HAL
open science

Étude numérique de la croissance microbienne en milieu poreux

Marbe Benioug

To cite this version:

Marbe Benioug. Étude numérique de la croissance microbienne en milieu poreux. Autre. Université de Lorraine, 2015. Français. NNT : 2015LORR0104 . tel-01751799

HAL Id: tel-01751799

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01751799v1

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.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

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

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

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

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

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

ÉTUDE NUMÉRIQUE DE LA CROISSANCE MICROBIENNE EN MILIEU POREUX

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 09 Septembre 2015

pour l'obtention du

Doctorat de l'Université de Lorraine

(spécialité Mécanique - Génie civil)

par

BENIOUG Marbe

Composition du jury

Rapporteurs :	M. Auradou Harold	Laboratoire FAST
	M. Huberson Serge	Institut Pprime
Examinateur :	M. Davit Yohan	IMFT
Invité :	M. Talon Laurent	Laboratoire FAST
Encadrants :	M. Buès Michel Antoine	Université de Lorraine
	M. Golfier Fabrice	Université de Lorraine
	M. Oltéan Constantin	Université de Lorraine

Á mon grand frère Dr Mohamed Ould Douh . . .

Remerciements

Je voudrais tout d'abord exprimer ma profonde gratitude à Michel Antoine Buès, Fabrice Golfier et Constantin Oltéan, 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. Je vous remercie d'avoir cru en mes capacités, pour le temps et la patience que vous m'avez accordés tout au long de ces années en me fournissant d'excellentes conditions logistiques. Je garderai dans mon cœur votre générosité, votre compréhension et votre efficacité. Pour tout ce que vous m'avez donné, je vous remercie très sincèrement.

Je tiens à remercier Fabrice Golfier d'avoir bien assuré la direction et l'encadrement de mes travaux de thèse. Merci pour votre gentillesse, votre patience et vos précieux conseils. J'ai beaucoup apprécié travailler à vos côtés tant sur le plan scientifique que sur le plan humain. Je garde toujours beaucoup de plaisir à discuter avec vous et à bénéficier de vos conseils.

Je remercie Auradou Harold et Huberson Serge d'avoir accepté de rapporter cette thèse. Vos remarques pertinentes et vos conseils précieux vont beaucoup m'aider à améliorer la qualité de ce travail. Soyez assurés, chers monsieur, de mon estime et de ma profonde gratitude.

Mes sincères remerciements et ma gratitude vont aussi à Davit Yohan pour avoir accepté de juger ce travail en tant qu'examinateur. Je lui adresse mes sentiments les plus respectueux.

Merci également Mr Talon Laurent qui a accepté d'assister ma soutenance en tant que invité. Que vous soyez assuré de mon entière reconnaissance.

Titre ÉTUDE NUMÉRIQUE DE LA CROISSANCE MICROBIENNE EN MILIEU POREUX.

Résumé :
L'évolution d'une phase microbienne au sein d'un milieu poreux est un processus complexe de par la prise en compte des effets de croissance (ou de mortalité) et d'étalement de la phase cellulaire. D'autres processus tels que l'arrachement d'une partie du biofilm ou l'attachement– détachement de cellules mobiles depuis la phase fluide peuvent aussi contribuer à la variation du volume de biofilm présent. Une meilleure compréhension des interactions mis en jeu entre les processus de croissance de biofilm, du transport de soluté et de l'écoulement et une modélisation rigoureuse de ce processus de croissance à l'échelle microscopique est un enjeu essentiel à une prédiction plus fine du devenir des polluants dans les sols. L'évolution temporelle d'un milieu poreux sous l'effet de l'activité biologique constitue toutefois à l'heure actuelle un défi scientifique majeur d'un point de vue de la modélisation numérique. Les variations locales de la géométrie du domaine (bio-obstruction des pores) induisent en effet une chenalisation de l'écoulement et du transport qui va évoluer au cours du temps. Si différentes méthodes numériques – lagrangiennes ou eulériennes - ont été développées (méthode de capture du front, méthode d'interface diffuse de type « Level Set » ou « Volume Of Fluid »), elles restent souvent peu adaptées à des modélisations 3D à l'échelle du pore (temps de calcul, remaillage parfois nécessaire, problème de gain ou de perte de masse). Nous combinons ici une méthode IBM (*Immersed Boundary Method*) à une méthode LBM (*Lattice Boltzman Method*) pour le calcul de l'écoulement en 3D tandis qu'une approche de type VOF (*Volume of Fluid*) ou par reconstruction d'interface couplée à une discrétisation en Volume Finis est utilisée pour le transport des espèces chimiques. L'intérêt ici de la méthode IB-LBM est de pouvoir bénéficier de la précision de la formulation lattice-Boltzmann tout en travaillant sur un maillage fixe, un terme correcteur venant modifier la vitesse au voisinage des interfaces mobiles. Le modèle d'écoulement-transport en milieu poreux évolutif développé est ensuite couplé à un modèle d'automate cellulaire prenant en compte les processus d'attachement-détachement. Le modèle est comparé à des benchmarks numériques et utilisé pour étudier les différents régimes de croissance du biofilm en fonction des conditions hydrodynamiques. Dans le dernier chapitre, ce modèle est étendu à la prise en compte d'une phase non-miscible afin d'étudier l'impact des processus de biodégradation sur la dissolution d'une phase polluante piégé. On se limite aux conditions où le NAPL est à saturation résiduelle. L'influence de la production de biosurfactant sur la solubilité du polluant ainsi que la toxicité de celui-ci sur la cinétique de croissance des bactéries est prise en compte. Plusieurs résultats numériques sont présentés afin d'illustrer l'influence des différents paramètres hydrodynamiques sur la dissolution du NAPL.

Mots-clés Milieu poreux, Transport de soluté, Biofilm, Automate cellulaire, Lattice Boltzmann, Méthodes des frontières immergées, Dissolution de NAPL, Biodégradation de NAPL.

Title NUMERICAL STUDY OF BIOFILM GROWTH IN POROUS MEDIA

Abstract :
Mathematical modeling of transport in porous media of organic chemical species in the presence of a bacterial population growing in the form of biofilms is an important area of research for environmental and industrial applications such as the treatment and the remediation of groundwater contaminated by organic pollutants. Biofilms, which are composed of bacteria and extracellular organic substances, grow on the pore-walls of the porous medium. Biodegradable organic solutes are converted into biomass or other organic compounds by the bacterial metabolism. This evolution of the microbial biomass phase within the porous medium is a complex process due mainly to growth (or decay) and spatial spreading of the cellular phase. Processes such as biofilm sloughing and attachment (or detachment) of cells from the fluid phase may also contribute to the biofilm volume variation. In this context, the aim of the thesis is to focus on the mechanisms that control the development of biofilms in porous media and its impact on the hydrodynamic properties of the porous matrix.
The objective of this work is to model this pore-scale phenomenon of biofilm growth by integrating the various mechanisms which favor the bacterial development (bacterial proliferation, assimilation of nutrients to synthesize new cellular materials, attachment of cells) or, conversely, which are responsible for slowing down (e.g., detachment of cells, toxicity). A IB-LB model is developed for flow calculation and non-boundary conforming finite volume methods (volume of fluid and reconstruction methods) are used for reactive solute transport. A sophisticated cellular automaton model is developed to describe the spatial distribution of bacteria. Several numerical simulations have been performed on complex porous media and a quantitative diagram representing the transitions between the differents biofilm growth patterns was proposed. Finally, the bioenhanced dissolution of NAPL in the presence of biofilms was simulated at the pore scale. The impact of biosurfactants and NAPL toxicity on bacterial growth has been investigated.

Keywords Porous media, solute transport, Biofilm, Cellular Automaton, Lattice Boltzmann, Immersed boundary, NAPL Dissolution, Bioenhanced dissolution of NAPL.

Table des matières

Table des matières vii

Liste des figures ix

Notations xv

1 Introduction 1
1.1 Qu'est-ce qu'un biofilm ? 3
1.2 Les processus biologiques au sein d'un biofilm 5
1.2.1 La croissance du biofilm 5
1.2.2 Quorum sensing 7
1.2.3 Détachement 9
1.3 Enjeux technologiques et scientifiques 12
1.4 La croissance de biofilm en milieu poreux : un problème multi-échelle 13
1.4.1 Disparité des échelles spatiales : Décrire le biofilm mais à quelle échelle ? 13
1.4.2 Disparité des échelles temporelles et approximation quasi-stationnaire 16
1.5 Modélisation de la croissance bactérienne à l'échelle du pore 16
1.5.1 Les différents modèles de croissance du biofilm 17
1.5.2 Quelle approche adopter ? 23
1.6 Objectifs et organisation du manuscrit 26

2 Modélisation de l'écoulement et du transport dans des milieu poreux évolutifs 29
2.1 Introduction 31
2.2 "Numerical Efficiency Assessment of IB-LB Method for 3D Pore-scale Modeling of Flow and Transport" par M. Benioug, F. Golfier, A.-J. Tinet, M.A. Buès et C. Oltéan - *Transport in Porous Media* (2015) 33

3 Modélisation de la croissance bactérienne à l'échelle du pore 57
3.1 Modèle théorique 59
3.1.1 Hypothèses 59
3.1.2 Mise en équation 60
3.1.3 Conditions aux limites 61
3.1.4 Adimensionnement des équations 62
3.2 Modèle numérique 63

3.3 Automate cellulaire 64
3.4 Mécanisme de détachement 68
3.5 Mécanisme d'attachement 71
3.6 Validation du modèle de croissance de biofilm 72
3.6.1 Cas 1 : croissance bactérienne sur une surface solide sous l'effet de la diffusion 73
3.6.2 Cas 2 : croissance bactérienne sur une surface solide en présence d'un écoulement 76
3.7 Cas 3 : application à des milieux poreux 2D et 3D 79
3.7.1 Milieu poreux 2D 79
3.7.2 Milieu poreux 3D 86
3.7.3 Diagramme de régime de croissance *Pe-Da* 87

4 Modélisation de la dissolution et de la biodégradation d'une phase NAPL à l'échelle du pore **91**
4.1 Introduction 93
4.1.1 Les NAPLs 93
4.1.2 Interactions entre le biofilm et les NAPLs 94
4.1.3 Processus liés à la dissolution des NAPLs 96
4.2 Description du modèle théorique et numérique 102
4.2.1 Hypothèses du modèle 103
4.2.2 Modélisation de l'écoulement 104
4.2.3 Modélisation du transport d'espèces au sein du système eau-biofilm-NAPL 104
4.2.4 Modélisation de la dissolution du NAPL 107
4.2.5 Cinétique de croissance de la biomasse et effet d'inhibition 110
4.2.6 Conditions aux limites 111
4.2.7 Adimensionnement des équations 111
4.3 Résultats et discussion 114
4.3.1 Dissolution du NAPL en absence de biodégradation . . . 114
4.3.2 Impact des bactéries sur la dissolution du NAPL 117
4.3.3 Influence de la toxicité du NAPL 123
4.3.4 Vers l'échelle macroscopique : pertinence de l'hypothèse d'équilibre de masse local 126
4.4 Conclusion 128

5 Conclusion générale et Perspectives **131**
5.1 Conclusions 133
5.2 Perspectives 134

Bibliographie **137**

Liste des figures

1.1 (a) Biofilm se développant sur une surface d'acier doux dans un système d'eau industriel (source : http ://www.microbelibrary.org/) ; (b) Biofilm se développant sur la surface intérieure d'un dispositif médical (source : http ://www.mpkb.org) 4
1.2 Bio-obstruction dû au développent de biofilm dans le monolithe poreux ; a) initial, b) après 7 jours, c) après 14 jours, d) après 23 jours. (Ebrahimi et al. 2005) 5
1.3 Les principaux processus influant sur le développement du biofilm 5
1.4 Les grandes étapes de la formation d'un biofilm 7
1.5 Simulations numériques avec un ratio croissant entre les taux maximaux de transport de substrat et de croissance. En haut, un biofilm pour un régime fortement limité par le transport, et celle du bas un biofilm pour un régime limité par la croissance.(a) Modèle 2D, les lignes représentent des lignes d'iso-concentration en substrat, (Picioreanu et al. 1998a). (b) Modèle $3D$, pour différentes conditions d'inoculation, (Eberl et al. 2001). 8
1.6 Effet de la vitesse du fluide sur les contributions relatives des transports convectifs et diffusifs (a) simulation $2D$, zone noire : la convection domine le transfert de masse, à l'intérieur du biofilm, les lignes d'iso-réaction sont tracées, (Picioreanu et al. 2000b). (b) simulation $3D$: les surfaces dépeintes montrent les zones où le flux convectif est égale au flux de diffusion,(Eberl et al. 2000). 9
1.7 Les principales échelles impliquées dans la modélisation du biofilm en milieu poreux 15
1.8 Processus et temps caractéristiques, (Picioreanu et al. 2000a) 16
1.9 Représentation schématique de modèle continue 18
1.10 Représentation schématique de modèle multi-agent où chaque cercle modélise une cellule 19
1.11 simulations 3D de la structure de buifilm par le modèle multi agent. 21
1.12 Croissance de biofilm (automate cellulaire) 21

1.13 Illustration des différentes approches de la répartition de biomasse par l'automate cellulaire (1) approche "poussée", Picioreanu et al. (1998c), (2) approche "biomasse excédentaire", Noguera et al. (1999) (3) approche Tang et Valocchi (2013). Les mailles colorées sont du biofilm et les mailles blanches sont du fluides (cellules inoccupées). 24
1.14 (a) modèle continue 3D, Eberl et al. (2001) (b) modèle continue 2D, Dockery et Klapper (2001). Le contour montre la haute pression de biomasse (blanche) à l'extrémité de biofilm et basse pression (gris foncé) à la base, ainsi que le champs de vitesse d'advection de biofilm (c) modèle automate cellulaire 3D, (Picioreanu et al. 1998a) (d) modèle automate cellulaire 2D, (Picioreanu et al. 1998a). Le contour montre les lignes égales de concentration du substrat et le champs de vecteurs de flux de substrat beaucoup plus élevés à l'extrémité de biofilm (e) modèle multi-agent 3D (Picioreanu et al. 2004) (f) modèle multi-agent 2D, (Krefta et al. 2001). Les ligne iso-concentration montre une formation semblable à des doigts en cas de limitation du substrat dans les couches profondes du biofilm. 25

3.1 Structure de l'algorithme général du modèle 65
3.2 Distribution spatiale de la biomasse simulé dans le cas d'une concentration de substrat imposée sur la limite supérieure du domaine, en absence d'écoulement. Les résultats indiquent une direction préférentielle de développement du biofilm selon les diagonales. La biomasse est représentée en vert, la paroi solide en rouge et le fluide en bleu. a) Simulation $2D$, b) Simulation $3D$. 66
3.3 Exemple schématique de discrétisation du gradient de concentration sur un maillage cartésien 67
3.4 Distribution spatiale de la biomasse simulée dans les mêmes conditions que sur la Figure 3.2 . La biomasse est représentée en vert et la paroi solide en rouge. 67
3.5 Présentation schématique de la répartition de biomasse par l'automate cellulaire. a) avant la répartition, b) approche discrétisée classique, c) simplification de l'évolution de biofilm avec des interfaces planes. 68
3.6 Maille (i, j, k) avec ses quatre voisines et leurs vecteurs vitesse servant au calcul de τ 69
3.7 Évolution de la fraction volumique de biofilm détaché ϕ_{det} en fonction de la contrainte imposé τ 70
3.8 Représentation schématique d'étapes d'attachement 72
3.9 Représentation du domaine étudié pour le Cas test 1. Les colonies bactériennes sont en vert, le substratum solide est représenté en rouge. 73

