (\text{J.42})$$



## Annexe K : Développement du modèle TEM pour le cas du transport couplé de deux espèces chimiques

Si on considère les équations de transport macroscopiques ouvertes associées aux transports couplés de deux espèces (voir Wood et Whitaker, 2000) :

*Soluté A*

*Équation de transport macroscopique ouverte pour la phase  $\omega$*

$$\begin{aligned}
 \underbrace{\frac{\partial(\varepsilon_\omega \langle c_{A\omega} \rangle^\omega)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} &= \underbrace{\nabla \cdot \left[ \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \cdot \left( \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \tilde{c}_{A\omega} dA + \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \tilde{c}_{A\omega} dA \right) \right]}_{\text{Diffusion}} \\
 &+ \underbrace{\frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot (\mathbf{D}_{A\omega} \cdot \nabla c_{A\omega}) dA}_{\text{Flux interfacial}} \quad (\text{K.1}) \\
 &- \underbrace{\varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}}}_{\text{Reaction}}
 \end{aligned}$$

*Équation de transport macroscopique ouverte pour la phase  $\gamma$*

$$\begin{aligned}
 \underbrace{\frac{\partial(\varepsilon_\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}{\partial t}}_{\text{Accumulation}} &+ \underbrace{\nabla \cdot (\varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma)}_{\text{Convection}} = \\
 &\underbrace{\nabla \cdot \left[ \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \left( \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \tilde{c}_{A\gamma} dA + \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \tilde{c}_{A\gamma} dA \right) \right]}_{\text{Diffusion}} \quad (\text{K.2}) \\
 &+ \underbrace{\frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA + \frac{1}{\mathcal{V}} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot (\mathcal{D}_{A\gamma} \nabla c_{A\gamma}) dA}_{\text{Flux interfacial}} - \underbrace{\nabla \cdot \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \tilde{c}_{A\gamma} \rangle}_{\text{Transport Dispersif}}
 \end{aligned}$$

Et il en est de même pour le soluté B. Si nous considérons maintenant les équations de transport microscopiques dans le cas couplé (équations (238) à (249)), nous arrivons aux problèmes suivants pour les déviations :

*Soluté A :*

*Phase  $\omega$*

$$\mu_{A\omega}\rho_{\omega}\left(\frac{\langle c_{B\omega}\rangle^{\omega}K_{A\omega}\tilde{c}_{A\omega}}{(\langle c_{B\omega}\rangle^{\omega}+K_{B\omega})(\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega}+K_{A\omega})^2}+\frac{\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega}K_{B\omega}\tilde{c}_{B\omega}}{(\langle c_{B\omega}\rangle^{\omega}+K_{B\omega})^2(\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega}+K_{A\omega})}\right)=\quad (K.3)$$

$$\nabla\cdot(\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\tilde{c}_{A\omega})-\frac{1}{V_{\omega}}\int_{A_{\omega\kappa}(t)}\mathbf{n}_{\omega\kappa}\cdot(\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\tilde{c}_{A\omega})dA-\frac{1}{V_{\omega}}\int_{A_{\omega\kappa}(t)}\mathbf{n}_{\omega\kappa}\cdot(\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\tilde{c}_{A\omega})dA$$

*Phase  $\gamma$*

$$\tilde{\mathbf{v}}_{\gamma}\cdot\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma}+\mathbf{v}_{\gamma}\cdot\nabla\tilde{c}_{A\gamma}=\nabla\cdot(\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\tilde{c}_{A\gamma})-\frac{1}{V_{\gamma}}\int_{A_{\omega\gamma}(t)}\mathbf{n}_{\gamma\omega}\cdot(\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\tilde{c}_{A\gamma})dA-\frac{1}{V_{\gamma}}\int_{A_{\omega\kappa}(t)}\mathbf{n}_{\gamma\kappa}\cdot(\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\tilde{c}_{A\gamma})dA\quad (K.4)$$

$$\text{C.L.1}\quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa}\cdot\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\tilde{c}_{A\omega}=\mathbf{n}_{\omega\kappa}\cdot\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega},\quad \text{sur } A_{\omega\kappa},\quad (K.5)$$

$$\text{C.L.2}\quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa}\cdot\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\tilde{c}_{A\gamma}=\mathbf{n}_{\gamma\kappa}\cdot\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma},\quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}\quad (K.6)$$

$$\text{C.L.3}\quad (\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma}-K_{A,eq}^{-1}\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega})+\tilde{c}_{A\omega}=K_{A,eq}\tilde{c}_{A\gamma},\quad \text{sur } A_{\gamma\omega}\quad (K.7)$$

$$\text{C.L.4}\quad \mathbf{n}_{\gamma\omega}\cdot\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\tilde{c}_{A\omega}+\mathbf{n}_{\gamma\omega}\cdot\mathbf{D}_{A\omega}\cdot\nabla\langle c_{A\omega}\rangle^{\omega}=\mathbf{n}_{\gamma\omega}\cdot\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\tilde{c}_{A\gamma}+\mathbf{n}_{\gamma\omega}\cdot\mathcal{D}_{A\gamma}\nabla\langle c_{A\gamma}\rangle^{\gamma},\quad \text{sur } A_{\gamma\omega}\quad (K.8)$$

Et un problème exactement analogue existe pour le soluté B.

Le terme de réaction est obtenue de la manière suivante :



$$\begin{aligned}
& \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} - \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}} \\
&= \mu_{A\omega} \rho_\omega \left( \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{B\omega}}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{B\omega} + K_{B\omega}} - \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}} \right) \quad (\text{K.9}) \\
&= \mu_{A\omega} \rho_\omega \left( \frac{\left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{B\omega} \right) \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega} \right) - \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \langle c_{B\omega} \rangle^\omega \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{B\omega} + K_{B\omega} \right)}{\left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{B\omega} + K_{B\omega} \right) \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega} \right)} \right)
\end{aligned}$$

En considérant l'hypothèse classique

$$\tilde{c}_{A\omega} \ll \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \quad (\text{K.10})$$

$$\tilde{c}_{B\omega} \ll \langle c_{B\omega} \rangle^\omega \quad (\text{K.11})$$

$$\tilde{c}_{A\omega} \tilde{c}_{B\omega} \ll \tilde{c}_{A\omega} \quad (\text{K.12})$$

$$\tilde{c}_{A\omega} \tilde{c}_{B\omega} \ll \tilde{c}_{B\omega} \quad (\text{K.13})$$

il vient

$$\begin{aligned}
& \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} - \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}} \\
&= \mu_{A\omega} \rho_\omega \left( \frac{\tilde{c}_{B\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^\omega K_{A\omega} K_{B\omega} + \tilde{c}_{B\omega} \langle c_{A\omega} \rangle^{\omega 2} K_{B\omega} + \tilde{c}_{A\omega} \langle c_{B\omega} \rangle^\omega K_{A\omega} K_{B\omega} + \tilde{c}_{A\omega} \langle c_{B\omega} \rangle^{\omega 2} K_{A\omega}}{\left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{A\omega} + K_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + \tilde{c}_{B\omega} + K_{B\omega} \right) \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \right) \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega} \right)} \right) \quad (\text{K.14})
\end{aligned}$$

Et finalement

$$\begin{aligned}
& \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{c_{A\omega}}{c_{A\omega} + K_{A\omega}} \frac{c_{B\omega}}{c_{B\omega} + K_{B\omega}} - \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}} \\
&= \mu_{A\omega} \rho_\omega \left( \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega K_{A\omega} \tilde{c}_{A\omega}}{\left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega} \right) \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \right)^2} + \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega K_{B\omega} \tilde{c}_{B\omega}}{\left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega} \right)^2 \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega} \right)} \right) \quad (\text{K.15})
\end{aligned}$$

Le même calcul peut être mené pour calculer le terme de réaction du problème gouvernant les déviations du champs de concentration en soluté B.