3.10 Évolution temporelle de la géométrie 2D d'un biofilm pour $Da = 10$. Le biofilm est représenté en vert, le fluide en bleu et le substratum solide en rouge. Les lignes noires indiquent les valeurs d'iso-concentrations. Celles-ci montrent la décroissance de la concentration en substrat depuis la surface supérieure fluide (zone bleu) jusqu'au biofilm (en vert), avec une variation de 10% entre les lignes. a) $t^{'} = 10$, b) $t^{'} = 50$, c) $t^{'} = 100$, d) $t^{'} = 160$. 75
3.11 À droite : résultats numériques de la distribution de la biomasse pour différentes valeurs de Da. Les lignes noires représentent les iso-concentration avec une variation de 10% entre chacune. À gauche : profils de la concentration moyenne en substrat $\bar{C}$ en rouge, et de la concentration moyenne en biomasse $\bar{\rho}$ en vert selon z. a) $Da = 0.05$, $t^{'} = 600$, b) $Da = 1$, $t^{'} = 190$, c) $Da = 10$, $t^{'} = 160$, d) $Da = 1000$, $t^{'} = 46$. 77
3.12 Distribution spatiale de la biomasse - zoom de la partie encadrée sur la figure 3.11c. Les vecteurs représentent le gradient de concentration en substrat. 78
3.13 Évolution de la géométrie du biofilm en 3D. Le biofilm est représenté en rouge, a) $Da = 0.01$, $t^{'} = 86$, b) $Da = 0.01$, $t^{'} = 113$, c) $Da = 100$, $t^{'} = 26$, d) $Da = 100$, $t^{'} = 42$ 78
3.14 Géométrie initiale du domaine et conditions aux limites du problème. Les colonies bactériennes sont représentées en vert, le substratum solide en rouge. La flèche indique le sens d'écoulement. 79
3.15 Croissance 2D de biofilm pour $Da = 1$ et différentes valeurs de Pe. Les iso-concentrations sont représentées tous les 10% de variation. Les vecteurs vitesses sont aussi indiqués. a) $Pe = 0.1$, $t^{'} = 1400$, b) $Pe = 1$, $t^{'} = 1100$, c) $Pe = 100$, $t^{'} = 450$. 80
3.16 Géometrie initiale (image d'un milieux poreux d'après Wood et al. 2007), la phase biofilm est illustrée en vert, solide en rouge et le fluide en bleu. 81
3.17 Résultats de simulation de croissance pour $Pe = 1$, $Da = 0.01$. Le champ de concentration en biomasse et en substrat varie de 1 en rouge à 0 en bleu. a) champ de concentration à $t^{'} = 10$, b) champ de concentration en biomasse à $t^{'} = 1780$, c) géometrie du milieu à $t^{'} = 780$, d) géometrie du milieu à $t^{'} = 9800$. 82
3.18 Résultats de simulation de croissance pour $Pe = 0.001$, $Da = 100$. Le champ de concentration en biomasse et en substrat varie de 1 en rouge à 0 en bleu. a) champ de concentration à $t^{'} = 1$, b) champ de concentration en biomasse à $t^{'} = 1$, c) géométrie du milieu à $t^{'} = 1$, d) géométrie du milieu à à $t^{'} = 2$. 84

3.19 Résultats de simulation de croissance pour $Pe = 500$ et $Da = 0.1$. Le champ de concentration en biomasse et en substrat varie de 1 en rouge à 0 en bleu. Le taux de cisaillement varie de 2×10^6 en rouge à 0 en bleu. a) concentration du substrat à $t^{'} = 70$, b) concentration du substrat à $t^{'} = 140$. c) géometrie du milieu à $t^{'} = 70$, d) géometrie du milieu à $t^{'} = 140$. e) taux de cisaillement à $t^{'} = 700$, il varie de 2×10^6 en rouge à 0 en bleu. f) le taux de cisaillement à $t^{'} = 140$, il varie de 2×10^6 en rouge à 0 en bleu. 85
3.20 Géométrie initiale du milieu poreux $3D$, où le biofilm est indiqué en vert, le solide en rouge. L'écoulement est orienté de la gauche vers la droite. 86
3.21 Croissance de biofilm dans un milieu poreux $3D$ (a, c) et répartition de la biomasse au sein du réseau poral (b, d). (a-b) : $Pe = 1$ et $Da = 10$, (c - d) : $Pe = 10$ et $Da = 1$ 86
3.22 Diagramme des différents régimes de croissance du biofilm en milieu poreux en fonction des nombres de Péclet et de Damköhler 88

4.1 Modèle conceptuel de migration des DNAPLs (ref : EPA/600/F-98/022) 94
4.2 Schéma de variation de la solubilité d'un hydrocarbure en fonction de la concentration en surfactant 99
4.3 Photographie au microscope illustrant le développement préférentiel du biofilm à la périphérie d'une gouttelette d'huile (Paulsen et al. 1989) 100
4.4 Série de photographies au microscope montrant l'évolution de la fragmentation d'une gouttelette d'huile sur 16 jours (Paulsen et al. 1989) 100
4.5 Résultats d'une expérience exposant un biofilm de *Pseudomonas* à l'influence d'une gouttelette de TCE Singh et Olson (2010) 102
4.6 Exemple d'extension d'une maille fluide ou biofilm et réduction de la maille NAPL pour la méthode de reconstruction d'interface 107
4.7 a), b), c) Dissolution d'une gouttelette de NAPL à des instants croissants. Les grains solides sont en vert, le NAPL en rouge et le fluide en bleu (la couleur jaune est un artefact du logiciel de post-traitement lié au lissage des couleurs) . 109
4.8 a), b), c) Dissolution d'une gouttelette de NAPL à des instants croissants. Les grains solides sont en vert, le NAPL en rouge et le fluide en bleu (la couleur jaune est un artefact du logiciel de post-traitement lié au lissage des couleurs) . 110
4.9 Évolution du taux de réaction en fonction de la concentration en substrat pour le modèle de Monod et de Haldane ($\mu = 0.3h^{-1}$, $K = 44.9mg/l$, $K_i = 525mg/l$) 111
4.10 Algorithme du modèle de dissolution et de biodégradation d'une phase hydrocarbure à l'échelle du pore 113

4.11 À gauche (a, c, e) : champs de concentration - la concentration varie de 0 en bleu à 6×10^{-3} en rouge, les gouttelettes de NAPL sont en blanc. À droite (b, d, f) : géométrie du milieu poreux et vecteurs du champs de vitesse. Le fluide est en bleu, le solide en vert, le NAPL en rouge et les mailles mixtes NAPL/fluide sont en jaune. a), b) $t^{'} = 0$; c), d) $t^{'} = 30$; e), f) $t^{'} = 50$. g) Variation des rayons des gouttelettes de NAPL au cours du temps, h) Variation du volume des gouttelettes de NAPL au cours du temps. L'écoulement est orienté du bas vers le haut 116
4.12 Géométrie (a, c, e, g) du milieu poreux et champ de concentration associé (b, d, f, h) pour deux temps différents et deux valeurs du nombre de Péclet : a), b) $t^{'} = 20$ - $Pe = 6.2$; c), d) $t^{'} = 20$ - $Pe = 125$; e), f) $t^{'} = 50$ - $Pe = 6.2$; g), h) $t^{'} = 50$ - $Pe = 125$. La concentration varie de 0 en bleu à 6×10^{-3} en rouge. L'écoulement est orienté du bas vers le haut 118
4.13 Variation de la fraction volumique de NAPL en fonction du temps pour deux valeurs du nombre de Péclet : $Pe = 125$, $Pe = 6.2$ 119
4.14 Géometrie du milieu poreux : a) $t^{'} = 23$, b) $t^{'} = 33$, c) $t^{'} = 38$, d) $t^{'} = 46$, e) Variation du rayon de la gouttelette A, f) Variation du rayon de la gouttelette B, g) Variation du rayon de la gouttelette C, h) Échelle de couleurs des types de maille. L'écoulement est orienté du bas vers le haut . . . 122
4.15 Géométrie du milieu poreux : a) $t^{'} = 8$, b) $t^{'} = 18$, c) $t^{'} = 32$, d) $t^{'} = 35$, e) Variation du rayon de la gouttelette A, f) Variation du rayon de la gouttelette B, g) Variation du rayon de la gouttelette C. L'écoulement est orienté du bas vers le haut 124
4.16 Géométrie du milieu poreux : a) $t^{'} = 17$, $K_i^{'} = 2 \times 10^{-3}$, $k_d^{'} = 2 \times 10^{-7}$; b) $t^{'} = 30$, $K_i^{'} = 2 \times 10^{-5}$, $k_d^{'} = 2 \times 10^{-7}$; c) $t^{'} = 40$, $K_i^{'} = 2 \times 10^{-5}$, $k_d^{'} = 2 \times 10^{-4}$; d) Concentration en biomasse : $t^{'} = 40$, $K_i^{'} = 2 \times 10^{-5}$, $k_d^{'} = 2 \times 10^{-4}$, la concentration varie de 0 en bleu à 0.95 en rouge. L'écoulement est orienté du bas vers le haut 125
4.17 Géométrie du milieu poreux, les bactéries sont en blanc : a)$t^{'} = 0$ et b) $t^{'} = 2250$; c) Champ de concentration à $t^{'} = 2250$: la concentration varie de 0 en bleu à 6×10^{-5} en rouge , d) Évolution temporelle de r_{eq}. L'écoulement est orienté du bas vers le haut 129

Notations

A_{fb}	interface fluide biofilm
A_{fs}	interface fluide solide
A_{hb}	interface NAPL biofilm
A_{hf}	interface NAPL fluide
A_{sb}	interface solide biofilm
b	phase biofilm
c	concentration
c_0	concentration maximale imposée
$c^{'}$	concentration adimensionnée
$c_0^{'}$	concentration maximale imposée adimensionnée
c_{eq}	concentration à l'équilibre local
Ccf , c_b, c_h	concentrations de polluant dans les phases fluide, biofilm et NAPL
CFL	coefficient de Courant, Friedrichs et Lewy
Da	nombre de Damköler
D_b	coefficient de diffusion dans le phase biofilm
D_f	coefficient de diffusion dans le phase fluide
D_s	coefficient de diffusion dans le phase solide
D_ϕ	coefficient de diffusion en fonction de la fraction volumique ϕ
$D_\phi^{'}$	D_ϕ adimensionné
F_λ	coefficient stoechiométrique de la réaction biologique
$Flux_h$	flux de NAPL
J	taux de dissolution de NAPL
K	constante de demi saturation
$K^{'}$	K adimensionné
k_d	coefficient d'extinction de bactéries
$k_d^{'}$	k_d adimensionné
K_{fb}	coefficient de partage entre le phase fluide et biofilm
K_{hb}	coefficient de partage entre le phase NAPL et biofilm
K_i	coefficient d'inhibition
$K_i^{'}$	K_i adimensionné
l	longueur caractéristique de la simulation
l_x, l_y, l_z	longueur du domaine selon les axes x, y, z
$l_x^{'}$, $l_y^{'}$, $l_z^{'}$	longueur adimensionnée du domaine selon les axes x, y, z
μ_F	viscosité dynamique du fluide
$\mu_F^{'}$	μ_F adimensionné
NAPL	Non Aqueous Phase Liquid
Nx, Ny, Nz	nombre de mailles du domaine selon x, y et z

p	pression
Pe	nombre de Péclet
ϕ	fraction volumique de biofilm
ϕ_h	fraction volumique de NAPL
R	terme de réaction
Re	nombre de Reynolds
R_ϕ	terme de réaction fonction de la fraction volumique ϕ
ρ_{bio}	concentration bactérienne
$\rho_{bio}^{'}$	ρ_{bio} adimensionné
ρ_{det}	concentration bactérienne détachée
ρ_{biomax}	concentration maximale en bactérie
Sh	nombre de Sherwood
$Sh^{'}$	nombre de Sherwood modifié
t	temps
$t^{'}$	t adimensionné
τ	contrainte de cisaillement
τ_{attach}	contrainte de cisaillement maximale pour l'attachement
t_{growth}	pas de temps de croissance du biofilm
τ_{max}	contrainte maximale de cisaillement
t_{CFL}	pas de temps de transport
$\mathbf{u}$	vecteur vitesse
u_ϕ	vecteur vitesse fonction de la fraction volumique ϕ
u_{moy}	vitesse moyenne
$\mathbf{u}^{'}$	$\mathbf{u}$ adimensionné
v_x^{max}, v_y^{max}, v_z^{max}	vitesses maximales selon x, y, z

Introduction 1

Sommaire

1.1 Qu'est-ce qu'un biofilm ? 3
1.2 Les processus biologiques au sein d'un biofilm 5
1.2.1 La croissance du biofilm 5
1.2.2 Quorum sensing 7
1.2.3 Détachement 9
1.3 Enjeux technologiques et scientifiques 12
1.4 La croissance de biofilm en milieu poreux : un problème multi-échelle 13
1.4.1 Disparité des échelles spatiales : Décrire le biofilm mais à quelle échelle ? 13
1.4.2 Disparité des échelles temporelles et approximation quasi-stationnaire 16
1.5 Modélisation de la croissance bactérienne à l'échelle du pore 16
1.5.1 Les différents modèles de croissance du biofilm 17
1.5.2 Quelle approche adopter ? 23
1.6 Objectifs et organisation du manuscrit 26

1.1 Qu'est-ce qu'un biofilm ?

La première observation d'un biofilm date du XVII-ème siècle. En utilisant un microscope de sa propre conception, Antone Van Leeuwenhoek (1632 - 1723) a observé la présence de microoganismes (animalicules) suite au grattage de sa plaque dentaire. Ceux sont les formes libres et planctoniques des microorganismes les plus étudiées depuis. En 1933 Arthur Henrici en plongeant des lames en verre de microscope dans son aquarium, a observé un dépôt de microorganismes qui s'épaissit progressivement (Henrici 1933). Heukalakian & Heller (1940) ont observé "l'effet de bouteille" : les microorganismes marins s'attachent et augmentent leur croissance et activité métabolique en présence d'un surface solide (Heukelekian et Heller 1940). En 1943, Zobell a montré que, dans un récipient rempli de liquide, les bactéries colonisant les parois sont plus nombreuses que celles présentes en suspension (Zobell 1943). Malgré l'existence de ces études considérées comme étant à l'origine de la recherche en microbiologie, les plus importantes études physico-chimiques portant sur les biofilms datent des années 1970, avec les travaux de Jones et al. (1969), Characklis (1973) ou encore Costerton et al. (1978)). En utilisant la microscopie à transmission et à balayage et en ajoutant du rouge de Ruthénium (marquage de sucre) au tétroxyde d'Osmium des filtres de station de traitement des eaux, Jones et al. (1969), ont confirmé, outre la structure des biofilms, l'existence d'une matrice polyosidique (EPS). Depuis, l'étude des biofilms est devenu plus facile grâce à l'utilisation de la microscopie électronique, qui fournit des informations, non seulement sur la structure du biofilm, mais aussi sur la présence d'EPS. En utilisant la microscopie électronique, Characklis (1973) a démontré que ces dépôts microbiens au sein de conduites d'eau de systèmes industriels sont à la fois tenaces et très résistants aux effets antimicrobiens du chlore.

Basé sur les observations de la plaque dentaire et des communautés microbiennes sessiles localisées dans les torrents de montagne, Costerton et al. (1978) ont proposé une "théorie des biofilms" en expliquant, à la fois, les mécanismes d'adhérence des micro-organismes bactériens aux interfaces solides et les avantages écologiques induit par les colonies bactériennes. En 1981, William Costert a montré que la plupart de la biomasse microbienne est fixée sur des surfaces solides et constituée de populations hétérogènes, englobées dans une matrice extracellulaire riche en eau, sucres et protéines. Ces populations sont présentes dans tous les environnements et peuvent être associées à des surfaces minérales, végétales (surface des feuilles) ou animales (surfaces des muqueuses, surfaces dentaires etc.) (Costerton et al. 1981). On peut ainsi définir un biofilm comme une communauté d'une ou plusieurs espèces bactériennes ou d'autres types de microorganismes (champignons, algues, levures) associés de façon irréversible à une surface liquide ou solide (eau, tissus biologiques, substrats solides situés dans des environnements marins ou d'eau douce (Potera 1999)) et enfermés dans une matrice de matières polysaccharidiques primaires assurant la croissance et la survie à l'état sessile (Kalmokoff et al. 2001, Prakash et al. 2003, Smith 2005). La Figure 1.1 illustre à partir de micrographies électroniques à balayage, la formation de deux biofilms dé-

veloppés dans des environnements d'eau industrielle et d'un dispositif médical, respectivement.

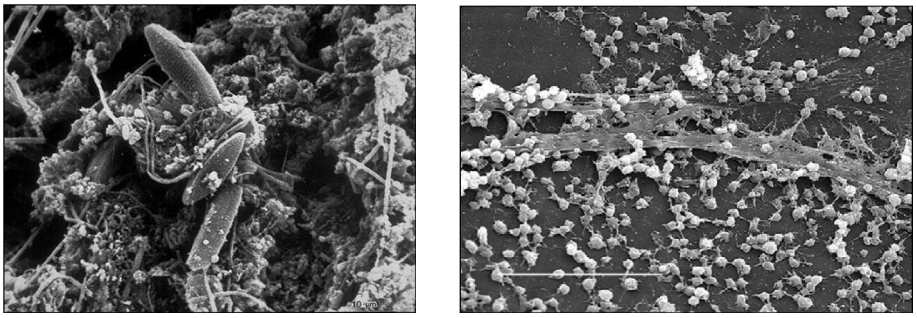

FIGURE 1.1 – *(a) Biofilm se développant sur une surface d'acier doux dans un système d'eau industriel (source : http ://www.microbelibrary.org/) ; (b) Biofilm se développant sur la surface intérieure d'un dispositif médical (source : http ://www.mpkb.org)*

Les biofilms se forment lorsque les bactéries adhèrent sur une surface sur laquelle est adsorbée un milieu aqueux contenant des nutriments (des quantités infiniment faibles de nutriments suffisent à l'établissement d'un biofilm) et excrètent des substances polymériques extracellulaires (EPS). Ces dernières représentent 75% à 95 % de la masse totale du biofilm et forment un complexe hétérogène dynamique de bio-organismes qui a pour rôle principal de protéger les cellules bactériennes de la dessiccation (Wingender et al. 1999), (Chmielewski et Frank 2003), (Mah et O'Toole 2001), (Decho 2000).Un biofilm est ainsi composé à 90 % d'eau.
La croissance du biofilm comporte plusieurs phases dont la plus importante est représentée par la phase d'adhésion qui peut être réversible ou non. En effet, lorsque les bactéries produisent des exopolysacharides, leur adhésion devient quasiment irréversible. Selon les travaux de Ofek et Doyle (1994) et Sauer et al. (2002) le décrochement de ces bactéries de leur support par une simple action mécanique est impossible. Dû à la grande surface de contact solide sur les grains (Kapellos et al. 2007), l'espace poral d'un sol constitue un endroit privilégié pour le développement des biofilms. Il faut également noter que les bactéries constituant le biofilm sont mieux protégées face aux actions d'agents extérieurs tels que les ultraviolets, les agents antibactériens (désinfectants), la chaleur ou encore les bactériophages. Les biofilms sont des réservoirs de différentes espèces bactériennes.

Une vie propre s'organise au sein de la matrice protégée par les polymères extracellulaires avec formation de réseaux de pores et de canaux de circulation : accumulation de nutriments, échanges génétiques, concentration microbienne forte, communication entre les cellules. Un biofilm n'est donc pas une surface "monocouche" continue. Son architecture est à la fois hétérogène dans le temps et l'espace.

À l'échelle du pore, le biofilm peut modifier la géométrie de la matrice solide en obstruant la quasi-totalité des pores ou des canaux ; c'est le phénomène de bio-obstruction (Hua et al. 2014, Deng et al. 2013, Pintelon et al. 2012, Rockhold et al. 2007, Knutson et al. 2007, Kapellos et al.

2007, Thullner et al. 2002, Kone et al. 2014). Ce processus est mis à profit dans le cas par exemple des bio-barrières lors de la dépollution des formations aquifères. De telles barrières sont censées contenir temporairement à la fois les substances organiques dissoutes et les phases liquides organiques non-aqueuses. 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 peu ou moins colonisées. La Figure 1.2 représente un exemple de bio-obstruction en milieu poreux.

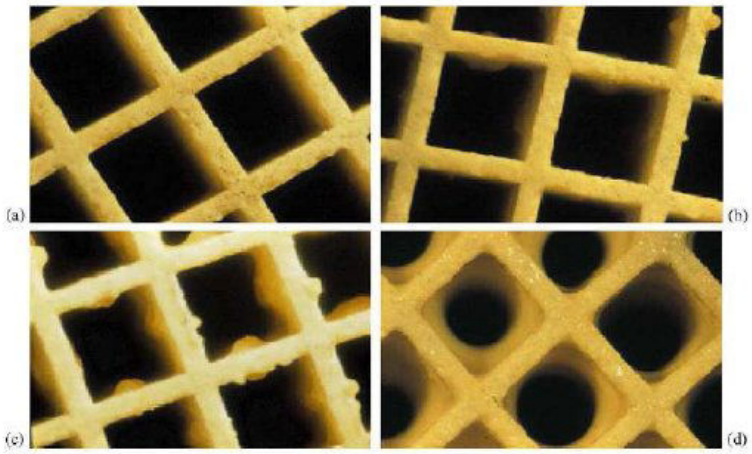

FIGURE 1.2 – *Bio-obstruction dû au développent de biofilm dans le monolithe poreux ; a) initial, b) après 7 jours, c) après 14 jours, d) après 23 jours. (Ebrahimi et al. 2005)*

1.2 Les processus biologiques au sein d'un biofilm

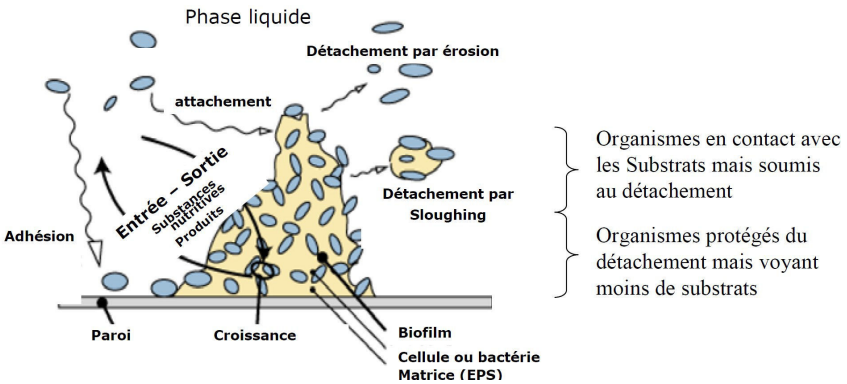

FIGURE 1.3 – *Les principaux processus influant sur le développement du biofilm*

1.2.1 La croissance du biofilm

Les bactéries en suspension sont en phase planctonique et lorsqu'elles se déplacent, elles s'approchent et interagissent avec la surface des grains. Cette interaction se fait généralement par le biais de macromolécules présentes sur la membrane des bactéries. Sous l'effet des interactions de

surface favorables, d'origine physique, chimique ou biologique (Carpentier et Cerf 1993), une fraction bactérienne adhère à la surface solide. Ce processus appelé l'adhésion bactérienne s'effectuant en deux étapes :
(i) adhésion initiale : considérée comme instantanée et réversible, les bactéries s'attachent sur la surface. Les bactéries en suspension se déplacent à travers l'espace poreux sous l'action des forces de gravité, hydrodynamiques, browniennes, London - Van der Waals et électrostatiques (e.g. : Van Oss et al. 1988). En plus de ces forces, de nombreuses bactéries sont capables de se déplacer (nager) d'elles mêmes dans des directions spécifiques en réponse, par exemple à un gradient de concentration en nutriment ou en toxine. De récents travaux s'intéressent à l'influence de ces mécanismes d'auto-propulsion sur la dynamique globale de la population bactérienne Lopez et al. (2015) ce qui peut influencer à terme les régions d'adhésion.
(ii) attachement (phase d'ordre biologique) : irréversible du point de vue chimique et cellulaire, l'attachement dépend de la physiologie des bactéries. .Les bactéries attachées s'adaptent aux conditions environnementales locales et altèrent leur génotype (expression des gènes) et phénotype (taille et forme).

L'adhésion bactérienne est influencée par de nombreux facteurs (Katsikogianni et Missirlis 2004) comme les propriétés physico-chimiques de la surface solide, la vitesse d'écoulement du fluide, ou encore la concentration en nutriment. Parmi les propriétés physico-chimiques de la surface auxquelles l'adhesion est particulièrement sensible, on peut citer la rugosité et l'hydrophobicité de la surface des grains. Selon (Scheuerman et al. 1998), la colonisation augmente avec la rugosité et l'attachement est plus rapide sur des surfaces hydrophobes et non polaires (e.g., le téflon, les plastiques) que sur des matériaux hydrophiles (e.g., le verre, les métaux. Le caractère hydrophobe de ces surfaces dépend néanmoins des caractéristiques du milieu aqueux comme le pH, la force ionique ou encore la température (Bunt et al. 1993).

La sédimentation et l'association des cellules bactériennes avec la surface solide dépendent également de la vitesse d'écoulement de la solution aqueuse. L'augmentation de la vitesse moyenne diminue l'épaisseur de la couche limite favorisant le mélange des cellules (l'écoulement devient turbulent) et ainsi l'association cellules bactériennes/surface. Il faut cependant noter que l'augmentation de la vitesse pariétale au-delà d'un certain seuil critique peut entraîner des contraintes de cisaillement capables d'arracher les cellules initialement attachées (Charaklis & Marshall, 1990).

Un autre facteur influençant l'adhésion bactérienne est la concentration en nutriments. Selon l'étude expérimentale de Cowan et al. (1991), l'augmentation de la concentration en nutriments pourrait être corrélée avec l'augmentation du nombre de cellules bactériennes attachées. Si les concentrations en nutriments sont suffisantes, les concentrations en toxine sont faibles et si les conditions de cisaillement sont pratiquement inexistantes, la croissance du biofilm commence avec la multiplication des bactéries attachées et la poursuites de sécrétions d'EPS. Les étapes de formation d'un biofilm sont résumées sur la Figure 1.4. La phase de

colonisation horizontale par rapport à la surface est suivie par une phase de croissance verticale du biofilm (J.T.Walker et P.D.Marsh 2004). La croissance est restreinte si les nutriments manquent ou si de grandes forces de cisaillement se développent, ce qui peut causer la déformation et /ou le détachement de biofilm.

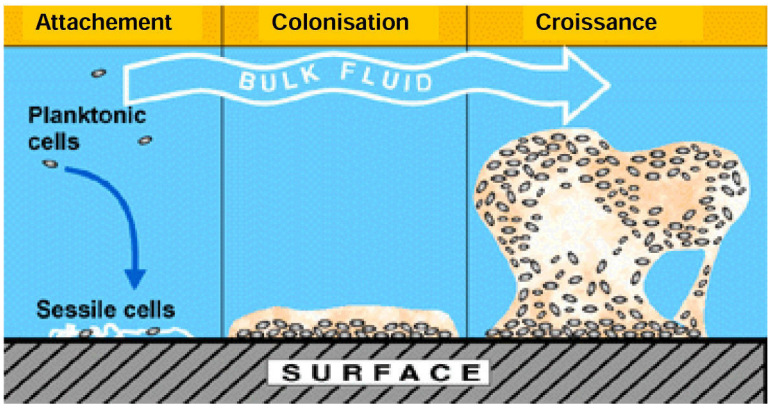

FIGURE 1.4 – *Les grandes étapes de la formation d'un biofilm*

Des simulations numériques menées dans des configuration 2D (Picioreanu et al. 1998a), il résulte que lorsque le taux de transport du substrat est faible devant le taux de croissance, des biofilms très poreux voire filamenteux peuvent être formés (Fig. 1.5). L'analyse des iso-concentrations en substrat montre que les "sommets" des biofilms (iso-concentrations serrées) reçoivent du substrat beaucoup plus rapidement que le biofilm situé dans les vallées ce qui, dû à un fort taux de croissance locale, favoriserait le développement de la structure filamenteuse. Cet effet a aussi été observé dans des simulations $3D$ (Eberl et al. 2001, Krefta et al. 2001) (Fig. 1.5(b)). Par contre, si la croissance est plus rapide que le transfert du substrat, le biofilm croit d'une manière compacte.

La Figure 1.6, montre des simulations 2D (Picioreanu et al. 2000b) et 3D (Eberl et al. 2000) impliqant l'effet de la vitesse du fluide sur la contribution relative des mécanismes convectifs et diffusifs de transport du substrat. Aux débits très élevés, le transport du substrat est bien évidement dominé par la convection. la convection domine le transport du substrat. Les débits élevés impliquent de forts taux cisaillement et le biofilm s'adapte au régime d'écoulement en devenant moins poreux et plus lisse, en diminuant le transport convectif dans les macropores. La structure de biofilm s'adapte ce qui a pour effet de limiter le transport de masse.

1.2.2 Quorum sensing

Les bactéries sont généralement considérées comme des organismes unicellulaires indépendants. Une cellule accomplit les différentes tâches nécessaires à sa survie : alimentation, déplacement, reproduction, respiration ainsi que tous autres processus nécessaires pour maintenir un organisme vivant. Il a été cependant observé que certaines bactéries montrent un comportement coordonné qui permet à une population

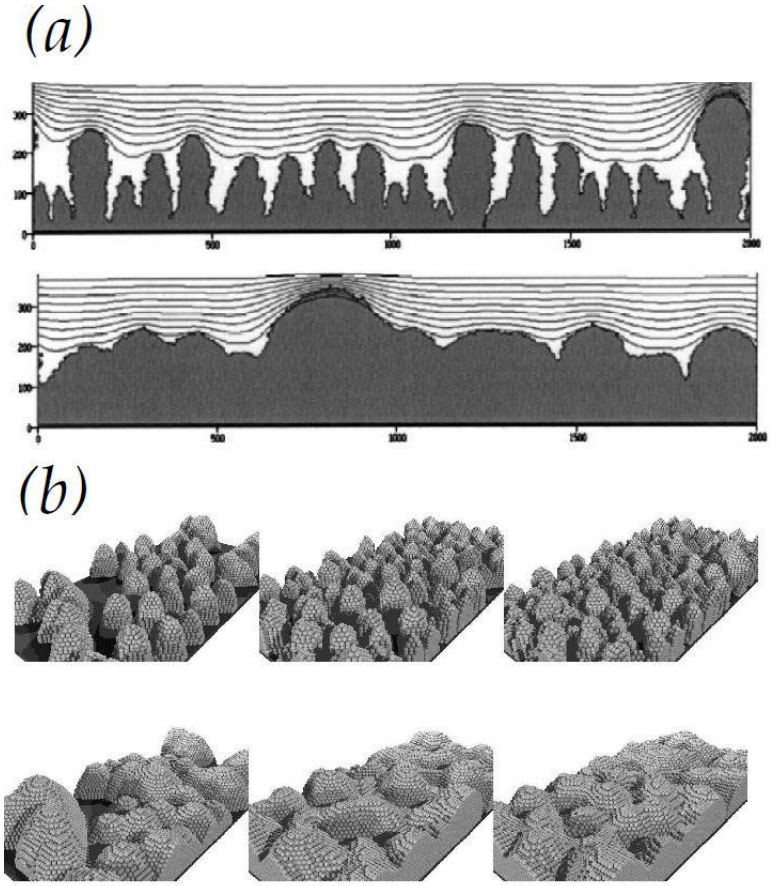

FIGURE 1.5 – *Simulations numériques avec un ratio croissant entre les taux maximaux de transport de substrat et de croissance. En haut, un biofilm pour un régime fortement limité par le transport, et celle du bas un biofilm pour un régime limité par la croissance.(a) Modèle 2D, les lignes représentent des lignes d'iso-concentration en substrat, (Picioreanu et al. 1998a). (b) Modèle 3D, pour différentes conditions d'inoculation, (Eberl et al. 2001).*

entière d'exécuter une fonction particulière à l'unisson ou à modifier au moins leur activité individuelle en réponse à la taille ou à l'activité des colonies qui les entourent. Cette "règulation" (stimulation/réponse), corrélée à la densité cellulaire, est appelée « Quorum Sensing», (Vega et al. 2014, Brackman et al. 2009, Zhang et al. 2009, Davies et al. 1998). Initialement, le « Quorum Sensing» a été décrit comme un mécanisme de communication intercellulaire sur la base de diffusion-réaction utilisée par plusieurs taxons bactériens pour coordonner l'expression des gènes et le comportement en groupes, sur la base de la densité de population (Fuqua et al. 1994, Parsek et Greenberg 2005). Des cellules bactériennes produisent constamment et libèrent de faibles quantités de molécules de signalisation, appelés auto-inducteurs (e.g., l'acyl-homosérine lactones (acyl-HSL) pour des espèces Gram négatif). Quand une concentration critique d'auto-inducteur de l'environnement est atteinte, les bactéries sont rapidement incitées et soumises à des changements dans l'expression des gènes.