En formulant les hypothèses de fermetures du modèle TEM, a savoir

$$\tilde{c}_{A\gamma} = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\gamma} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (\text{K.16})$$

$$\tilde{c}_{A\omega} = \mathbf{b}_{A\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{A\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega + r_{A\omega} \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (\text{K.17})$$

$$\tilde{c}_{B\gamma} = \mathbf{b}_{B\gamma\gamma} \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{B\gamma\omega} \cdot \nabla \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + r_{B\gamma} \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega - K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (\text{K.18})$$

$$\tilde{c}_{B\omega} = \mathbf{b}_{B\omega\gamma} \cdot \nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{b}_{B\omega\omega} \cdot \nabla \langle c_{B\omega} \rangle^\omega + r_{B\omega} \left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega - K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \right) \quad (\text{K.19})$$

Et en les injectants dans les équations en déviations présentés ci-dessus (équations (K.3) à (K.8)), nous obtenons les problèmes de fermetures suivants :

*Soluté A*

*Problème de fermeture vectorielle I :*

*( $\gamma$ -phase)*

$$Pe_A \left( \tilde{\mathbf{v}}_\gamma + \mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \right) = \nabla^2 \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\gamma\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA \quad (\text{K.20})$$

*( $\omega$ -phase)*

$$\begin{aligned} & \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} - Da_A \left( \frac{K'_{eff,B} {}^{-1} \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}}{\left( K'_{eff,A} {}^{-1} + 1 \right)^2 \left( K'_{eff,B} {}^{-1} + 1 \right)} + G_{AB\gamma} \frac{K'_{eff,A} {}^{-1} \mathbf{b}'_{B\omega\gamma}}{\left( K'_{eff,B} {}^{-1} + 1 \right)^2 \left( K'_{eff,A} {}^{-1} + 1 \right)} \right) \\ & = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} dA \end{aligned} \quad (\text{K.21})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa}, \quad (\text{K.22})$$

$$\text{C.L.2} \quad -\mathbf{n}_{\gamma\kappa} = \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa} \quad (\text{K.23})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{K.24})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{K.25})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}'_{A\omega\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{K.26})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{K.27})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{K.28})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}'_{A\omega\gamma} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{K.29})$$

*Problème de fermeture vectorielle II :*

*( $\gamma$ -phase)*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}) = \nabla^2 \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} dA \quad (\text{K.30})$$

*( $\omega$ -phase)*

$$\begin{aligned} & \nabla^2 \mathbf{b}_{A\omega\omega} - Da_A \left( \frac{K'_{eff,B} {}^{-1} \mathbf{b}'_{A\omega\omega}}{(K'_{eff,A} {}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,B} {}^{-1} + 1)} + G_{AB\omega} \frac{K'_{eff,A} {}^{-1} \mathbf{b}'_{B\omega\omega}}{(K'_{eff,B} {}^{-1} + 1)^2 (K'_{eff,A} {}^{-1} + 1)} \right) \\ &= -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA - \frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\kappa}(t)} \mathbf{n}_{\kappa\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA \end{aligned} \quad (\text{K.31})$$

$$\text{C.L.1} \quad -\mathbf{n}_{\omega\kappa} = \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega}, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{K.32})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{K.33})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{D}_\Gamma + \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{K.34})$$

$$\text{C.L.4} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega} = \mathbf{b}'_{A\gamma\omega}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{K.35})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\omega\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{K.36})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r}) = \mathbf{b}_{A\gamma\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i = 1, 2, 3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{K.37})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{K.38})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle \mathbf{b}_{A\omega\omega} \rangle^\omega = 0 \quad (\text{K.39})$$

*Problème de fermeture scalaire*

*Phase  $\gamma$*

$$Pe_A (\mathbf{v}_\gamma \cdot \nabla r'_{A\gamma}) = \nabla^2 r'_{A\gamma} - \frac{1}{V_\gamma} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma} dA \quad (\text{K.40})$$

Phase  $\omega$

$$\begin{aligned} \nabla^2 s_{A\omega} - Da_A \left( \frac{K'_{eff,B} (s_{A\omega\omega} - 1)}{(K'_{eff,A} + 1)^2 (K'_{eff,B} + 1)} + H_{AB} \frac{K'_{eff,A} (s_{B\omega\omega} - 1)}{(K'_{eff,B} + 1)^2 (K'_{eff,A} + 1)} \right) \\ = -\frac{1}{V_\omega} \int_{A_{\omega\gamma}(t)} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla s_{A\omega} dA \end{aligned} \quad (\text{K.41})$$

$$\text{C.L.1} \quad \mathbf{n}_{\omega\kappa} \nabla s_{A\omega} = 0, \quad \text{sur } A_{\omega\kappa} \quad (\text{K.42})$$

$$\text{C.L.2} \quad \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \nabla r'_{A\gamma} = 0, \quad \text{sur } A_{\gamma\kappa}, \quad (\text{K.43})$$

$$\text{C.L.3} \quad \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathbf{D}_\Gamma \nabla s_{A\omega} = \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \nabla r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{K.44})$$

$$\text{C.L.4} \quad s_{A\omega} = r'_{A\gamma}, \quad \text{sur } A_{\gamma\omega} \quad (\text{K.45})$$

$$\text{C.L.5 (Périodicité)} \quad s_{A\omega}(\mathbf{r}) = s_{A\omega}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\omega e} \quad (\text{K.46})$$

$$\text{C.L.6 (Périodicité)} \quad r'_{A\gamma}(\mathbf{r}) = r'_{A\gamma}(\mathbf{r} + \mathbf{l}_i), \quad i=1,2,3, \quad \text{sur } A_{\gamma e} \quad (\text{K.47})$$

$$\text{C.L.7} \quad \langle r'_{A\gamma} \rangle^\gamma = 0 \quad (\text{K.48})$$

$$\text{C.L.8} \quad \langle s_{A\omega} \rangle^\omega = 1 \quad (\text{K.49})$$

avec

$$\mathbf{b}'_{A\gamma\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}}{l_\gamma} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\omega\omega} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\omega}}{l_\gamma} \quad (\text{K.50})$$

$$\mathbf{b}'_{A\omega\gamma} = \frac{\mathbf{b}_{A\omega\gamma}}{l_\gamma K_{A,eq}} \quad ; \quad \mathbf{b}'_{A\gamma\omega} = \frac{K_{A,eq} \mathbf{b}_{A\gamma\omega}}{l_\gamma} \quad (\text{K.51})$$

$$s_{A\omega} = 1 + r_{A\omega} \quad ; \quad r'_{A\gamma} = K_{A,eq} r_{A\gamma} \quad (\text{K.52})$$

$$K'_{eff,A} = \frac{K_{A\omega}}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega} \quad ; \quad K'_{eff,B} = \frac{K_{B\omega}}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega} \quad (\text{K.53})$$

$$Da_A = \frac{\mu_{A\omega} \rho_\omega l_\omega^2}{\mathcal{D}_{A\omega} K_{A\omega}} \quad ; \quad \mathbf{D}_\Gamma = \frac{K_{Aeq} \mathbf{D}_{A\omega}}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (\text{K.54})$$

$$G_{AB\gamma} = \frac{\nabla \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma K_{Beq} K_{A\omega}}{\nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma K_{Aeq} K_{B\omega}} \quad (\text{K.55})$$

$$G_{AB\omega} = \frac{\nabla \langle c_{B\omega} \rangle^\omega K_{A\omega}}{\nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega K_{B\omega}} \quad (\text{K.56})$$

$$H_{AB} = \frac{\left( \langle c_{B\omega} \rangle^\omega - K_{Beq} \langle c_{B\gamma} \rangle^\gamma \right) K_{A\omega}}{\left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) K_{B\omega}} \quad (\text{K.57})$$

$$\tilde{\mathbf{v}}'_\gamma = \frac{\tilde{\mathbf{v}}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad ; \quad \mathbf{v}'_\gamma = \frac{\mathbf{v}_\gamma}{\|\mathbf{v}_\gamma\|} \quad (\text{K.58})$$

$$Pe = \frac{\|\mathbf{v}_\gamma\| \ell_\gamma}{\mathcal{D}_{A\gamma}} \quad (\text{K.59})$$

où on utilise la notation :

$$\|\mathbf{v}_\gamma\| = \left( \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \cdot \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{K.60})$$

Les problèmes de fermetures associées au soluté B sont exactement analogues.

En injectant les hypothèses de fermetures dans les équations de transport macroscopique ouvertes (32) et (33), nous obtenons les problèmes de transport macroscopique suivants :

*Équation de transport macroscopique fermée pour la phase biofilm  $\omega$  :*

$$\begin{aligned} & \varepsilon_\omega \frac{\partial \langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\partial t} + \varepsilon_\omega \mu_{A\omega} \rho_\omega \frac{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{A\omega} \rangle^\omega + K_{A\omega}} \frac{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega}{\langle c_{B\omega} \rangle^\omega + K_{B\omega}} \\ & = \nabla \cdot \left( \mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) + \nabla \cdot \left( \mathbf{D}_{A\omega\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \right) - \alpha_A^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \\ & + \nabla \cdot \left( \mathbf{d}_{A\omega}^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \right) - \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma + \mathbf{u}_\omega^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \end{aligned} \quad (\text{K.61})$$

Équation de transport macroscopique fermée pour la phase fluide  $\gamma$  :

$$\begin{aligned} \varepsilon_\gamma \frac{\partial \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma}{\partial t} + \nabla \left( \varepsilon_\gamma \langle \mathbf{v}_\gamma \rangle^\gamma \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) &= \nabla \left( \mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) + \nabla \left( \mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \right) \\ &+ \nabla \cdot \left( \mathbf{d}_{A\gamma}^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \right) + \mathbf{u}_{A\gamma}^* \cdot \nabla \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma - \mathbf{u}_{A\omega}^* \cdot \nabla \langle c_{A\omega} \rangle^\omega \\ &+ \alpha_A^* \left( \langle c_{A\omega} \rangle^\omega - K_{Aeq} \langle c_{A\gamma} \rangle^\gamma \right) \end{aligned} \quad (\text{K.62})$$

avec

$$\mathbf{D}_{A\gamma\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\gamma} \rangle + \varepsilon_\gamma \mathcal{D}_{A\gamma} \mathbf{I} \quad (\text{K.63})$$

$$\mathbf{D}_{A\gamma\omega}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \mathbf{b}_{A\gamma\omega} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma \mathbf{b}_{A\gamma\omega} \rangle \quad (\text{K.64})$$

$$\mathbf{d}_{A\gamma}^* = \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} r_{A\gamma} dA + \frac{\mathcal{D}_{A\gamma}}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} r_{A\gamma} dA - \langle \tilde{\mathbf{v}}_\gamma r_{A\gamma} \rangle \quad (\text{K.65})$$

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_{A\gamma}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\gamma}) dA \right) - \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla \varepsilon_\gamma \end{aligned} \quad (\text{K.66})$$

$$\begin{aligned} \alpha_A^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (r_{A\gamma}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (r_{A\gamma}) dA \\ &= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (r_{A\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (r_{A\omega}) dA \right) \end{aligned} \quad (\text{K.67})$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\gamma}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\gamma} dA \quad (\text{K.68})$$

$$\mathbf{D}_{A\omega\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \mathbf{b}_{A\omega\omega} dA + \varepsilon_\omega \mathbf{D}_{A\omega} \quad (\text{K.69})$$

$$\mathbf{d}_{A\omega}^* = \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA + \frac{\mathbf{D}_{A\omega}}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} r_{A\omega} dA \quad (\text{K.70})$$

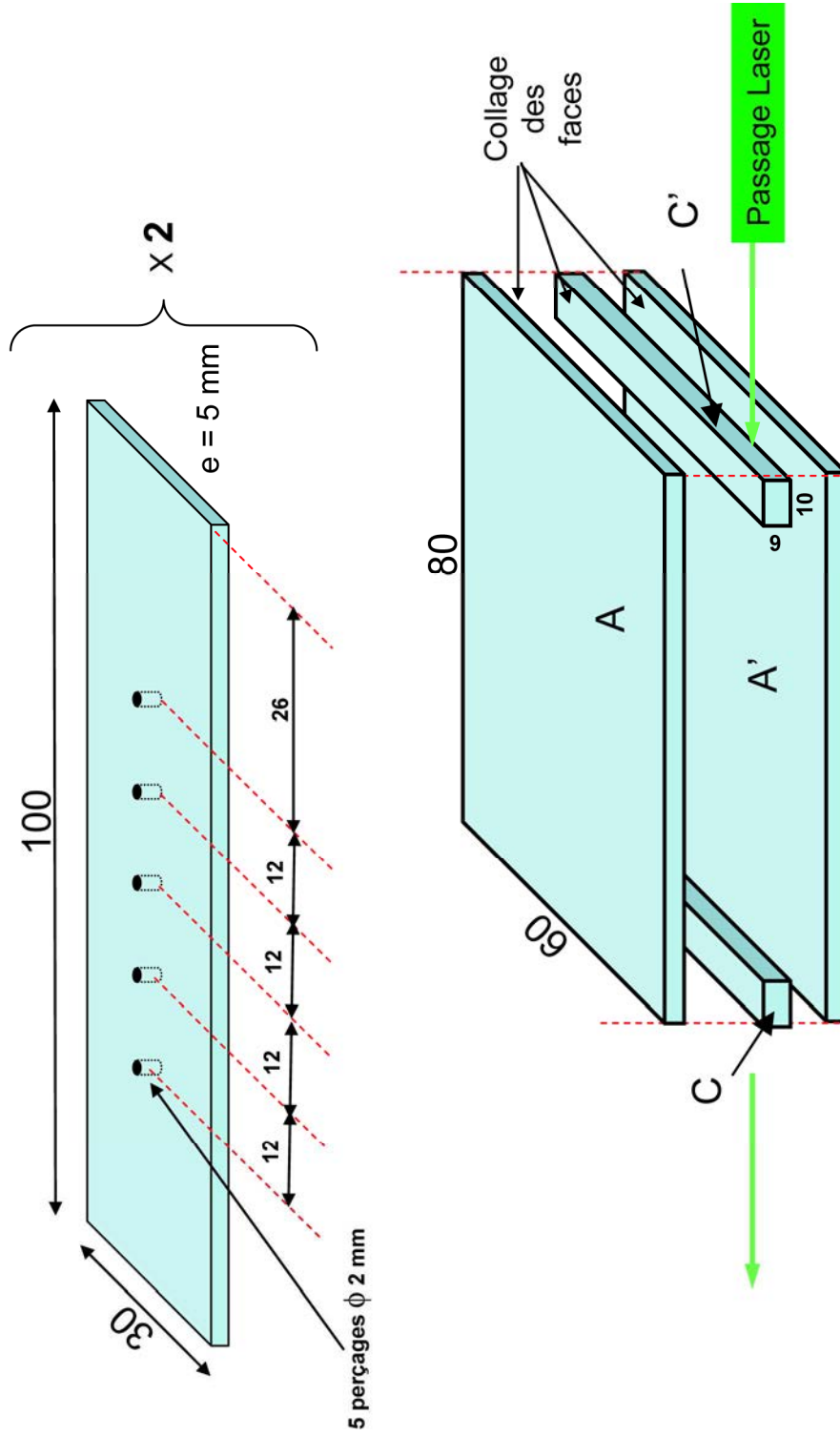
$$\begin{aligned}
\mathbf{u}_{A\omega}^* &= \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\omega\gamma} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\kappa}} \mathbf{n}_{\omega\kappa} \cdot \mathbf{D}_{A\omega} \nabla (\mathbf{b}_{A\omega\omega}) dA \\
&= - \left( \frac{1}{V} \int_{A_{\omega\gamma}} \mathbf{n}_{\gamma\omega} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA + \frac{1}{V} \int_{A_{\gamma\kappa}} \mathbf{n}_{\gamma\kappa} \cdot \mathcal{D}_{A\gamma} \nabla (\mathbf{b}_{A\gamma\omega}) dA \right) - \nabla \varepsilon_{\omega} \cdot \mathbf{D}_{A\omega}
\end{aligned} \tag{K.71}$$

Et un système d'équations de transport macroscopique similaire est obtenue pour le soluté B.