Janakiraman et al. (2009) ont étudié aussi bien expérimentalement que numériquement (modèle $1D$) la croissance du biofilm et le « Quorum Sensing» dans des chambres microfluidiques en utilisant des débits d'écoule-

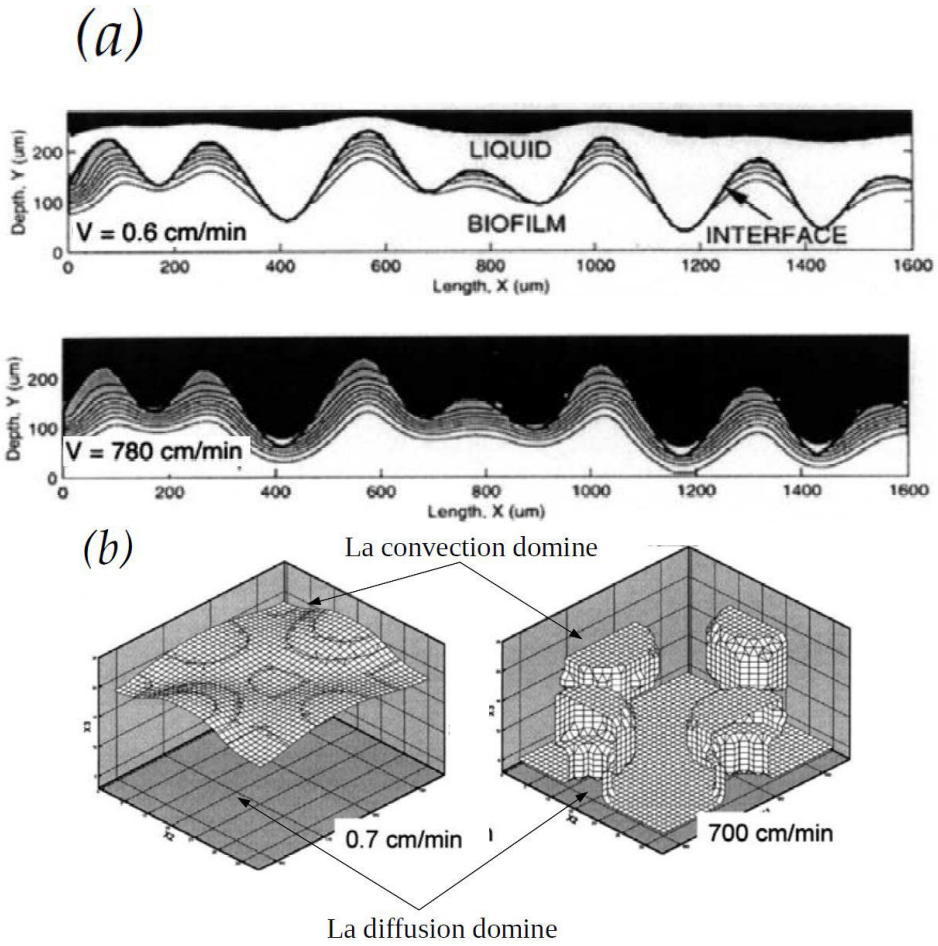

FIGURE 1.6 – *Effet de la vitesse du fluide sur les contributions relatives des transports convectifs et diffusifs (a) simulation 2D, zone noire : la convection domine le transfert de masse, à l'intérieur du biofilm, les lignes d'iso-réaction sont tracées, (Picioreanu et al. 2000b). (b) simulation 3D : les surfaces dépeintes montrent les zones où le flux convectif est égale au flux de diffusion,(Eberl et al. 2000).*

ment très faibles (Nombre de Reynolds $Re < 1$). Il semblerait que le débit de l'écoulement affecte fortement le « Quorum Sensing» dans le biofilm : à des débits élevés, l'épaisseur du biofilm est plus petite en raison du détachement et le taux de transport d'acyl-HSL hors du canal de biofilm peut être si élevé que la concentration d'acyl-HSL n'atteint pas le seuil requis pour l'induction d'une modification de comportement .

1.2.3 Détachement

Les recherches menées sur la croissance du biofilm ont souvent négligé le processus de détachement des cellules (Milferstedt et al. 2006). Depuis les années 90, des études ont montré l'importance du détachement des cellules dans certains domaines, tels que la médecine (Prakash et al. 2003), (Nickel et al. 1994) et l'industrie (Piriou et al. 1997), (Tijhuis et al. 1995), (Chang et al. 1991). La compréhension du mécanisme de détachement d'un biofilm joue un rôle essentiel dans la maîtrise, l'optimisation et le contrôle du développement du biofilm ou la prévention de la contamina-

tion ou l'obstruction des systèmes affectés.

Les facteurs influençant le détachement du biofilm peuvent être biotiques ou abiotiques. Parmi ces facteurs, on peut citer : (*i*) les forces physiques telles que les forces de cisaillement (Walter et al. 2013, Telgmann et al. 2004, Choi et Morgenroth 2003, Stoodley et al. 2001) ou la résistance interne de la matrice du biofilm (Sudarsan et al. 2005, Rupp et al. 2005, Stoodley et al. 2002), (*ii*) les facteurs chimiques tels que l'appauvrissement en éléments nutritifs (Hunt et al. 2004), (*iii*) les facteurs biotiques comme l'activité microbienne métabolique (Stoodley et al. 2001) et (*iv*) l'expression génétique microbiennes (Kaplan et al. 2004; 2003). D'une manière générale, on peut distinguer trois processus responsables du détachement de la biomasse des biofilms : l'abrasion, l'érosion et la mue ou "sloughing" (Walter et al. 2013, Derlon et al. 2008). L'abrasion et l'érosion correspondent toutes deux à la mobilisation de petits groupes de cellules de la surface du biofilm. Néanmoins, elles diffèrent de par leur mécanisme (Morgenroth et Wilderer 2000) : l'érosion est causée par les forces de cisaillement exercées par le fluide en écoulement en contact avec la surface du biofilm (Allison et al. 1990) tandis que l'abrasion est due à la collision de particules servant de support au biofilm (Derlon et al. 2008), i.e. lors de ressacs dans les réacteurs à lits fixes par exemple. La mue, en revanche, désigne le détachement de parties relativement importantes du biofilm dont la taille caractéristique est comparable ou supérieure à l'épaisseur du biofilm. Elle peut être due à la surpopulation bactérienne ou au manque de nutriment qui conduit à la nécrose et à la dégradation d'une partie de la communauté. Si, durant la mue, une fraction de biofilm peut être enlevée de manière localisée jusqu'à la base du substratum - sans pour autant affecter d'autres endroits de la surface du biofilm - l'abrasion et l'érosion agissent sur la totalité de la surface externe du biofilm. Les bactéries à la base du biofilm ne sont ainsi pas mobilisées par l'abrasion et l'érosion (Morgenroth et Wilderer 2000).

D'un point de vue physique, le détachement se produit lorsque les forces externes (par exemple, forces de cisaillement) sont plus importantes que la force de résistance interne de la matrice biofilm. Il existe donc deux mécanismes qui peuvent entraîner un détachement : l'augmentation des forces de cisaillement externes où la diminution de la résistance interne (e.g., hydrolyse de la matrice polymère du biofilm) (Stewart et al. 2000, Bryers 2000). En présence d'un écoulement, le détachement est principalement contrôlé par les forces de cisaillement et la disponibilité des nutriments. Si on considère un substratum immobile (cas d'un milieu poreux), les deux processus de détachement concernés sont alors uniquement l'érosion et la mue. L'érosion est causée par des écoulements à fortes vitesses. Ces vitesses élevées d'écoulement entraînent un fort taux de cisaillement provoquant ainsi un détachement mécanique des excroissances du biofilm. Ce type de mécanisme de détachement conduit souvent à un biofilm d'épaisseur régulière avec une interface fluide biofilm relativement lisse (Picioreanu et al. 2001), (Xavier et al. 2005b). La mue en revanche peut être provoquée par un changement soudain dans la contrainte de cisaillement (Elenter et al. 2007), (Choi et Morgenroth 2003)

ou un changement dans la disponibilité de l'oxygène et des nutriments (Garny et al. 2009). (Garny et al. 2009) et (Choi et Morgenroth 2003) ont mis en évidence que l'érosion de petites particules est le processus prédominant en terme de nombre de bactéries détachées , tandis que la mue est le mécanisme majeur en terme de masse de biofilm detachée. Ces résultats sont d'ailleurs confirmés par (Derlon et al. 2013), qui ont montré après plusieurs essais expérimentaux sur différentes formations de biofilms et sous des conditions de croissance environnementales différentes, que le mécanisme de détachement des biofilms comporte deux composantes principales. La première est un détachement de petites particules sur la surface (majoritaire en nombre de bactéries) tandis que la seconde est le détachement de grandes particules (qui représente l'essentiel du volume de biofilm perdu) et est gouvernée par la structure physique du biofilm en termes de rugosité de surface et de son degré de cohésion / stratification.

Malgré l'importance du détachement dans la formation du biofilm, celui-ci reste un phénomène mal caractérisé. Certaines études expérimentales ont conclu sur une cinétique de détachement d'utilsation limitée puisqu'elles s'appliquent seulement à leur système spécifique. D'autres proposent une cinétique arbitraire qui n'est pas assez descriptive et ne prend pas en compte les propriétés mécaniques du biofilm. La grande difficulté pour modéliser le mécanisme de détachement est de quantifier à la fois les forces hydrodynamiques exercées sur le biofilm et les propriétés mécaniques de celui-ci. Cependant, des modèles expérimentaux et numériques ($1D$, $2D$ et $3D$) de détachement ont été dévelopés en prenant en compte une description spécifique d'un mécanisme de détachement particulier. (Wanner et Gujer 1986) et (Reichert 1994) ont inclus une description de détachement générique dans leur modèle $1D$ multi-espèces en supposant l'existence d'une vitesse critique de détachement à laquelle le front du biofilm se rétracte suite au détachement de la biomasse. Cette approche a été appliquée avec succès pour l'interprétation de résultats expérimentaux (Horn et al. 2003) ou dans le cas d'une étude théorique portant sur l'influence des mécanismes de détachement sur les biofilms (Morgenroth et Wilderer 2000). (Picioreanu et al. 2001) ont été les premiers à intégrer un mécanisme prenant en compte des forces exercées par le liquide sur le biofilm. (Hermanowicz 2001) a développé une fonction simple qui inclut à la fois l'hydrodynamique et la cohésion du biofilm et exprime la probabilité du détachement de la cellule de biomasse mais sans toutefois fournir de méthodologie sur la façon de calculer les valeurs de la résistance/cohésion du biofilm ou de la contrainte de cisaillement hydrodynamique. (Laspidou et al. 2012) ont proposé plus récemment une méthodologie pour quantifier ces paramètres. La résistance du biofilm est calculée en utilisant une technique d'homogénéisation qui traite le biofilm comme un solide composite. Quant à la contrainte de cisaillement hydrodynamique, son estimation est basée sur le nombre de Reynolds et les dimensions du biofilm. Paul et al. (2012) ont trouvé que l'épaisseur du biofilm diminue exponentiellement en augmentant le taux de cisaillement. En outre, ils ont observé que le biofilm est intrinsèquement stratifié si l'on considère sa résistance mécanique. Les couches superficielles présentent ainsi une cohésion plus faible que les couches plus anciennes et plus

profondes.

Durant la dernière décade, ces processus de détachement de biofilm ont été intégrés dans les modèles numériques de croissance à l'échelle du pore. Picioreanu et al. (2001) ou Duddu et al. (2009) ont modélisé le développement d'un biofilm sur une surface plane en prenant en compte les forces de cisaillement responsables de son détachement. Kapellos et al. (2007) et Pintelon et al. (2009) ont utilisé une approche similaire afin de décrire le détachement de la biomasse dans un milieu poreux avec une géométrie plus complexe. Une approche plus précise a été adoptée par Böl et al. (2009), en utilisant une méthode basée sur l'interaction fluide-structure (FSI) pour simuler le détachement du biofilm soumis à des processus mécaniques. Dans leur modèle, la charge appliquée sur la structure du biofilm a été représentée à la fois par la pression du fluide et par les forces visqueuses induites par l'écoulement de ce fluide.

1.3 Enjeux technologiques et scientifiques

L'étude du transport de soluté en milieu poreux incluant une phase biofilm suscite actuellement un intérêt pour ces aplications dans différents domaines comme l'industrie, l'environnement, la santé publique et la médecine en raison de :(i) la résistance accrue aux antibiotiques et aux rayons UV et biocides chimiques, (ii) l'augmentation des modifications génétiques, (iii) l'altération de la biodégradabilité et (iv) l'augmentation de la production de métabolites secondaires des bactéries sessiles par rapport à des bactéries planctoniques (Bourne et al. 2006, Meyer 2003).

Parmi les enjeux industriels majeurs liés aux biofilms, on peut citer l'encrassement des équipements industriels tels que les tours de refroidissement impliquant une diminution de l'efficacité thermique de ces échangeurs de chaleur (perte d'énergie causé par le rôle « isolant » des biofilms, augmentation de la résistance au frottement du fluide) et une accélération de la corrosion (Xiong et Liu 2010). Les biofilms posent également des problèmes dans l'industrie pétrolière où la colonisation des systèmes d'injection d'eau durant la phase de récupération secondaire peut entraîner une acidification du pétrole (augmentation de l'activité des bactéries sulfatoréductrices et production d'H_2S) qui devient alors moins rentable et peut endommager les installations. La formation de biofilms dans le système de distribution d'eau potable en particulier par la bactérie *Legionella pneumophila* difficile à éliminer par l'ajout de chlore, diminue la qualité de l'eau et augmente les risques pour la santé (Barak 2006). La formation de biofilms sur les coques des navires, i.e., le "biofouling" (Coetser et Cloete 2005), conduit à une augmentation des forces de frottement, une diminution de la vitesse des bateaux et des surcoûts énergétiques considérables.

Si les exemples cités dessus soulignent l'impact néfaste de cette prolifération bactérienne, à l'inverse, les biofilms jouent un rôle écologique capital et contribuent très largement au bon fonctionnement de la plupart des écosystèmes en participant notamment au cycle du carbone et/ou de l'eau. D'ailleurs, depuis de nombreuses années, le traitement des eaux

usées s'effectue via l'utilisation empirique de l'activité épuratrice des biofilms bactériens.

Les biofilms jouent aussi un rôle essentiel dans de nombreux processus : ils contribuent à la production et à la dégradation de la matière organique, au recyclage de l'azote, du soufre et de nombreux métaux. La coopération métabolique établie au sein du biofilm permet de réaliser ces réactions qui requièrent l'action concertée de bactéries ayant différentes capacités métaboliques.

Parmi les applications environnementales où le biofilm joue un rôle essentiel, on peut citer la bioremédiation des sites pollués (Singh et al. 2006), (Al-Bader et al. 2013) ou encore la protection des aquiferes par l'aménagement des bio-barriére (Seo et al. 2009), (Huang et al. 2011). La bioremédiation consiste à traiter des déchets, nettoyer les sols, les eaux souterraines, les estuaires, ... en utilisant des microorganismes constituant des biofilms capables d'utiliser les matériaux polluants comme source de carbone et d'énergie. Ainsi, les biofilms sont employés pour traiter les eaux usées et les décharges, pour dépolluer des sites contaminés et enfin, pour mobiliser les métaux lourds d'un sol ou d'un déchet par le procédé de biolixiviation. De manière similaire, la bio-barrière est une technique de décontamination des eaux souterraines qui consiste à créer dans le sol une "zone" d'activité biologique agissant comme un filtre au passage de l'eau et permettant la biodégradation des contaminants par des biofilms. Un des défis majeurs communs à ces méthodes de dépollution est lié à une accumulation trop forte de biofilm dans certains pores (en particulier au voisinage de la source de pollution ou au sein de la bio-barrière). Cette accumulation de biofilm, en effet, conduit à une diminution de l'espace poral ce qui entraîne une diminution de la porosité et de la perméabilité du système tout en augmentant la dispersion hydrodynamique (Kone et al., 2014). A terme, ce mécanisme communément appelé "bioclogging", peut venir modifier le transport des composés organiques dissous en présence et donc fortement influencer la réussite de l'application des méthodes de bioremédiation dans des aquifères pollués. La connaissance précise de la formation et de l'évolution du biofilm au cours du temps est de ce fait importante pour ceux qui cherchent, soit à l'éliminer, soit à contrôler son développement, le tout pour des motifs techniques ou pour des raisons sanitaires.

1.4 La croissance de biofilm en milieu poreux : un problème multi-échelle

1.4.1 Disparité des échelles spatiales : Décrire le biofilm mais à quelle échelle ?

Une des principales difficultés dans la compréhension et la modélisation du transport de soluté en milieu poreux incluant une phase biofilm réside dans la multiplicité des phénomènes mis en jeu qui regroupent des échelles de temps et d'espace très différentes. En effet, les longueurs d'échelle caractéristiques impliquées dans l'étude de biofilm en milieux poreux sont extrêmement hiérarchisées. Elles varient de quelques nano-

mètre (polysaccharides EPS) en passant par des millimètres (épaisseur du biofilm), voire des centimètres, jusqu'à plusieurs centaines de mètres (longueur des hétérogénéités à grande échelle) (Figure 1.7).

Or, la modélisation mathématique des biofilms est crucial pour une compréhension plus complète de son comportement et de son évolution spatio-temporelle. Les modèles mathématiques peuvent non seulement être utilisés pour vérifier les résultats expérimentaux, mais aussi pour faire des prédictions qualitatives et quantitatives qui pourraient servir de lignes directrices pour la mise en mise en place des modèles expérimentaux.