# Annexe L : Plan de la cellule test (schéma d'Éric Lefèvre).

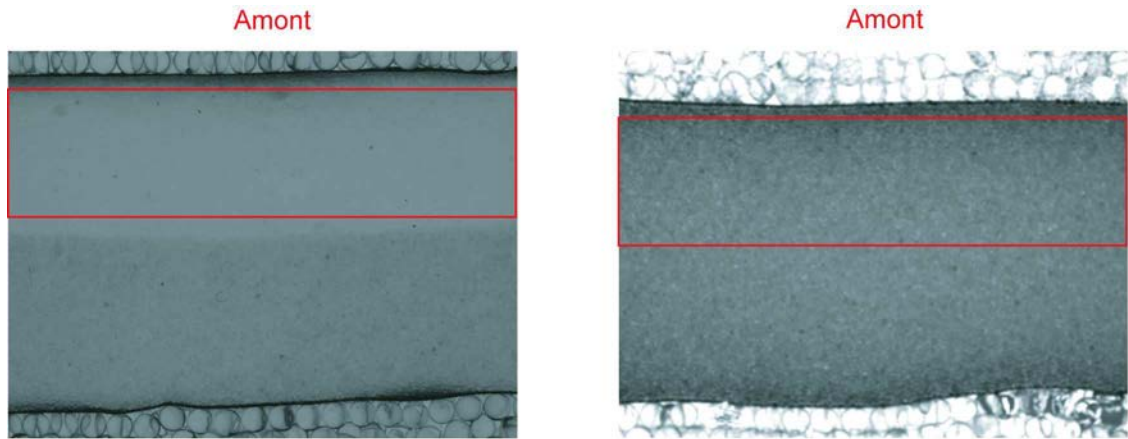


Plaques A et A' = 80 x 60 mm ;  $e = 2 \text{ mm}$   
 Barreaux C et C' = 10 x 6 mm ; L = 60 mm

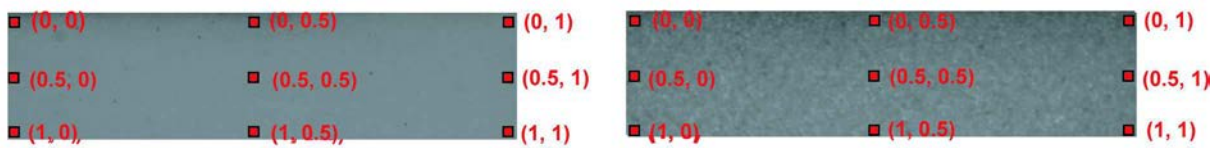


## **Annexe M : Traitement des données recueillies au cours des essais de traçage stérile effectués dans un milieu de Nafion et dans un milieu de bille de verre Retsch**

Le but de cette série d'essai est de déterminer lequel des deux milieux, Nafion ou billes de verre Retsch, est le plus adapté pour observer l'évolution d'un champ de concentration par mesure d'absorption lumineuse. Les essais ont été effectués dans une cellule d'écoulement de  $0,6 \times 6 \times 6$  cm<sup>3</sup> dont le tiers central était occupé par le milieu considéré (Nafion – environ 350 microns de diamètre moyen- ou Retsch –environ 375 microns de diamètre moyen- la porosité étant dans les deux cas prise égale à 0,4764 –cas d'un réseau cubique jointif de sphère-), alors que les tiers supérieur et inférieur était occupé par des billes de verre de 2 mm de diamètre. Dans la cellule, s'écoule perpendiculairement aux bandes de milieux de l'eau distillée à un débit nominal de 1.02 cm<sup>3</sup>/s, ce qui conduit à un temps de séjour de l'ordre de 10 min. On injecte un créneau de solution de Rose Bengale B à  $10^{-5}$  mol/l durant 11 mn au cours desquelles on prend une image du milieu toutes les 10 secondes. On continue la prise d'images durant 33 mn après la fin du créneau. On a ainsi 264 images par essai permettant l'observation du passage du créneau de concentration dans le milieu considéré. Trois types de traitement ont été effectués sur les images recueillies : l'établissement de courbes de percée ponctuelles, l'établissement de courbes de percées moyennés selon l'axe perpendiculaire à l'écoulement, et le calcul des évolutions temporelles des moments d'ordre 0, 1 et 2 associées au champs de concentration observés (moments qui caractérisent respectivement la masse de soluté présente dans le milieu, la vitesse de déplacement du soluté et la dispersion du soluté au cours de son transport). La Figure M1 présente le mode de relevé de ces différentes grandeurs.



Rognage des images effectués pour le traitement des données



Nomenclature des points de relevé des courbes de percée ponctuelles

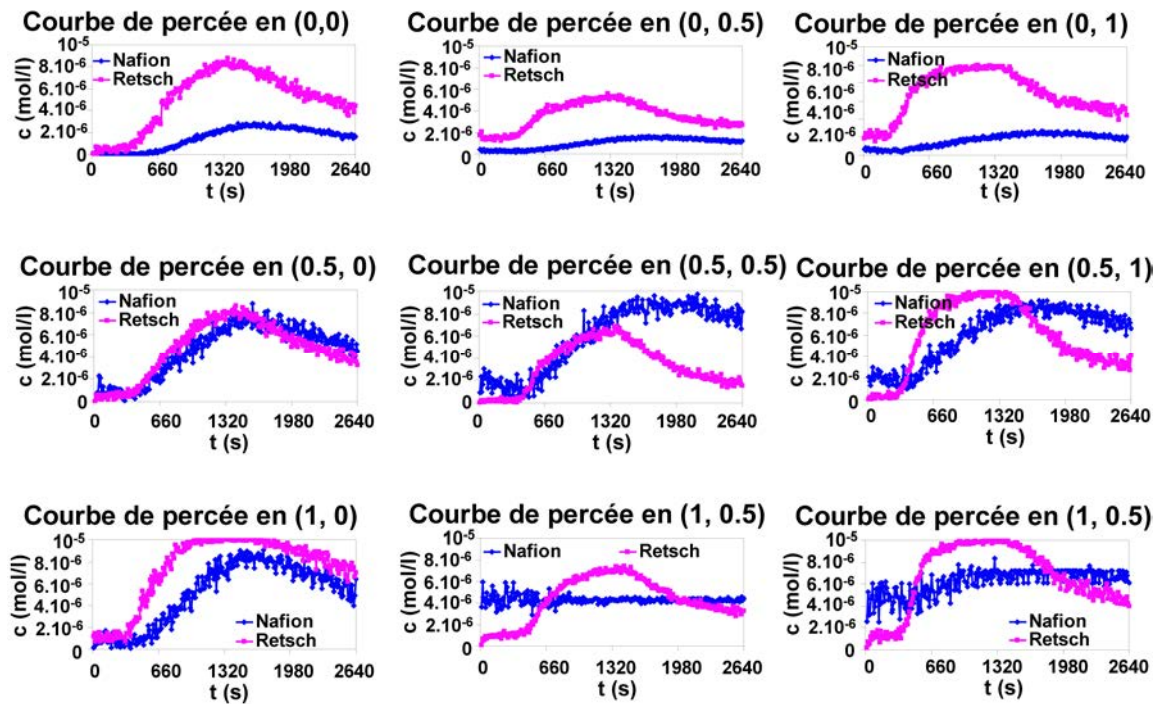


Nomenclature des lignes de relevé des courbes de percée moyennées

**Figure M1 : nomenclature des points de relevés pour le traitement des données**

Les différentes grandeurs représentées ont été calculées par conversion des champs de niveaux de gris en champs de concentration à l'aide d'une calibration pixel par pixel. 3 points de concentration ont été utilisés pour cette calibration : 0 mol/l,  $5 \cdot 10^{-6}$  mol/l et  $10^{-5}$  mol/l.

Ci-dessous sont présentées les différentes courbes de percées ponctuelles.



**Figure M2 : Courbes de percées ponctuelles obtenues par le traitement des données des essais de traçage – test.**

On constate que les courbes de percées associées au milieu Retsch sont plus stables et plus caractéristiques d'un phénomène de transport classique. Cela est probablement dû au phénomène d'adsorption du Rose Bengal sur le Nafion, qui fausse à la fois la calibration et l'observation du transport. La présence d'impuretés adsorbées par le Nafion (déjà maintes fois utilisé dans des expériences préalables) peut aussi avoir joué. Ci-dessous sont présentées les différentes courbes de percées moyennées.

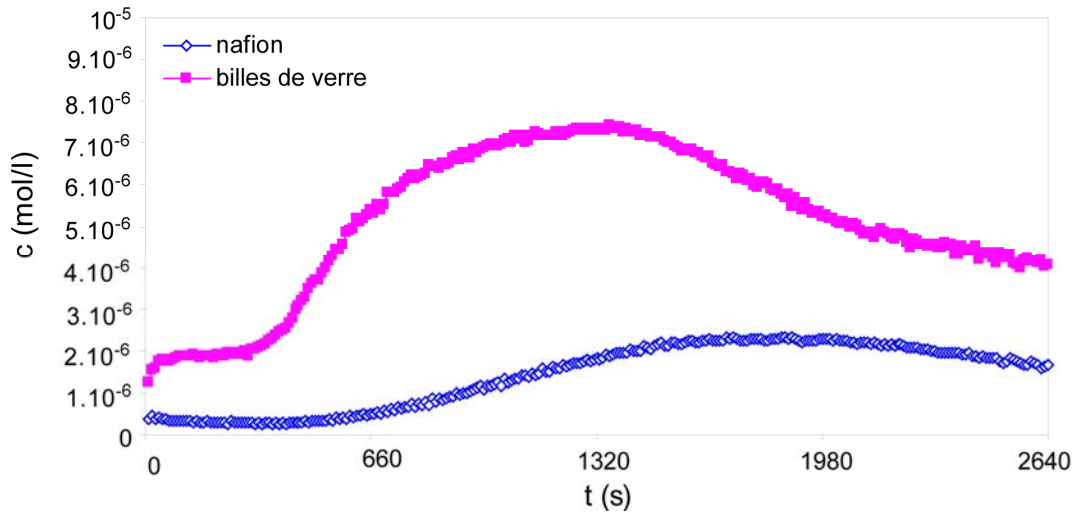


Figure M3 : Courbes de percée moyennée en entrée

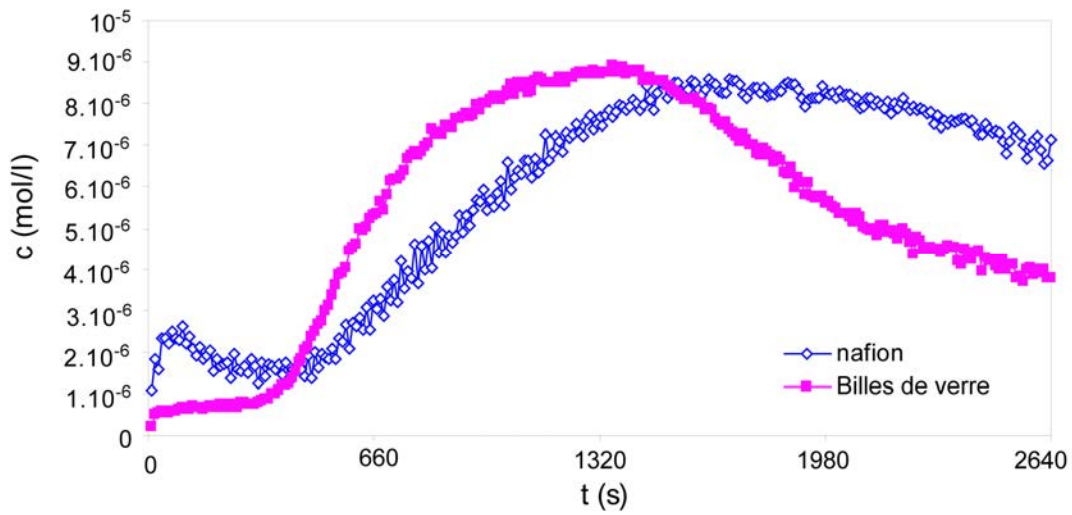


Figure M4 : Courbes de percée moyennée au milieu

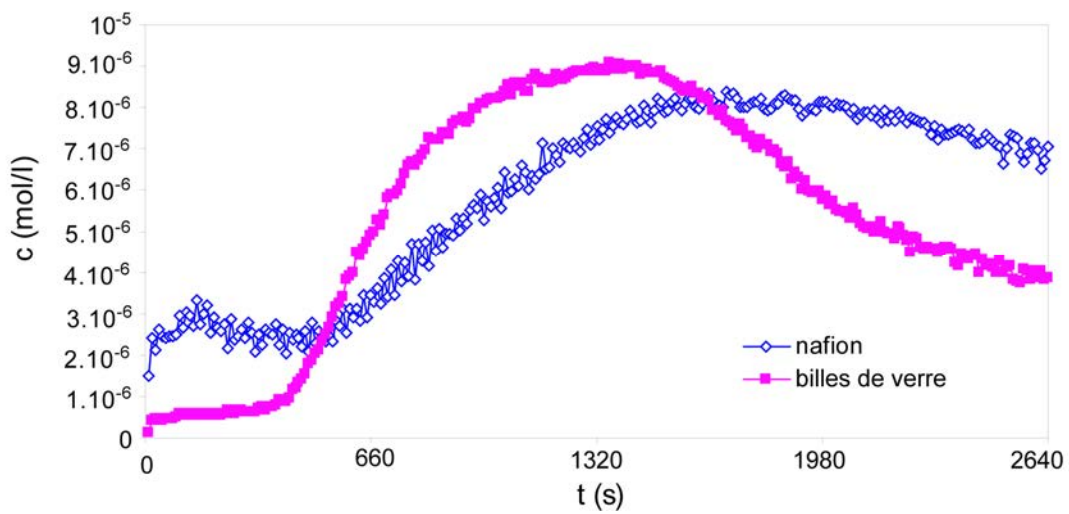
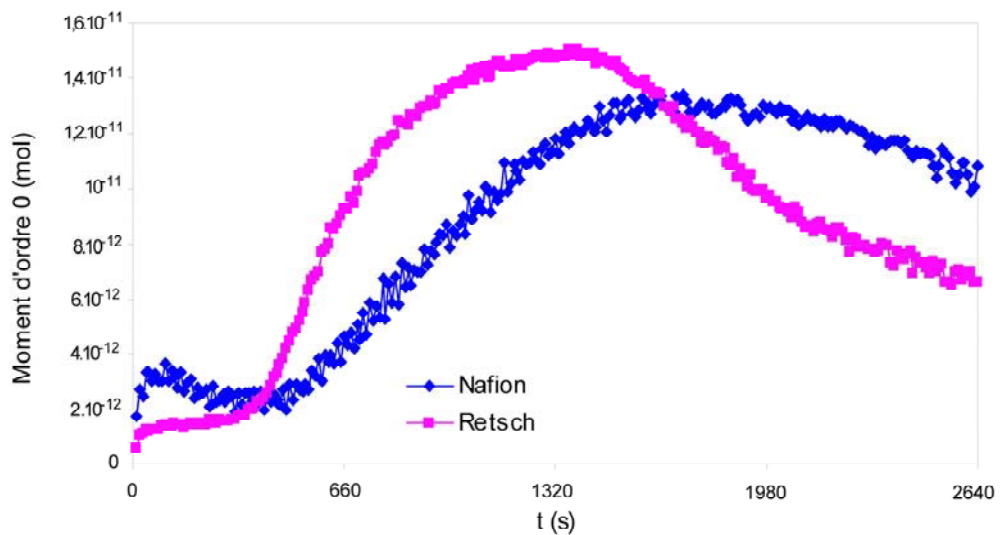


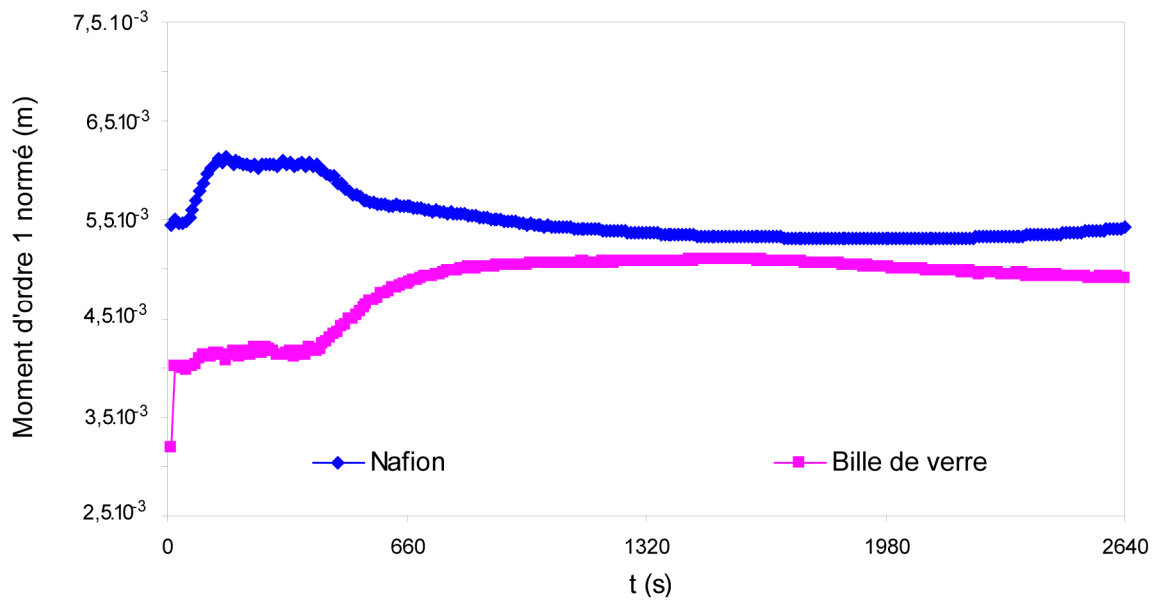
Figure M5 : Courbes de percée moyennée en sortie

Les courbes de percées moyennées sont plus lissées que les courbes ponctuelles, ce qui est normale vu que les fluctuations sont atténuées par la prise de moyenne. On voit néanmoins encore de grande différence entre courbes de percées moyennées dans le Nafion et courbes de percées dans le milieu Retsch ; dans le Nafion, on observe un affaissement du pic et un étalement plus important de la queue de la courbe, caractéristiques des phénomènes de transport avec adsorption.