L'enjeu pour la modélisation mathématique est de réussir à fournir une relation quantitative entre les composants du biofilm (les différents types microbiens, les substances polymériques extracellulaires ou EPS, la biomasse inerte ou morte, les substrats métaboliques pour toutes les espèces microbiennes, les produits mètaboliques issus des réactions qu'ils effectuent, l'alcalinité, le pH,....) et les processus (les réactions métaboliques, le transport des solutés et de la biomasse, les réactions acide/base, précipitation/dissolution, ainsi que les déformations physiques dues aux forces agissant sur le biofilm). Dans un tel contexte, la prise en compte de la structure hiérarchique du biofilm (0.5 à 10μm pour l'échelle bactérienne, une dizaine de nanomètres pour les chaines de polysaccharides hydratées constituant l'EPS alors que l'échelle d'épaisseur du biofilm peut être d'ordre millimétrique voire centimétrique) (Figure 1.7) dans les modèles constitue encore un réel défi.

Les modèles de biofilm sont conçus aussi bien à l'échelle macroscopique (échelle de l'aquifère ou du réacteur) en se basant sur les propriétés générales des biofilms formés dans un réacteur que dans un système mésoscopique (échelle du pore ou du biofilm), en utilisant les paramètres mesurables avec des outils adaptés (microscope et/ou microélectrodes). Cependant, le choix d'une telle échelle dépend, bien évidemment, de l'approche adoptée. Kreft et al. (1998) ont travaillé à l'échelle microscopique (échelle de la colonie) et on choisi une variation aléatoire des paramètres cellulaires pour simuler l'hétérogénéité de la taille cellulaire et le taux de croissance dans la culture. Un domaine de simulation 50×50 μm est donné comme exemple dans Kreft et al. (1998). D'autre approche se concentrent principalement sur l'hétérogénéité à l'échelle mésoscopique. À titre d'exemple, l'objectif de Picioreanu et al. (1998a) et de Picioreanu et al. (1998c) a été de décrire la formation d'hétérogénéité géométrique à la surface du biofilm. À cette fin, des domaines de calcul de taille au moins 1000-2000μm doivent être utilisés.

L'étude microscopique (mésoscopique) présente le désavantage d'être difficile à lier avec l'ensemble des propriétés dynamiques du système alors que l'étude macroscopique est difficile à interpréter sans un système expérimental très bien défini (van Loosdrecht et al. 2002). Les différentes échelles d'étude comportent chacune des inconvénients. L'échelle microscopique ne correspond pas à l'échelle caractéristique du processus d'écoulement en milieu poreux. À l'échelle macroscopique, en revanche, on peut perdre l'information sur la structure microscopique comme, par exemple, l'impact de la géométrie du biofilm (épaisseur locale du bio-

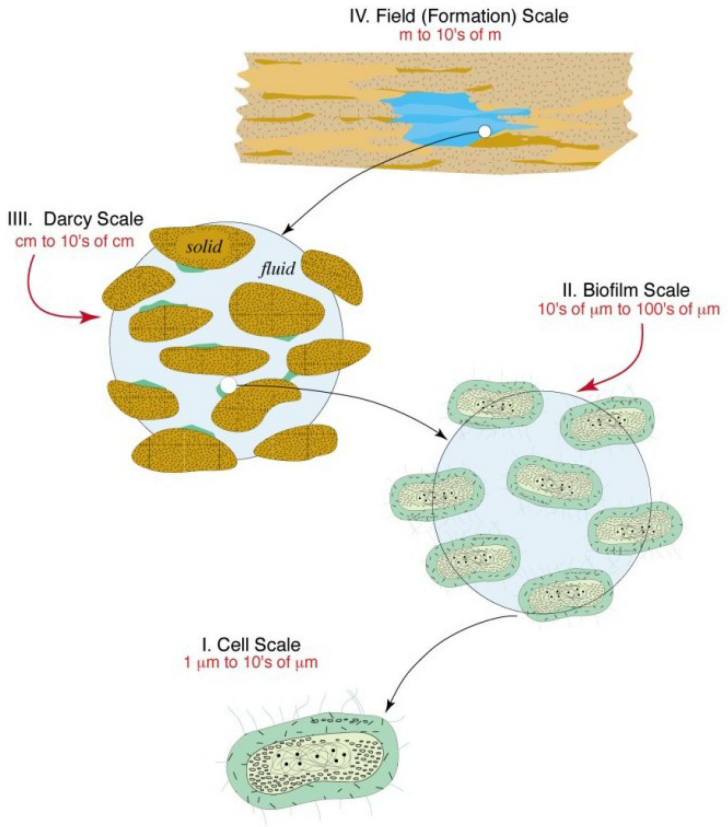

FIGURE 1.7 – *Les principales échelles impliquées dans la modélisation du biofilm en milieu poreux .*

film, surface d'échange) sur les propriétés effectives (dispersion, réaction macroscopique....) du milieu poreux. Dans un problème classique de transport de soluté en milieu poreux, on peut s'affranchir de cet biais au travers de l'utilisation de méthodes de changement d'échelle (e.g., Whitaker 1999). Sous réserve de connaitre précisément la microstructure du milieu, les propriétés effectives sont alors calculées à l'aide d'outils mathématiques pour une géométrie représentative donnée. Toutefois, la géométrie évolue ici au cours du temps sous l'effet de la production de biomasse. En conséquence, l'information locale (modification de la géométrie et de la rugosité du biofilm ...) liée à cet effet d'historicité, est totalement perdue à l'échelle de description macroscopique (Golfier et al. 2009, Ebigbo et al. 2013). Des alternatives existent (modèles hybrides ou mixtes, upscaling-downscaling) mais plus couteuses en temps de calcul.

Afin de mieux comprendre l'évolution de la structure de ces biofilms au sein du milieu poreux sous l'effet des conditions environnementales (vitesse d'écoulement, gradient de concentration, pH ...) et leur influence sur les propriétés hydrodynamiques du domaine macroscopique, nous nous limiterons par la suite aux modèles à l'échelle du pore.

1.4.2 Disparité des échelles temporelles et approximation quasi-stationnaire

Outre cette hétérogénéité des échelles spatiales, les processus impliqués dans la croissance du biofilm se produisent à des échelles de temps très différentes. Ces processus sont bien entendu fortement couplés : l'écoulement du fluide influe sur le transport du substrat (nutriment) qui régularise l'évolution spatiale (la croissance) du biofilm. Lorsque le biofilm se développe, la géométrie du milieu poreux change ce qui entraîne une modification de l'écoulement. Le couplage hydrodynamique - diffusion - réaction - croissance est donc plus que nécessaire (Picioreanu et al. 2000a).

Toutefois, comme souligné par Picioreanu et al. (2000a), l'échelle de temps caractéristique de croissance de la biomasse est bien plus grande que celle de la diffusion du substrat dans le biofilm qui est, elle-même, plus grande que celles caractérisant l'écoulement et le transport (voir Figure 1.8). Si l'ensemble des équations étaient résolues au plus petit pas de temps (de l'ordre de la seconde pour l'écoulement), les efforts en temps de calcul des modèles seraient beaucoup trop grands notamment pour modéliser la croissance du biofilm. Cette difficulté est généralement contournée dans les modèles numériques en utilisant une approximation quasi-stationnaire (e.g., Picioreanu et al. 2000a, Kapellos et al. 2007). L'idée est de tirer avantage de cette forte disparité temporelle en découplant les processus d'écoulement, de transport de masse et de croissance. Nous utiliserons cette approche par la suite dans ce travail.

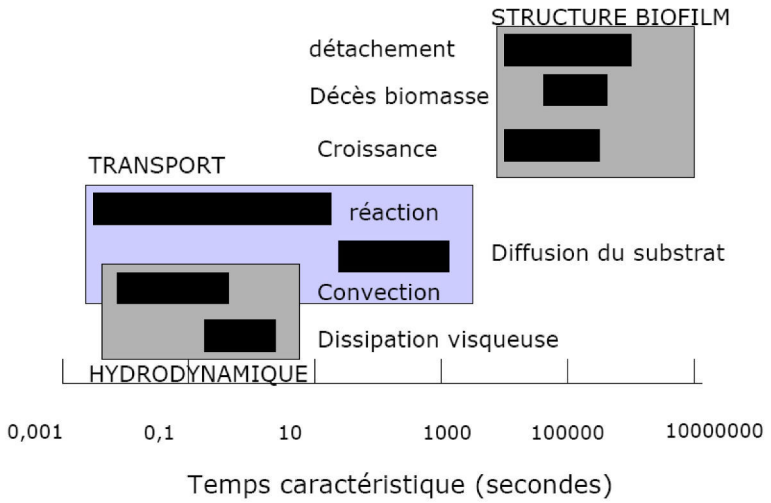

FIGURE 1.8 – *Processus et temps caractéristiques, (Picioreanu et al. 2000a)*

1.5 Modélisation de la croissance bactérienne à l'échelle du pore

Au cours des dernières, décennies, un vaste effort expérimental a été consacrée aux études sur la structure du biofilm et son évolution pendant

la croissance. En parallèle, l'intérêt pour la modélisation numérique des processus mis en jeu a fortement augmenté afin de reproduire les résultats expérimentaux observés et confirmer ou infirmer les hypothèses émises.

Si les premiers modèles numériques de croissance bactérienne se limitaient à prendre en compte la disponibilité du nutriment, ils se sont peu à peu complexifiés afin d'inclure l'influence des forces de cisaillement, les mécanismes d'adhésion, d'attachement - détachement et d'extinction (mort) des bactéries ainsi que des processus biophysico-chimiques de plus en plus complexes tels que le « quorum sensing » ou l'état physiologique des cellules et les effets de compétition entre populations bactériennes.

Dans la littérature, de nombreux modèles ont été développés depuis les années 90. Globalement, on peut distinguer deux approches possibles pour la modélisation d'un biofilm en milieu poreux : l'approche discrète (le modèle multi-agent et le modèle d'automate cellulaire) et l'approche continue avec une cinétique de Monod plus ou moins compliquée et des mécanismes cellulaires plus ou moins complexes (Wang et Zhang 2010) .

1.5.1 Les différents modèles de croissance du biofilm

1.5.1.1 Modèle continue

Le modèle continu est purement déterministe. Le domaine est divisé en une région fluide sans biomasse et une région associée à la phase biofilm dans laquelle toute la biomasse est considérée comme contenue (Fig.1.9). Cette approche repose sur l'idée que la croissance bactérienne engendre le développement d'un champ de pression à l'intérieur du biofilm. Appelé par Eberl et al. (2001) "pression de biomasse", ce champ constituerait d'ailleurs la force motrice du déplacement très lent et visqueux du biofilm (Wanner et Gujer 1986) et par conséquent l'apparition d'un champ de vitesses à l'intérieur du biofilm. Une idée similaire a été utilisée pour la première fois par par Wanner et Gujer (1986) dans la conception d'un modèle unidimensionnel pour définir le transport convectif de la biomasse et la vitesse du mouvement de l'interface fluide/biofilm. Les vitesses moyennes de la biomasse sont ainsi déterminées par des lois mécaniques et plus précisément par les équations d'Euler de la dynamique des fluides. Ce type de modèle peut décrire la dynamique d'un biofilms multi-substrat et multi-espèces en utilisant une approche continue et une frontière mobile. De cette façon, le modèle est capable de prédire des changements sur : l'épaisseur du biofilm, le comportement transitoire de la distribution spatiale des espèces microbiennes et des substrats dans le biofilm. Ces modèles ont apporté énormément dans la compréhension des interactions des espèces de bactéries dans les biofilms grâce à l'introduction du logiciel commercial Aquasim (Horn et Hempel 1997, Horn et al. 2003, Elenter et al. 2007). Différentes méthodes numériques peuvent être utilisées pour décrire le déplacement des interfaces : méthode des level set (Alpkvist et Klapper 2007), à champ de phase ou encore méthode VOF (Ebigbo et al. 2013).

Dockery et Klapper (2001) ont modélisé le biofilm en le considérant comme un fluide homogène, visqueux, incompressible et de masse volumique constante. L'ensemble du système (fluide et biofilm) est assimilé

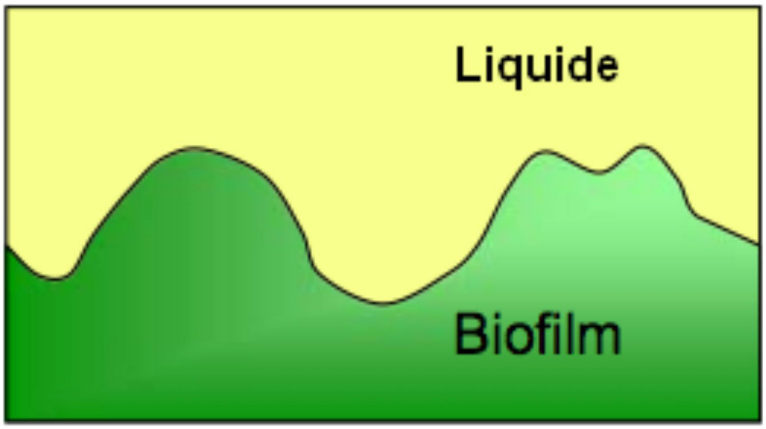

FIGURE 1.9 – *Représentation schématique de modèle continue*

à un écoulement à diphasiques très lent : la phase aqueuse est supposée quasi-stationnaire tandis que la phase biofilm est mobile. Alpkvist et Klapper (2007) ont étendu le travail de Dockery et Klapper (2001) en proposant un modèle continu multidimensionnel pour la croissance hétérogène des systèmes de biofilm avec plusieurs espèces et de multiples substrats, tout en conservant pour l'estimation du champ des vitesses la loi de Darcy. Le modèle a été testé pour deux systèmes : dans le premier cas, le biofilm est constitué d'une biomasse active et inerte avec l'oxygène en tant que substrat ; dans le second, le biofilm est constitué de bactéries hétérotrophes, autotrophes, et de matières inertes avec des substrats limités d'oxygène, d'acétate et d'ammonium.

Cogan et Keener (2004) ont proposé un modèle continu dans lequel le biofilm est traité comme un gel biologique constitué d'une substance polymérique extracellulaire (EPS) et de l'eau. Les bactéries "mêlées" dans le réseau, considérées comme des producteurs du polymère . augmentent la pression osmotique provoquant le gonflement ou la contraction du gels. Les conditions environnementales affectant la morphologie du biofilm sont ainsi intégrées dans la pression osmotique. Le modèle suppose que les principales forces qui induisent le mouvement du gel sont appliquées au solvant liquide et à l'EPS et fournissent un mécanisme de redistribution de la biomasse par le gonflement de l'EPS.

Les modèles continus ont l'avantage d'être purement déterministes, rigoureux, basés sur des lois et des EDP bien connues en physique. Par contre, ce type de modèles donne une vision macroscopique. Il est donc particulièrement adapté à des systèmes à grande échelle mais de facto, il n'est plus valable lorsque la taille représentative du volume élémentaire se rapproche de celle d'une cellule, de quelques bactéries ou encore de l'EPS. Par conséquent, les formes, les tailles, et, d'une manière générale, les interactions locales entre les organismes individuels ne sont pas directement prises en compte. L'implémentation de mécanismes biologiques complexes à travers des EDP est ainsi plus délicate et son application à l'échelle de quelques bactéries est discutable de par la description macro-

scopique du milieu.

1.5.1.2 Modèle multi agents

Le modèle multi-agent repose sur l'hypothèse que les propriétés d'un groupe d'individus sont déterminées par les comportements des individus (agent) le composant. Le premier modèle multi-agent pour la croissance de colonies bactériennes, appellé BacSim, a été developpé par Kreft et al. (1998) et étendu par Kreft et al. (2001) au cas d'une simulation multi-espèces. Il s'agit d'un modèle centré sur le comportement individuel (ou d'un petit groupe) de bactérie (prise en compte des propriétés individuelles ou d'un petit groupe) où les agents sont les bactéries elles-mêmes. Dans ce modèle, tous les processus sont éxecutés au niveau de la cellule bactérienne et non sur une grille prédéfinie comme c'est le cas dans le modèle d'automate cellulaire. Dans le cadre du modèle multi-agents on modélise séparément la croissance et le comportement d'individus bactériens comme agents autonomes et la diffusion-réaction des solutés. Chaque bactérie est modélisée comme une sphère (Figure 1.10) et la consommation de substrat est décrite par une loi de Monod avec limitation par le substrat et le produit. Chaque cellule se développe en consommant le substrat et se divise lorsque le volume atteint un seuil critique. Les divisions cellulaires suivent le modèle de Donachie et Robinson (1996) qui détermine le volume cellulaire au moment de la division. La nouvelle sphère "fille" reste en contact avec la sphère mère selon une direction choisie au hasard. L'étape suivante est la propagation de la biomasse qui se produit en poussant les sphères dès qu'ils deviennent trop proches les uns aux autres. Dans ce cas, la pression qui s'accumule en raison de la croissance de la biomasse est détendue en réduisant au minimum le chevauchement des sphères. Pour chaque particule, la somme vectorielle de tous les rayons de chevauchement avec des particules voisines est calculée, puis la particule est déplacée dans la direction opposée à la direction de ce vecteur.

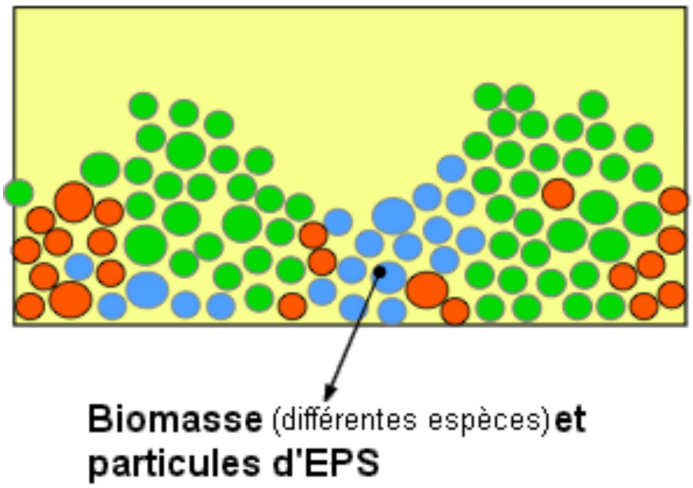

FIGURE 1.10 – *Représentation schématique de modèle multi-agent où chaque cercle modélise une cellule*

Plusieurs améliorations ont été apportées à ce modèle. Ainsi, Kreft et

Wimpenny (2001) ont ajouté au modèle de croissance les substances polymériques extracellulaires (EPS) tandis que, Xavier et al. (2005b) ou Xavier et al. (2005a) ont devolopé une méthode de détachement plus avancée en permettant à chaque agent de contenir plusieurs composants (e.g., la biomasse active et inactive, des polymères de stockage, des poly-hydroxyalcanoates, du glycogène), dont chacun peut subir différentes bioconversions spécifiques.

Les modèle multi-agents ont la capacité de prédire plusieurs caractéristiques structurelles des biofilms qui semblent correspondre à des observations expérimentales : (i) la croissance principalement clonale des bacéries dans les biofilms (la multiplication des cellules immobilisées conduit à des amas de cellules isogéniques ou microcolonies clonales) Kreft et al. (2001), (ii) la forme et la localisation de microcolonies interagissant avec des membres communautaires (Picioreanu et van Loosdrecht 2004, Alpkvist et al. 2006, Batstone et al. 2006) et (iii) la consolidation temporelle de biofilms avec la profondeur (Alpkvist et al. 2006).

Les modèles multi-agents ont été également appliqués avec succès pour décrire et optimiser divers biofilms et des applications sur des réacteurs granulaires (Picioreanu et al. 2005, Xavier et al. 2005b; 2007, Batstone et al. 2006, Matsumoto et al. 2007; 2010). Des stratégies de contrôle du biofilm basées sur la perturbation de la matrice EPS ont également été étudiées (Xavier et al. 2005a). L'utilisation de modèle multi-agent est pertinent si l'intérêt est porté aux interactions entre les individus à l'échelle microscopique (Hellweger et Bucci 2009, Laspidou et al. 2010), car elle aboutit à des modèles biologiquement plus réalistes compte tenu de la possibilité de travailler à une échelle de quelques bactéries et la facilité de prendre en compte les mécanismes cellulaires. La connaissance empirique du système et sa biologie peut directement être utilisée comme les racines des mécanismes élémentaires du modèle multi-agent. Néanmoins, elle nécessite des temps de calcul très longs surtout dans une configuration $3D$ (von der Schulenburg et al. 2009) car les vitesses de réaction sont déterminées par les agents et les concentrations des différents solutés sont estimées à chaque pas de temps. Lorsqu'un agent change sa position, sa biomasse, ses propriétés variables et fixes, le nombre de particules sera en même temps, modifié. Cela signifie également que ces modèles sont mieux adaptés à l'étude de populations relativement petites.

La Figure 1.11 présente un exemple d'une simulation $3D$ du modèle multi-agent sur la croissance temporelle d'un biofilm composé de trois espèces bactériennes.

1.5.1.3 Modèle de l'automate cellulaire

Dans le modèle d'automate cellulaire, l'espace est divisé en "cellules" considérées comme des entités individuelles (Yamamoto et Ueda 2013, Laspidou et al. 2012), qui peuvent prendre plusieurs états possibles (e.g., solide, fluide ou biofilm). L'état d'une cellule est déterminé par l'état précédent de ses voisines. Le biofilm est considéré comme des cellules unitaires contenant de l'EPS, de l'eau et des bactéries. Chaque cellule se développe en consommant le substrat et, si la concentration de la biomasse

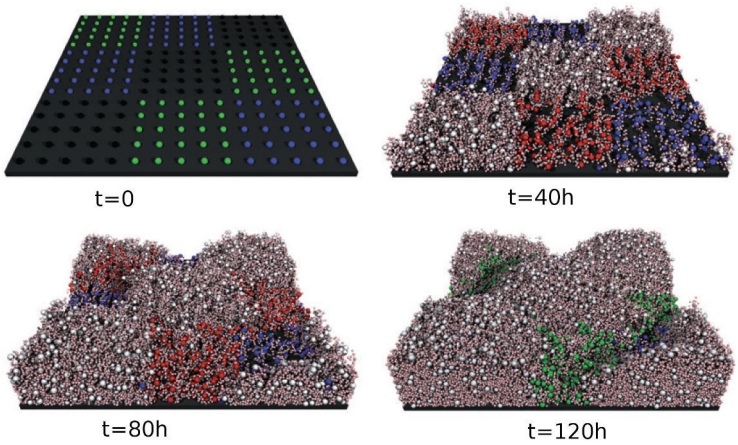

FIGURE 1.11 – *simulations 3D de la structure de buifilm par le modèle multi agent.*

atteint une valeur seuil, l'automate cellulaire répartit l'excédent de biomasse dans les cellules voisines (Figure 1.12).

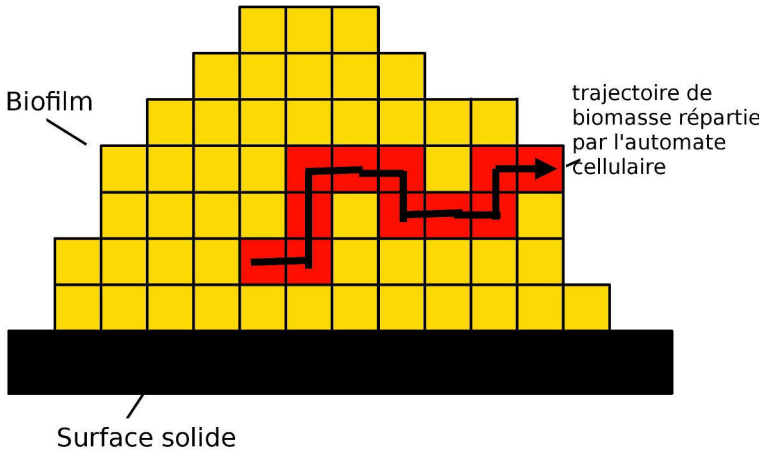

FIGURE 1.12 – *Croissance de biofilm (automate cellulaire)*

Pour un biofilm mono-espèce, les modèles d'automate cellulaire et les modèles continus donnent des résultats qualitativement similaires. Pour des biofilms multi-espèces les résultats deviennent par contre significativement différents (Picioreanu et van Loosdrecht 2000, Pizarro et al. 2001, Noguera et Picioreanu 2004, Wanner et al. 2006). Ces différences sont principalement dues aux règles arbitraires utilisées par l'automate cellulaire portant sur la répartition de la biomasse (Noguera et Picioreanu 2004). L'automate cellulaire permet de définir des lois de croissance différentes en fonction de la biologie..(Schindler et Rataj 1992, Schindler et Rovensky 1994, Fujikawa 1994) ont utilisé un modèle d'automate cellulaire du type DLA (Diffusion Limited Aggregation) et un modèle de marche aléatoire pour décrire, d'une part, les colonies bactériennes et d'autre part intégrer des lois de croissance relativement complexes comme celle observées sur des plaques d'agar-agar. Cependant, ces modèles sont relativement limités car ils ne prennent pas en compte des effets de base comme par exemple, la dépendance nutritive. Un modèle plus réaliste pour la croissance des

colonies bactériennes a été présenté par (Ben-Jacob et al. 1994) qui ont inclus la croissance de micro-organisme dans un champ de gradient du substrat. Wimpenny et Colasanti (1997) ont publié une première application de l'automate cellulaires à la modélisation du biofilm. Leur modèle basé sur les travaux de (Colasanti 1992), compare des modèles de DLA puisque la croissance est considèré seulement à la surface de la biomasse où les cellules inoccupées sont disponibles et non pas à l'intérieur de la structure de biofilm. Plusieurs modèles ont été développés depuis, implémentant la croissance à la fois sur la surface et à l'intérieur de la structure du biofilm, (Hermanowicz 1998, Picioreanu et al. 1998c, Hermanowicz 2001, et B.E. Rittmann 2004, Laspidou et al. 2005, Khassehkhan et al. 2009, Q. Liao 2012, Laspidou et al. 2012). Bien que l'idée générale soit la même, les règles de répartition de la biomasse diffèrent d'un modèle à l'autre.

Deux algorithmes de répartition de biomasse sont souvent utilisés dans la littérature. Picioreanu et al. (1998a) et Picioreanu et al. (1998c) divisent en deux parts égales la biomasse de la cellule lorsque la valeur seuil est atteinte. Cette biomasse est ensuite redistribuée, parmi les quatre cellules adjacentes (configuration 2D), à une cellule inoccupée par la biomasse. Si plusieurs cellules voisines se trouvent dans ce cas, la cellule de destination est choisie de manière aléatoire. Si toutes les voisines sont déjà occupées par de la biomasse, alors la nouvelle cellule contenant la moitié de la biomasse va déplacer une cellule voisine choisie au hasard. Cette approche, correspond à une approche de "poussée" simple, où le test sur les voisines regarde tout simplement leur état, i.e., inoccupé ou non sans se préoccuper de la concentration en biomasse ou en nutriment. Cette approche de poussée produit cependant trop de mélange interne (dispersion) des espèces au sein d'une colonie et a aboutit à une réepartition homogène des espèces (Picioreanu et van Loosdrecht 2000, Wanner et al. 2006). Ce modèle a été amélioré par Picioreanu et al. (2001) afin d'y implémenter des phénomènes plus détaillés sur le comportement du biofilm (érosion, mue, attachement,...). Depuis son développement, ce modèle a été largement accepté par la communauté scientifique et appliqué avec succès à des résultats expérimentaux. Quelques versions modifiées de cette approche ont été également proposées. A titre d'exemple, on peut citer le modèle de Eberhard et al. (2005). Ce modèle considère l'hypothèse suivante : pour qu'une cellule se divise, elle doit avoir consommé suffisamment de substrat (en fait, ce n'est pas la concentration en biomasse produite qui est la variable de référence mais le substrat consommé). Si la quantité cumulée de substrat consommé est supérieure à la valeur seuil de substrat requise pour la division, alors la cellule se divise : une nouvelle cellule fille est crééée et sa localisation est désignée aléatoirement parmi les 26 voisines (en 3D) de la cellule mère. Si la voisine sélectionnée est occupée alors la cellule fille la déplace dans la même direction (poussée) jusqu'á ce qu'une cellule libre soit trouvée. Laspidou et al. (2010) ont proposé de choisir la cellule inoccupée la plus proche de la cellule où la valeur seuil est atteinte par le calcul des distances euclidiennes entre la cellule en question et les celllules inoccupées. S'il existe plusieurs cellules d'équidistances identiques, le choix est fait de manière aléatoire, la nouvelle biomasse étant placée dans une cellule voisine choisie aléatoirement

en "poussant" la biomasse existante le long du chemin le plus court identifié par l'algorithme. Due à la division effectuée dans l'approche "poussée", la concentration et la distribution de la biomasse ne sont pas spatialement continues. Pour les rendre continues, une autre approche a été envisagée par Noguera et al. (1999) et Knutson et al. (2005) qui proposent de répartir uniquement la part de biomasse supérieure à la valeur seuil aux cellules voisines inoccupées, Cette approche peut être appelée approche de "biomasse excédentaire". Les mécanismes les plus significatifs contrôlant le développement de la biomasse sont les forces de cisaillement et le taux de dégradation du substrat. La biomasse ne peut être répartie que dans une maille où la contrainte de cisaillement est inférieure à une valeur donnée.

Tang et Valocchi (2013) ont combiné le modèle de "poussée" proposé par Laspidou et al. (2010) avec le modèle de "biomasse excédentaire" développé par Noguera et al. (1999). Ainsi, au lieu de répartir la moitié de la biomasse comme dans l'approche "poussée" (Laspidou et al. 2010), ils ont réparti seulement la biomasse en axcès comme dans l'approche "biomasse excédentaire" Noguera et al. (1999). Ensuite, au lieu de sauter les cellules voisines occupées comme dans l'approche de "biomasse excédentaire", le surplus de biomasse sera réparti dans les cellules voisines en suivant l'approche du chemin le plus court. La Figure 1.13 donne un aperçu sur les trois approches de l'automate cellulaire.

Ce modèle présente l'avantage qu'il peut aisément prendre en compte les différents mécanismes cellulaires en facilitant l'implémentation des conditions aux limites et de la géométrie du système. En revanche, il est moins bien adapté à des biofilms multi-bactériens et est plus sensible à l'effet de l'orientation d'un maillage cartésien (4 ou 8 en $2D$, et 6 ou 12 ou 18 en $3D$). Le résultat final du modèle est ainsi fortement dépendant des lois introduites pour l'automate cellulaire, en particulier au niveau de la distribution aléatoire de la biomasse excédentaire. Cette distribution peut conduire à des résultats numériques en bon accord avec les attentes expérimentales, mais il est toujours souhaitable d'avoir une méthode déterministe.

La Figure 1.14 montre un exemple des trois modèles précédemment évoqués en $2D$ et $3D$. Les trois modèles simulent la formation d'un biofilm en forme de doigts.

1.5.2 Quelle approche adopter ?

Sur la base de cet état de l'art et compte tenu de notre objectif d'étendre le modèle à des systèmes plus complexes (conditions multiphasiques à proximité de la source en particulier), nous avons opté pour une approche de type «automate cellulaire» en raison de sa grande souplesse. Un des principaux défauts de cette approche liée à la taille de la maille élémentaire de l'automate (qui contraint la variation d'épaisseur du biofilm lors du processus de répartition de biomasse) sera compensé par l'utilisation de méthodes numériques performantes adaptées à des maillages non conformes (cf. Chapitre 2 et 3). Même si une description plus poussée du modèle développé sera donnée dans le Chapitre 3, un algorithme global

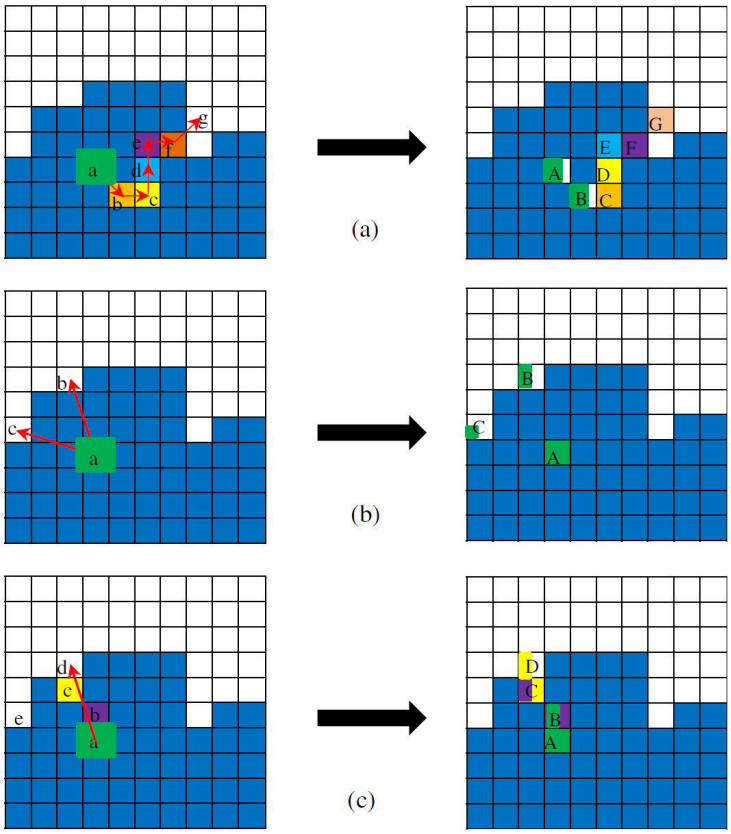

FIGURE 1.13 – *Illustration des différentes approches de la répartition de biomasse par l'automate cellulaire (1) approche "poussée", Picioreanu et al. (1998c), (2) approche "biomasse excédentaire", Noguera et al. (1999) (3) approche Tang et Valocchi (2013). Les mailles colorées sont du biofilm et les mailles blanches sont du fluides (cellules inoccupées).*

de cette modélisation couplée est exposé sur la Figure 1.9. L'analyse de cette figure fournit déjà une bonne représentation du schéma général de résolution du développement d'un biofilm à l'échelle du pore :