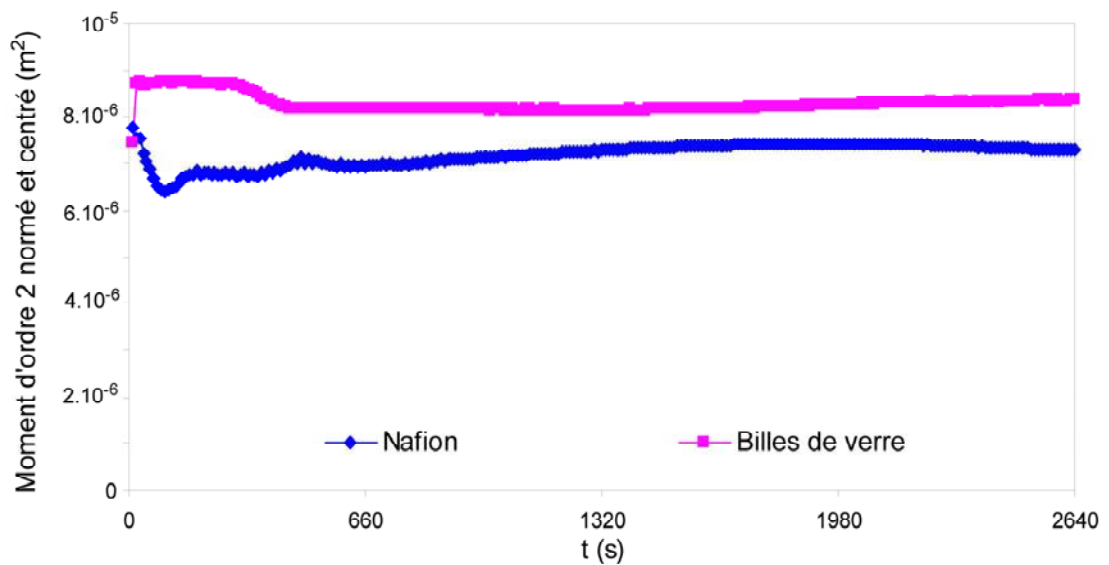
Ci-dessous sont présentées les différentes évolutions temporelles des moments spatiaux d'ordre 0,1 et 2 associées aux champs de concentration.



**Figure M6 : moment spatiaux d'ordre 0.**



**Figure M7 : moment spatiaux d'ordre 1 normé**



**Figure M8 : moment spatiaux d'ordre 2 normé et centré**

La courbe des moments d'ordres 0 appelle les mêmes réflexions que celles des courbes de percées moyennées. L'interprétation des moments d'ordre 1 normés en terme de vitesse du front et des moments d'ordre 2 normés et centrés en terme de dispersion est rendue impossible du fait de la forme du signal d'entrée, très éloignés d'un Dirac ou d'un échelon (il y a une



couche de bille grossière à traverser avant d'arriver à la zone de mesure). Néanmoins, on constate qu'il y a peu de différence entre les deux milieux du point de vue de leur moments d'ordre 1 et 2.

Au final, il semble que le milieu de billes de verre Retsch est mieux adapté à la caractérisation du transport d'un traceur par absorption lumineuse, compte tenu de la forte réactivité du Nafion.



## **Annexe N : Préparation des milieux nutritifs utilisés pour les essais de croissance bactérienne**

### **LB aqueux :**

Dans de l'eau distillée, ajouter 10g/l de tryptone, 5g/l d'extrait de levure, 10 g/l de NaCl.

Autoclaver avant utilisation.

### **LB gélosé :**

Comme le LB aqueux, avec adjonction de 15 g/l d'agar avant autoclavage. Couler juste après autoclavage, ou réchauffer avant coulage.

### **LML+F aqueux :**

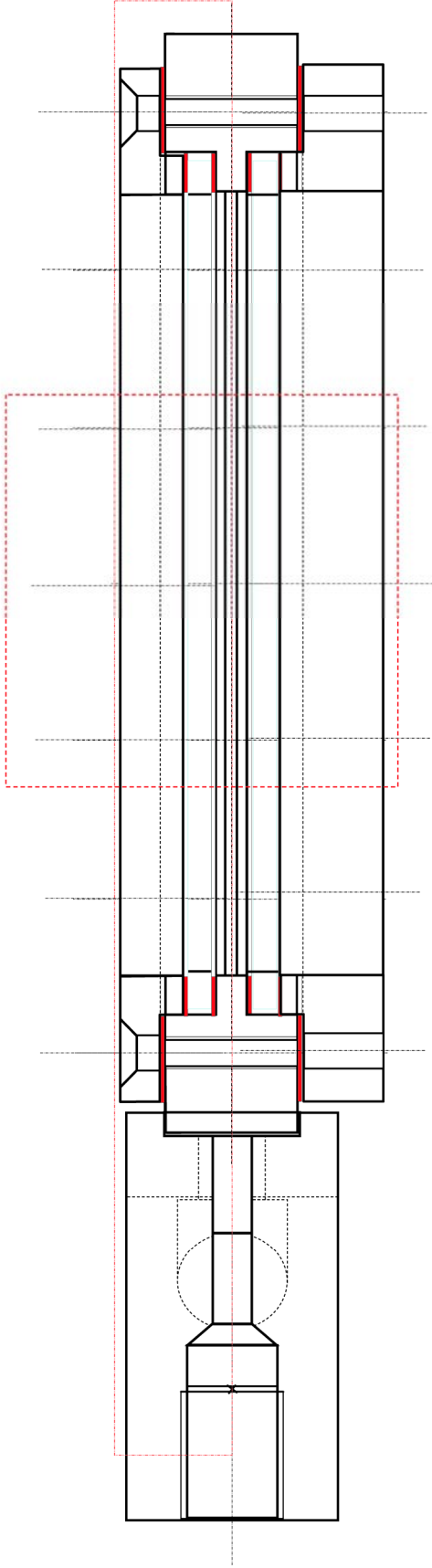
Dans de l'eau distillée, ajouter 0,2 g/l d'extrait de levure, 0,1 g/l de peptone, 10 mM/l de tampon HEPES, 5 mM/l de lactate, 20 mM/l de fumarate. Ajuster le pH à 7,4 et autoclaver.

On peut consulter Anceaux (2008) pour plus de détails sur ces milieux nutritifs.