1. Les équations stationnaires d'écoulement sont résolues afin de calculer les champs de vitesse, de forces de cisaillement et de pression pour une géométrie donnée.
2. La connaissance du champ des vitesses permet de résoudre l'équation de transport du substrat au sein de la phase fluide et du biofilm à l'état stationnaire.
3. La concentration en substrat ainsi calculée servira pour résoudre l'équation de cinétique de croissance de la biomasse afin d'estimer la nouvelle quantité de biomasse au temps $t + 1$.
4. Dans une dernière étape, il faut redistribuer spatialement la biomasse éventuellement produite lorsque sa masse volumique dépasse une valeur maximale en tenant également compte de la biomasse détruite par détachement.
5. Cet algorithme est répété sur toute la durée de la simulation. Si la géométrie du biofilm est modifiée par la croissance ou le déta-

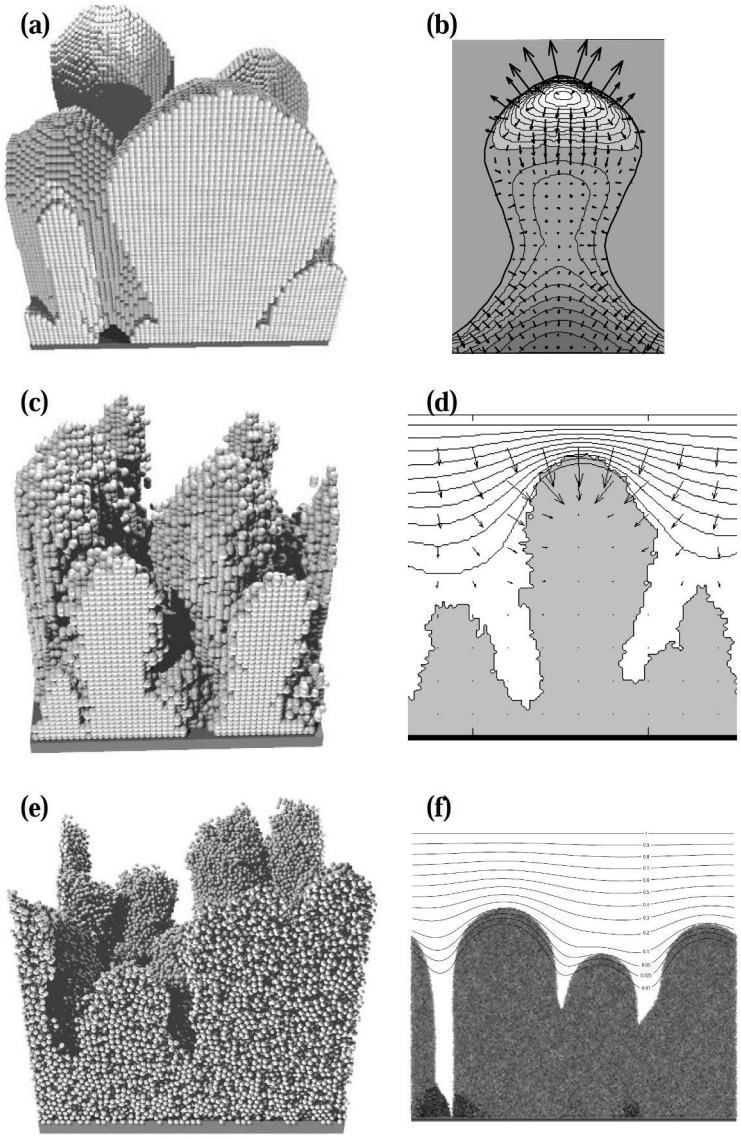

FIGURE 1.14 – *(a) modèle continue 3D, Eberl et al. (2001) (b) modèle continue 2D, Dockery et Klapper (2001). Le contour montre la haute pression de biomasse (blanche) à l'extrémité de biofilm et basse pression (gris foncé) à la base, ainsi que le champs de vitesse d'advection de biofilm (c) modèle automate cellulaire 3D, (Picioreanu et al. 1998a) (d) modèle automate cellulaire 2D, (Picioreanu et al. 1998a). Le contour montre les lignes égales de concentration du substrat et le champs de vecteurs de flux de substrat beaucoup plus élevés à l'extrémité de biofilm (e) modèle multi-agent 3D (Picioreanu et al. 2004) (f) modèle multi-agent 2D, (Krefta et al. 2001). Les ligne iso-concentration montre une formation semblable à des doigts en cas de limitation du substrat dans les couches profondes du biofilm.*

chement, l'algorithme est repris à partir de l'étape 1. Dans le cas contraire, il est repris à partir de l'étape 2.

1.6 Objectifs et organisation du manuscrit

Une meilleure compréhension des interactions mis en jeu entre les processus de croissance des biofilms, du transport de soluté et de l'écoulement et une modélisation rigoureuse de ce processus de croissance à l'échelle du pore est un enjeu essentiel à une prédiction plus fine du devenir des polluants dans les sols.

Dans ce contexte, l'objectif de la thèse est de s'intéresser aux mécanismes qui contrôlent le développement du biofilm en milieu poreux et à son impact sur les propriétés hydrodynamiques de la matrice poreuse. En effet, le développement/ détachement du biofilm conduit à une augmention/diminuation de l'espace poral ce qui entraîne une variation de la porosité et de la perméabilité du milieu poreux avec des effets plus ou moins notables sur la dispersion hydrodynamique.

L'objectif de ce travail consistera donc à modéliser ce phénomène de croissance à l'échelle du pore en intégrant les différents mécanismes qui favorisent le développement bactérien (prolifération des bactéries, assimilation des nutriments pour synthétiser de nouveaux matériaux cellulaires, attachement des cellules et production d'EPS qui servent aux nombreuses fonctions comme l'adhésion des bactéries) ou, inversement, son ralentissement (e.g., détachement des cellules dû à l'abrasion, l'érosion, la mue et la prédation).

Ce manuscrit est organisé comme suit :

Dans le **Chapitre 2**, nous présentons l'approche de modélisation adoptée pour décrire l'écoulement et le transport de soluté dans des milieu poreux évolutifs. Nous combinons ici une méthode IBM (Immersed Boundary Method) à une méthode LBM (Lattice Boltzman Method) pour le calcul de l'écoulement $3D$ à l'echelle du pore. Cette méthode (IB-LBM) est couplée avec deux méthodes de volumes finis (Volume Of Fluid et la méthode de reconstruction d'interface) pour résoudre le transport des espèces chimiques. L'intérêt de la méthode IB-LBM est de pouvoir bénéficier de la précision de la formulation Lattice-Boltzmann tout en travaillant sur un maillage fixe.

Le **Chapitre 3** est dédié à la description du modèle de croissance bactérienne en milieux poreux. Basé sur un modèle d'automate cellulaire préliminaire (Cuny 2014) développé précédemment au sein du laboratoire, celui-ci sera présenté en insistant sur les améliorations apportées. Une validation du modèle d'écoulement (IB-LBM) - transport (VOF) - croissance bactérienne (automate cellulaire) sera menée par une comparaison quantitative avec des "benchmarks" issus de la littérature. Ce chapitre se terminera par une application sur un milieu poreux complexe. Enfin, dans le **Chapitre 4**, nous étendons le modèle à la prise en compte d'une nouvelle phase non-miscible afin de caractériser le comportement des bactéries à

proximité de la source de pollution. Il s'agit d'une phase NAPL pure présente sous forme de gouttelettes et qui est biodégradée (par oxydation ou réduction) par les bactéries présentes au sein du milieu. Notre intérêt se portera sur l'impact du développement bactérien sur la dissolution du NAPL piégé et «l'effet retour» éventuel de la présence de polluants organiques à proximité du biofilm sur sa croissance (effet inhibiteur lié à la toxicité des contaminants pour les bactéries).

2 Modélisation de l'écoulement et du transport dans des milieu poreux évolutifs

Sommaire

2.1 Introduction 31
2.2 "Numerical Efficiency Assessment of IB-LB Method for 3D Pore-scale Modeling of Flow and Transport" par M. Benioug, F. Golfier, A.-J. Tinet, M.A. Buès et C. Oltéan - *Transport in Porous Media* (2015) 33

2.1 Introduction

L'évolution temporelle d'un milieu poreux sous l'effet des processus physico-chimiques (e.g., altération, précipitation des phases minérales dans les roches) ou de l'activité biologique (croissance de biofilm bactérien, bio-obstruction des pores) constitue encore à l'heure actuelle un défi scientifique majeur d'un point de vue de la modélisation numérique. Les variations locales de la géométrie du domaine (obstruction ou élargissement des pores) induisent en effet une chenalisation de l'écoulement et du transport qui va évoluer au cours du temps. Une modélisation à l'échelle du pore peut nous aider à comprendre cette évolution géométrique. Une des premières étapes dans la construction d'un modèle de croissance bactérienne en milieu poreux va donc constituer à déterminer et évaluer les méthodes numériques les plus adaptées pour résoudre ce type de défi.

La modélisation numérique des processus hydrodynamiques à petite échelle a connu ces dernières années un intérêt croissant lié à l'accroissement des puissances de calcul (calcul HPC, cluster GPU), aux développements en imagerie 3D ainsi qu'à l'essor de nouvelles méthodes numériques performantes telles que la méthode de Lattice Boltzmann (LBM). Cette méthode consiste à considérer le fluide comme des particules fictives qui se déplacent de nœud en nœud sur un réseau prédéfini. À chaque pas de temps, les particules peuvent se propager d'un nœud à un nœud voisin ou rester sur place, et avoir des collisions entre elles en respectant les conditions de conservation de la masse et de quantié de mouvement. Les mouvements microscopiques des particules sont modélisés par des fonctions appelées les fonctions de distributions, qui définissent les valeurs macroscopiques (vitesse, pression) à chaque nœud du réseau ; les régles spécifiques d'interaction de particules étant fixées de sorte que les équations de Navier-Stokes soient satisfaites.

Si les LBM sont particulièrement bien adaptées aux milieux poreux Talon et al. (2012), la prise en compte de géométries évolutives est plus délicate compte tenu de sa nature cartésienne. Différentes méthodes numériques - lagrangiennes ou eulériennes - ont été développées autour de ces aspects (méthode de capture du front, méthode d'interface diffuse de type "Level Set" ou Volume Of Fluid) mais elles restent souvent peu adaptées à des modélisations $3D$ à l'échelle du pore (temps de calcul, remaillage parfois nécessaire, problème de gain ou de perte de masse) et difficile à coupler avec le LBM. Dans ce contexte, la méthode cartésienne des frontières immergées *(Immersed Boundary* ou *IB)* apparaît comme une alternative très prometteuse. Cette méthode nous permet de conserver le même maillage tout au long de la simulation et d'éviter de remailler le domaine lorsque le corps de l'obstacle n'est plus aligné avec le maillage (point particulièrement critique dans des systèmes où la géométrie évolue avec le temps, tel que par exemple pour la croissance de biofilm en milieu poreux).

La méthode de frontière immergée considère la structure solide comme baignant dans le fluide. On suppose alors que la structure agit sur le fluide

par l'intermédiaire d'une force singulière de Dirac portée le long de l'interface. Ainsi, seule l'équation pour le système fluide est à résoudre (avec un terme supplémentaire). Cette force est singulière dans le sens où elle ne s'applique qu'à la frontière du domaine fluide. En général, nous pouvons distinguer deux approches de la méthode des "frontières immergées" : l'approche "continuous forcing" et l'approche "discret forcing". L' approche "continuous forcing" modélise le terme de forçage par une fonction continue. Cette modélisation ne dépend pas de la discrétisation ce qui laisse un grand choix dans les schémas de discrétisation. A l'inverse, l'approche "discret forcing" calcule le terme de forçage de manière explicite ou implicite après l'étape de discrétisation, le calcul est alors fortement dépendant du schéma numérique adopté. Bien que l'approche continue semble plus attractive à cause de la grande liberté dans le choix des schémas, l'approche discrète permet un contrôle direct de la précision numérique et de la stabilté.

Dans l'article qui constitue la suite de ce Chapitre, nous examinons les gains de précision et de temps de calcul liés à l'utilisation de la méthode des frontières immergées avec l'approche LBM (ou modèle *IB-LB*) pour modéliser l'écoulement ainsi que le couplage avec le transport de solutés dans un milieu poreux évolutif à l'échelle du pore. Le temps caractéristique de l'évolution de la structure de pore est supposé beaucoup plus importante que le temps caractéristique des processus d'écoulement et de transport, ce qui est une hypothèse classique dans les problèmes de croissance bactérienne en milieu poreux. Par conséquent, l'évolution de la structure des pores est considérée quasi stationnaire et représentée par des géométries différentes, décrivant les différentes étapes de l'évolution de la structure de la matrice solide au cours du temps. Un modèle de lattice Boltzmann $3D$ couplé avec un modèle de frontières immergés de type "direct forcing" est utilisé pour le calcul de l'écoulement du fluide. Deux différents termes de forçage sont comparés et leurs effets sur le coût en terme de temps de calcul et sur la précision liée à l'utilisation d'un maillage non conforme sont analysés.

Dans un second temps, les parois de pores sont supposés recouverts par une couche perméable (typiquement, dans notre cas, un biofilm) qui réagit avec l'espèce chimique en solution et évolue au cours du temps sous l'effet de cette réaction. Nous examinons ici l'impact de deux méthodes aux frontières immergées appliquées au transport d'un soluté réactif. L'équation de transport est discrétisée à l'aide d'un schéma aux volumes finis et nous comparons la précision d'une méthode de type *Volume Of Fluid (VOF)* basée sur une approche d'équilibre local avec celle de la méthode par reconstruction d'interface. Cette confrontation est faite pour différentes valeurs du nombre de Damköler et pour différents maillages.

La méthode VOF est basée ici sur une hypothèse d'équilibre local, i.e. sur l'approximation que le comportement du système est proche de l'équilibre thermodynamique. En supposant, en effet, que le temps caractéristique pour le transport est du même ordre de grandeur dans les deux régions, fluide et biofilm, et que le temps caractéristique de la

cinétique de réaction est grand, la condition d'équilibre de masse local est valide. En d'autres termes, les gradients de concentration aux voisinages de l'interface sont suffisamment petits. La concentrations ne varie pas de manière significative *à l'échelle de la maille immergée*. Par conséquent, une seule et même concentration peut être définie pour les deux phases. Cette approximation conduit à un modèle de transport à une seule équation valable partout dans le domaine et dont les propriétés vont dépendre de la fraction volumique propre à chacune des deux phases. Cette méthode est appliquée dans le chapitre suivant pour modéliser le transport d'un soluté réactif en présence d'une phase biofilm.

L'approche par reconstruction de l'interface est plus coûteuse mais peut être utilisée même en cas de condition de fort non-équilibre local ou si une estimation précise des flux aux interfaces est nécessaire. Cette méthode implicite conduit à reconstituer les flux des interfaces pour les mailles traversées par une frontière immergée. Cette étape de reconstruction, qui peut être particulièrement délicate en $3D$, est tout à fait directe et aisée dans notre cas, en raison de l'hypothèse simplificatrice effectuée sur la forme de l'interface (interface plane par morceaux). Une interpolation linéaire est utilisée ici pour recalculer correctement les flux. Cette approche est utilisé dans le chapitre 4 pour modéliser la biodégradation d'une phase NAPL (Non Aqueous Phase Liquid) en milieu poreux.

2.2 "Numerical Efficiency Assessment of IB-LB Method for 3D Pore-scale Modeling of Flow and Transport" par M. Benioug, F. Golfier, A.-J. Tinet, M.A. Buès et C. Oltéan - *Transport in Porous Media* (2015)

Author's personal copy

Transp Porous Med
DOI 10.1007/s11242-015-0497-6

Numerical Efficiency Assessment of IB–LB Method for 3D Pore-Scale Modeling of Flow and Transport

M. Benioug[1] · F. Golfier[1] · A.-J. Tinet[1] · M. A. Buès[1] · C. Oltéan[1]

Received: 18 July 2014 / Accepted: 4 April 2015
© Springer Science+Business Media Dordrecht 2015

Abstract In many earth science and environmental problems, the fluid–structure interactions can affect the hydrodynamics properties of the porous medium via the spatial evolution of its solid matrix. A significant insight into these properties can be obtained from pore-scale simulations. Using a 3D pore-scale domain with moving walls, we proposed in this paper a comparison of the numerical accuracy between different approaches in regard to flow and reactive transport. Two direct-forcing immersed boundary (IB) models coupled with lattice Boltzmann method (LBM) are evaluated for the flow calculation against an analytical solution. The IB–LBM showed improvement compared to the classical and interpolated bounce-back lattice Boltzmann model. Concerning the reactive transport, the most accurate IB–LB method was coupled with two non-boundary conforming finite volume methods (volume of fluid and reconstruction). The comparative study performed with different mesh sizes and Damköhler numbers demonstrates better results for the reconstruction method.