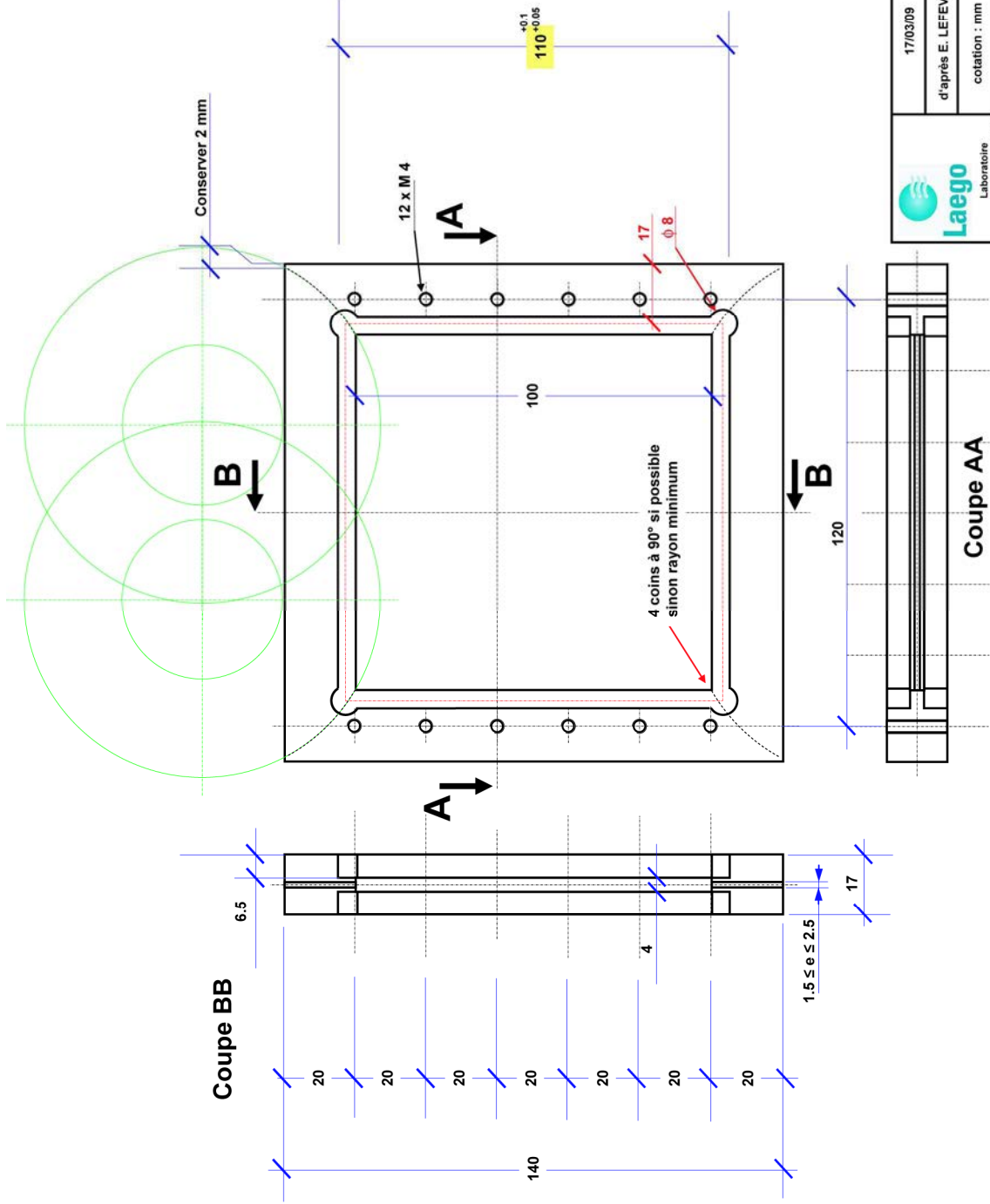
**Annexe O : Dessins techniques de la cellule d'écoulement retenue pour les essais de transport non réactif en milieu poreux incluant un biofilm (réalisés par Éric Lefèvre)**


Objectif AZ100

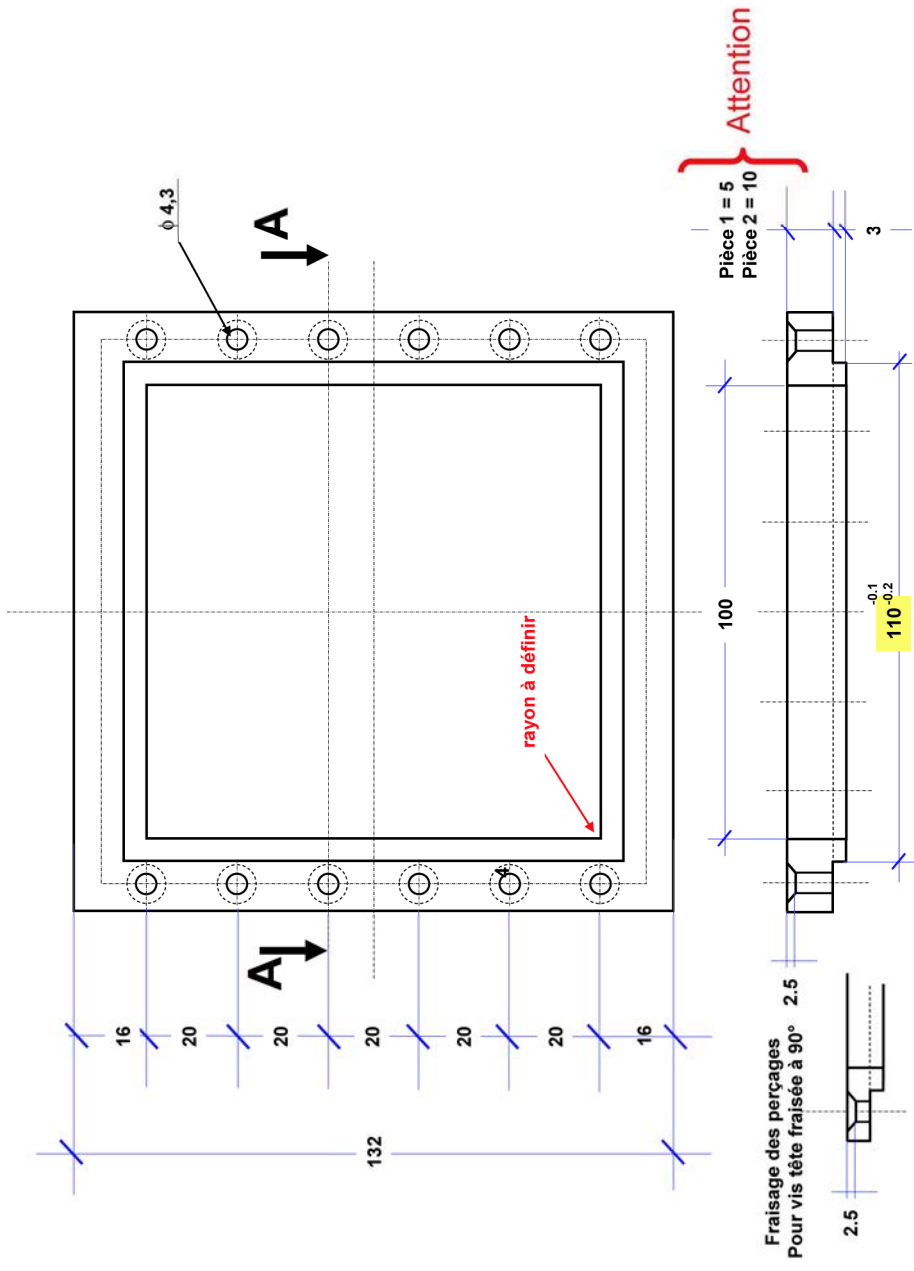


10 cm

 <b>Laego</b> Laboratoire Environnement Géomécanique & Ouvrages	17/03/09	Cellule de culture
	d'après E. LEFEVRE	LG.EL.INT.TEC.PLCO.09.0089
Echelle : voir ci contre		Vue en coupe cellule montée



 Laboratoire Environnement Géomécanique & Ouvrages	17/03/09	Cellule de culture
	d'après E. LEFEVRE	LG.EL.INT.TEC.PLCO.09.0089
	cotation : mm	Corps
	Inox	Nbre d'exemplaires : 1



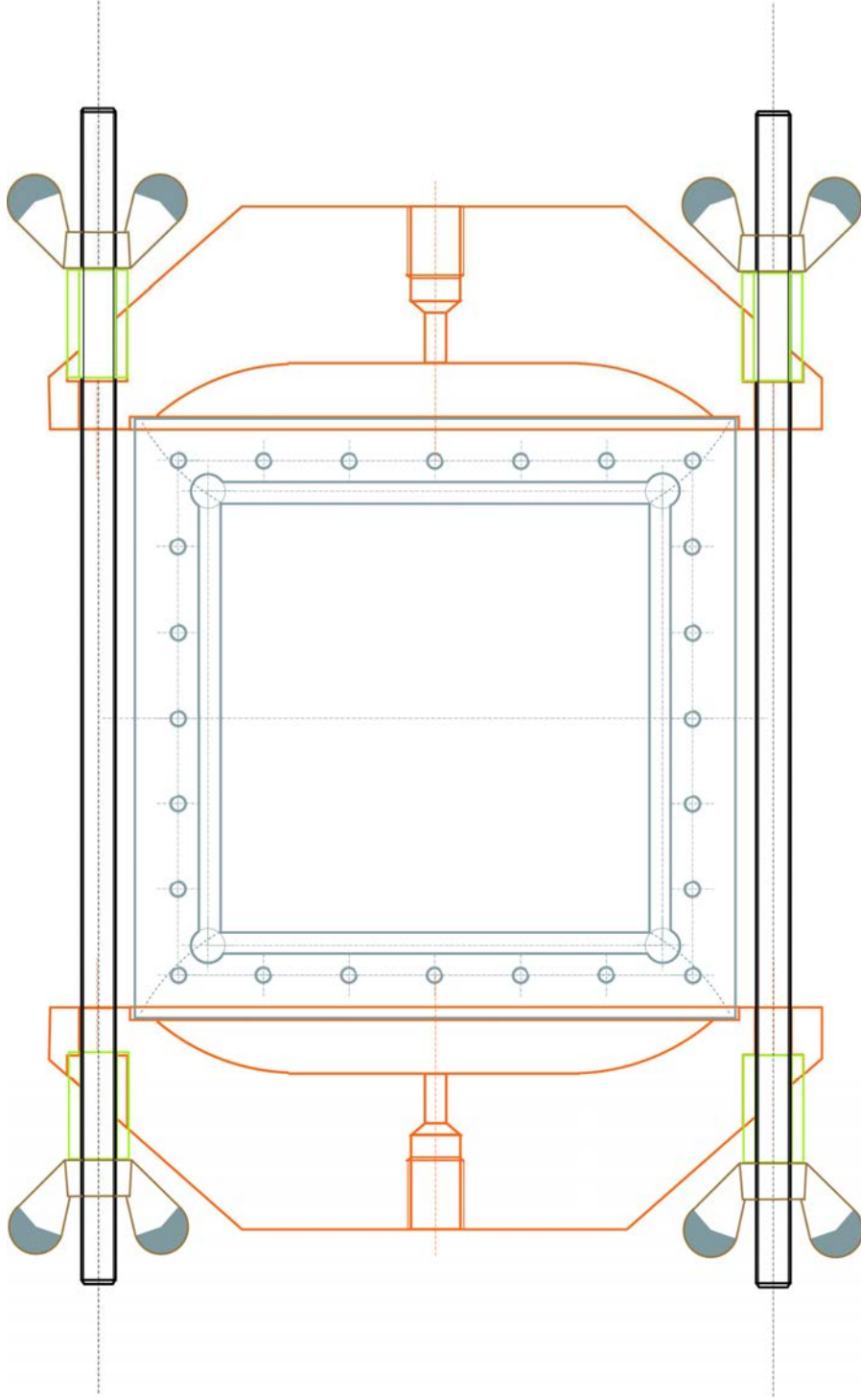
Coupe AA

Attention : les deux pièces sont différentes par leur épaisseur


	17/03/09	Cellule de culture
	d'après E. LEFEVRE	LG.EL.INT.TEC.PLCO.09.0089
	Cotation en mm	Cadre de serrage
	Inox	Nbre d'exemplaires : 2







10 cm

 <b>Laego</b> Laboratoire Environnement Géomécanique & Ouvrages	17/03/09	Cellule de culture
	d'après E. LEFEVRE	LG.EL.INT.TEC.PLCO.09.0089
Echelle : voir ci contre		Vue montée
Inox		





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

oOo

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Madame Jolanta LEWANDOWSKA, Professeur, Université de Montpellier II, LMGC, Montpellier**

**Monsieur Philippe SCHMITZ, Professeur, INSA, Toulouse**

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

**Monsieur ORGOGOZO Laurent**

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

**« Transport de soluté biologiquement actif en milieu poreux incluant une phase biofilm :  
de la modélisation numérique aux perspectives expérimentales »**

en vue de l'obtention du titre de :

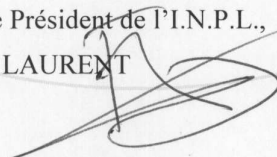
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Mécanique – Génie Civil** »

Fait à Vandoeuvre, le 23 novembre 2009

Le Président de l'I.N.P.L.,

F. LAURENT



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

**Résumé :** Modéliser les phénomènes de transport de solutés organiques en milieux poreux colonisés par des populations bactériennes se développant sous forme de biofilms est un domaine de recherche important pour un certain nombre d'applications environnementales, comme par exemple pour les méthodes de bioremédiation des sols et des eaux contaminés par des polluants organiques (biosparging, bio-barrières ...). Les biofilms, qui sont composés principalement de bactéries et de substances polymériques extracellulaires, peuvent se développer sur les parois de grains d'un milieu poreux. Le métabolisme bactérien dégrade les solutés organiques et contribue ainsi à la diminution de la contamination. Le transport bio-réactif de composés organiques dans un milieu poreux incluant un biofilm est un problème fortement multi-échelle (depuis l'échelle de la bactérie jusqu'à l'échelle de l'aquifère) et fortement couplé (avec des phénomènes hydrodynamiques, physico-chimiques et biochimiques). Le soluté organique est transporté par convection et diffusion dans la phase fluide et diffuse dans la phase biofilm, où il est dégradé par le métabolisme bactérien. Le but de ce travail est de développer des modèles de transport bio-réactif définis à l'échelle de Darcy à partir des données disponibles à l'échelle du pore, en adoptant la méthode de changement d'échelle dite de prise de moyenne volumique. Dans le cas général, une telle approche conduit à un modèle macroscopique de transport à deux équations couplées (une équation par phase de transport). En considérant les relations entre les concentrations moyennées dans chaque phase, plusieurs régimes de transport permettant de dégénérer ce modèle en modèle à une seule équation peuvent être identifiés. L'hypothèse d'équilibre de masse local conduit à un tel modèle simplifié. En condition de non-équilibre, deux cas limites permettent également de développer des modèles de transport à une équation : le cas où le taux de biodégradation est contrôlé par le transfert de masse externe et le cas où il est contrôlé par la cinétique de réaction. L'utilisation de ces quatre modèles implique la résolution numérique de problèmes de fermeture, afin d'évaluer les paramètres macroscopiques de transports (tenseur de dispersion, taux de dégradation ...). Des calculs de coefficients effectifs ont été effectués dans différentes conditions de transport afin d'étudier leur comportement. Les résultats de ces modèles ont été comparés avec ceux obtenus par simulations directes à l'échelle microscopique pour une géométrie de pore bidimensionnelle stratifiée. À partir de ces comparaisons, les domaines de validité de chaque modèle ont été identifiés en termes de conditions hydrodynamique et biochimique de transport. (i.e. le nombre de Péclet et le nombre de Damköhler). Le développement d'un modèle expérimental de transport en milieux poreux incluant un biofilm a également été entamé, afin d'une part d'effectuer une validation expérimentale des modèles numériques préalablement développés et d'autre part de fournir un outil supplémentaire pour l'étude des phénomènes considérés.

**Mots-clé :** Milieu poreux, Transport de soluté, Biofilm, Changement d'échelle, Cellule d'écoulement.

**Abstract :** Modeling transport in porous media of organic chemical solute in presence of a bacterial population growing as biofilms is an important area of research for environmental applications, for example for remediation of groundwater contaminated by organic pollutants (biosparging, bio-barriers ...). Biofilms, which are composed of bacteria and extracellular organic substances, grow on the pore walls of the porous medium. Bacteria degrade the organic solute by their metabolism and thus may contribute to pollution decrease. Bio-reactive transport of an organic solute in a porous medium including a biofilm phase is a strongly multi-scale (from the bacteria scale to the heterogeneity scale of the aquifer) and coupled (involving hydrodynamic, physicochemical and biochemical phenomena) process. The organic solute is transported by convection and diffusion in the fluid phase and diffuses into the biofilm phase, where it is degraded by bacterial metabolism. The goal of this work is to develop macroscopic models of bio-reactive transport at the Darcy-scale through volume averaging based on the data available at pore-scale. In the general case, the macroscopic system obtained by averaging pore-scale equations is a two coupled equations system (one equation for each phase), called two-equation model. By considering the relation between averaged concentration in the fluid phase and averaged concentration in the biofilm phase, several regimes of transport can be found which allow simplifying this system into a one equation system. The local mass equilibrium assumption leads to such a simplified model. When an equilibrium relationship between phases cannot be considered, a one equation model may though be developed if the biodegradation rate is limited by external mass transfer or by the kinetics of bacterial metabolism. The use of these models implies the numerical solving of closure problems, in order to set up the values of the macroscopic transport parameters (dispersion tensor, interfacial flux ...). Computations of these effective coefficients have been performed in different situations of mass transport in porous medium in order to study their behaviour. The results of these models have then been compared with direct simulations performed on a simplified geometry representative of a two-dimensional porous medium including a biofilm phase. Based on these comparisons, the validity domain of this model has been identified in terms of hydrodynamic and biochemical conditions of transport (i.e. the Péclet number and the Damköhler number). The set up of an experimental model of transport in a porous media including a biofilm phase has also been started, in order to make experimental validations of the previously developed numerical models and to build up an additional tool to study the considered phenomena.

**Keywords:** Porous medium, Solute transport, Biofilm, Upscaling, Flow cell.