Keywords Lattice Boltzmann · Immersed boundary method · Reconstruction method · Volume of fluid · Porous medium

List of symbols

c	Lattice speed
c_f, c_r	Solute concentrations in Ω_f, Ω_r
c_s	Speed of sound
Da	Damköhler number

This work was partially supported by the French National Research Agency (ANR) through the MOBIOPOR project, with the reference ANR-10-BLAN-0908 and by the French Scientific Interest Group-Industrial Wasteland (GISFI) program.

M. Benioug
marbe.benioug@univ-lorraine.fr

1 GeoRessources lab., Université de Lorraine, CNRS, CREGU, 54518 Vandœuvre-lès-Nancy Cedex, France

Published online: 23 April 2015

Author's personal copy

Δx	Space step
Δt	Time step
D_f, D_r	Diffusion coefficients of solute in Ω_f, Ω_r
$\mathbf{e}_k$	D3Q19 velocity vector
f_{k}	Distribution function
$f_{\mathrm{k}}^{\mathrm{eq}}$	Equilibrium distribution function
k_{r}	First-order kinetic rate constant
IB	Immersed boundary model
IB–VOF	Immersed boundary with volume of fluid method
IB–REC	Immersed boundary with reconstruction method
LBM	Lattice Boltzmann model
LBM–FBB	Lattice Boltzmann model with full-way bounce-back scheme
LBM–IBB	Lattice Boltzmann model with interpolated bounce-back scheme
LBM–FV	Lattice Boltzmann model with finite volume method
l_f, l_r	Characteristic lengths of Ω_f, Ω_r
μ	Kinematic viscosity
Ω_f	Fluid domain
Ω_r	Reactive domain
p	Pressure
Pe	Péclet number
ϕ	Ω_r volume fraction in Ω
REC	Reconstruction method
ρ	Density
τ	Relaxation time
$\mathbf{u}$	Velocity vector
VF	Finite volume method
V_m	Average velocity in fluid phase
VOF	Volume of fluid method
w_k	Weighting factor

1 Introduction

Temporal evolution of a porous medium under the influence of physical–chemical processes (e.g., alteration, precipitation of mineral phases in the rocks) or biological activity (growth of bacterial biofilm, bio-clogging of the pores) and the related impact on its effective properties (permeability, effective surface area, etc.) represents a challenging issue from both modeling and computational perspectives (Willingham et al. 2008; Yoon et al. 2012). Underground gas storage (Kang et al. 2010; Ebigbo et al. 2013), ore deposit formation (Zhao et al. 2014), in situ bioremediation (Thullner et al. 2002), heap leaching or salt mining (Luo et al. 2014) are a few examples of subsurface applications that motivate the growing interest for this kind of problem. If the modeling effort on these systems has been largely devoted initially to their macroscopic behavior where the Darcy law remains valid, a specific attention has been more recently given to the pore-scale physics. Indeed, local variations in the geometry of the domain (obstruction or extension of pores) lead to channeling of the flow and species transport which will evolve in a complex way with time. Thus, the hydrodynamic properties of the porous medium at a specified time may be path dependent of all the geochemical history. A significant insight into these properties can be gained from pore-scale simulations.

Author's personal copy

More generally, recent advances on computational resources and the development of more efficient numerical methods such as lattice Boltzmann methods (LBM) have permitted simulations on complex and more realistic pore structures (e.g., obtained from X-ray tomography). lattice Boltzmann method (He and Luo 1997; Chen et al. 1992; Qian et al. 1992; Benzi et al. 1992; Chen and Doolen 1998) is well suited to complex geometries and parallelization of the algorithm.

However, the intrinsic Cartesian nature of LBM makes it not adapted to time-evolving geometries. Numerical techniques broadly categorized as boundary and non-boundary conforming methods have been developed to address this issue.

The first class of approaches (Tsiveriotis and Brown 1992; Mateescu et al. 1996; Dimakopoulos and Tsamopoulos 2003; Luo and Bewley 2004) aims at maintaining the computational mesh aligned with the physical boundaries. The most classical of these boundary conforming methods is probably the Arbitrary Lagrangian–Eulerian (ALE) approach (Oltean et al. 2013; Chew et al. 2006; Anderson et al. 2004; Hu et al. 2001). In the ALE approach, the nodes of the mesh can be moved, as in the Lagrangian method, or kept fixed, as in the Eulerian description to coincide continuously with the solid domain. If such methods usually work well for simple fluid–structure interactions (e.g., single moving body), the computational cost involved in adapting the body-fitted mesh at any time becomes high for complex geometries, particularly in 3D, and leads to degrade the accuracy of the numerical schemes.

This drawback has motivated the development of non-boundary conforming methods. This category includes the volume of fluid method (Hirt and Nichols 1981), level-set method (Peng et al. 1999), front tracking (Ramaswamy and Kawahara 1987) or volume tracking method based on the use of markers to locate the moving boundary. However, the reconstruction of the interface required here may be numerically prohibitive, more so in 3D. In this context, the Cartesian methods of type immersed boundary (IB) appear as a very promising alternative. The immersed boundary methods (IBM) are also non-conforming methods to consider fluid–structure interactions. They were initially developed by Peskin (1972) to simulate blood flow in the human heart. Mittal and Iaccarino (2005) and more recently Sotiropoulos and Yang (2014) provided extensive reviews on IBM types and recent developments. Hereafter, we will refer to those reviews for exhaustive details on their classification. In IBM, the Navier–Stokes equation is solved on a non-conforming grid through various numerical methods such as finite elements method or LBM. The fluid–structure boundaries are then defined on a mesh which may evolve in time and space, therefore *immersed* in the fixed grid. Due to the existence of these *immersed* boundaries, there is a need to modify the governing equations (i.e., Navier–Stokes equations) around the fluid–structure interfaces through, for example, a forcing term.

With the growing interest for using lattice Boltzmann methods and since LBM and IBM are both Cartesian grid methods, it is appealing to couple them when modeling complex and/or moving interfaces. In their review, Mittal and Iaccarino (2005) show that three major methods are developed for the fluid–particle interactions when using LBM: interpolated bounce-back schemes (Bouzidi et al. 2001; Chun and Ladd 2007), adapted mesh refinement and immersed boundary methods. Pan et al. (2006) evaluated the impact of interpolated bounce-back schemes and demonstrated their superior accuracy compared to non-interpolated bounce-back conditions. Peng and Luo (2008) compared immersed boundary and interpolated bounce-back conditions for the study of flow around a cylinder. They showed that both methods demonstrated second-rate convergence. They, however, noted that immersed boundary required a simpler implementation and pointed to the need for further investigation in order to assess the real gain of IBM–LBM combination.

Author's personal copy

Coupling IBM with LBM (hereafter referred to as IB–LBM) remains, however, a common choice for fluid–solid moving interfaces. A classic feedback forcing IB–LB method was implemented by Feng and Michaelides (2004) to simulate rigid particle motion. Feng and Michaelides (2005) also implemented a coupled direct-forcing IB–LBM for moving particles. Various researches have focused on the improvement in the numerical schemes of IB–LBM and their accuracy. Niu et al. (2006) developed a momentum exchange IB–LB method and simulated sedimentation of two circular particles. They claimed that, while their model showed no increase in accuracy compared to LBM, it was more flexible. Dupuis et al. (2008) compared a direct-forcing IB–LB model to an interpolated forcing IB–LB model. The interpolated forcing IB–LB model showed improved accuracy, being almost second-order accurate in the context of flow around a cylinder at low and moderate Reynolds number. Suzuki and Inamuro (2013) developed a higher-order accuracy IB–LB model that allows a non-discontinuous velocity gradient at boundaries. Farnoush and Manzari (2014) compared a direct-forcing IB coupled with either single-relaxation time or multi-relaxation time LBM. They demonstrated that using multi-relaxation allowed a less-time relaxation-dependent slip velocity at the boundaries.

In the case of reactive boundaries, the evolution of the boundary location may be dependent on the fluid concentration of chemical and/or biological species (Luo et al. 2012). Therefore, transport behavior of such species should also be considered. Transport and flow phenomena have been coupled in the context of LBM flow modeling including for dissolution–precipitation processes (Kang et al. 2002, 2003; Szymczak and Ladd 2004; Verhaeghe et al. 2006), and immersed boundary methods have been already applied to fluid flow in porous medium (e.g., Smolarkiewicz and Winter 2010). However, to the authors' knowledge, there has been little to no study that considers flow and transport behavior with moving boundary when using IB–LBM. Such a study is consequently the focus of this paper.

In the present work, we investigate which benefit can be expected from using IBM when modeling coupled fluid flow and solute transport with time-evolving pore-scale geometry. A particular focus is paid to the impact of mesh degradation on solution accuracy, resulting in progressive pore plugging. As a working hypothesis, we limit our study to phenomena where the characteristic time of pore structure evolution is significantly larger than the characteristic times of flow and transport processes. Therefore, the evolution of pore structure is evaluated through quasi-steady-state simulations with different geometries, representing the different steps of pore structure time evolution. This is not a limitation of this work, but the objective was to assess the different methods in similar conditions for comparison purposes. Note that this quasi-steady-state assumption is widely adopted in many subsurface applications of interest since the kinetics of geochemical reactions—that drive the spatial evolution of porous matrix—are usually slow (see the discussion in Lichtner 1988). We refer the reader to the papers related to these applications—as well as in bio-plugging (Kapellos et al. 2007; Orgogozo et al. 2013) than for dissolution in fractured and porous rocks (Szymczak and Ladd 2009; Oltean et al. 2013)—for evidences justifying this strategy. A 3D lattice Boltzmann model with immersed boundary conditions is used for fluid flow. Two different forcing terms are compared, and their effect on simulation accuracy is discussed when pore size is reduced, e.g., during precipitation or bio-clogging processes. In a second step, the impact of IB methods on reactive solute transport is investigated. A volume-of-fluid-type method is confronted to an interface reconstruction finite volume approach. Results are discussed for different values of the Damköhler number and different mesh resolutions.

Author's personal copy

2 Flow Model

In this section, we introduce the theoretical model used to describe fluid flow at the pore-scale. We consider in a first step only a single-phase flow through a 3D pore-scale system with moving walls. The mass balance and momentum conservation are described using the Navier–Stokes equations as follows:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \tag{1}$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\frac{\nabla p}{\rho} + \nu \nabla^2 \mathbf{u}, \tag{2}$$

$$\mathbf{u} = 0, \quad \text{at } \Sigma(t) \tag{3}$$

$$\mathbf{u} = \mathbf{U}_{\Gamma_1}, \quad \text{at } \Gamma_1 \tag{4}$$

$$p = P_{\Gamma_2}, \quad \text{at } \Gamma_2. \tag{5}$$

where $\mathbf{u}$, p, ρ and ν are, respectively, the velocity, pressure, density and kinematic viscosity. $\Sigma(t)$ represents the time-dependent fluid–solid interface; $\Gamma = \Gamma_1 \cup \Gamma_2$ represent the outer boundaries of the system; and $\mathbf{U}_{\Gamma_1}$ and P_{Γ_2} are the values of velocity and pressure at these limits. Note that the velocity of wall displacement is neglected in Eq. (3) due to the quasi-steady-state assumption, and a no-slip boundary condition is verified. To reduce the computational cost due to the interface reconstruction which may be cumbersome for 3D curved boundaries, we will assume in the rest of the paper that moving boundaries $\Sigma(t)$ still remain locally plane and parallel to the axis relative to each cell of the initial 3D Cartesian mesh. In other words, the volume fraction of solid phase $\phi(\mathbf{x}, t)$ and the local direction of propagation of walls inside each cell are sufficient to describe the immersed geometry of the system. In the following sections, we briefly present the classical lattice Boltzmann model that will serve as reference solution to assess the improvement due to the immersed boundary implementation. Then, we describe the two direct-forcing IB approaches applied in this study.

2.1 Lattice Boltzmann Model

The lattice Boltzmann methods were originally developed from lattice gas automata (Higuera and Jimenez 1989). Basically, this method consists in replacing the fluid by a population of fictive particles which move from node to node along the lines of a pre-defined lattice. At each time step, the particles can spread from one node to a neighboring node (streaming step), stay put or collide between them (collision step) by respecting the conditions of mass, momentum and energy conservation. Boolean variables in gas automata are replaced by their averages f_k, the so-called particle distribution functions (Mac Namara and Zanetti 1988). Physical parameters (velocity and pressure) at each node of the lattice are then derived from these functions. Specific rules of particle interactions are fixed so that the Navier–Stokes equations are satisfied.

We first present the resolution of Eqs. (1) and (2) by the lattice Boltzmann method (LBM). We use here a model with a single time of relaxation (SRT), using a BGK (Bhatnagar–Gross–Krook) collision operator. It should be kept in mind that different approaches and extensions to this formalism such as the multiple-relaxation time (MRT) model (e.g., Pan et al. 2006) have been derived to enhance the numerical stability and accuracy. We refer the reader to Sukop and Thorne (2006) for a detailed review of these approaches. However, none of them have been designed for handling moving boundaries. A three-dimensional lattice with 19 velocity vectors (D3Q19 model) is considered in the present study (Fig. 1).

Author's personal copy

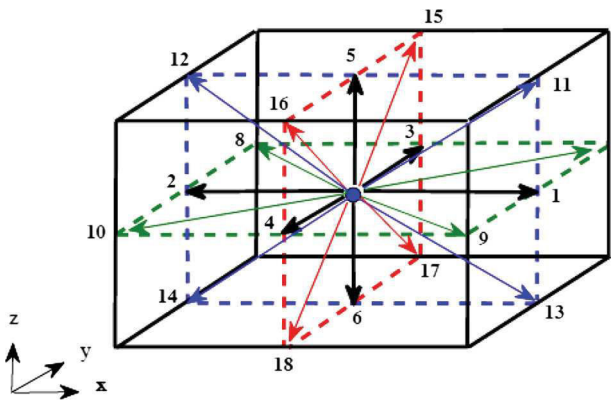

Fig. 1 Geometry and velocity vectors description for the D3Q19 lattice

The D3Q19 velocity vectors $\mathbf{e}_k$ are listed below:

$$\mathbf{e}_k = \begin{cases} (0,0,0) & k=0 \\ c(\pm1,0,0), c(0,\pm1,0), c(0,0,\pm1) & k=1,\ldots\ldots,6 \\ c(\pm1,\pm1,0), c(\pm1,0,\pm1), c(0,\pm1,\pm1) & k=7,\ldots,18 \end{cases} \tag{6}$$

where c is the lattice speed given by

$$c = \frac{\Delta x}{\Delta t} = 1\,lu/ts \tag{7}$$

Note that we express further all quantities and physical parameters in lattice Boltzmann units with $\Delta x = 1\,lu$ (lattice unit) and the time step of the simulation $\Delta t = 1\,ts$ (time step). In this model, the discretized Boltzmann equation is expressed as the collision propagation equation:

$$f_k(\mathbf{x}+\mathbf{e}_k\Delta t, t+\Delta t) = f_k(x,t) - \frac{\Delta t}{\tau}\Big[f_k(\mathbf{x},t) - f_k^{(\mathrm{eq})}(\mathbf{x},t)\Big] \tag{8}$$

where τ represents the relaxation time and $f_k^{(\mathrm{eq})}$ the equilibrium distribution function associated with the velocity vector $\mathbf{e}_k$:

$$f_k^{(\mathrm{eq})} = \omega_k\rho\Big[1 + \frac{3(\mathbf{e}_k\cdot\mathbf{u})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{e}_k\cdot\mathbf{u})^2}{2c^4}\Big] \tag{9}$$

where ω_k is a weighting factor defined by:

$$\omega_k = \begin{cases} 1/3 & k=0 \\ 1/18 & k=1,\ldots.,6 \\ 1/36 & k=7,\ldots,18 \end{cases} \tag{10}$$

Equation (8) is usually implemented through two successive calculation steps:

1. Collision step:

$$f_k^{'}(\mathbf{x},t) = f_k(\mathbf{x},t) - \frac{1}{\tau}\Big[f_k(\mathbf{x},t) - f_k^{(\mathrm{eq})}(\mathbf{x},t)\Big] \tag{11}$$

Author's personal copy

2. Streaming step:

$$f_k(\mathbf{x} + \mathbf{e}_k \Delta t, t + \Delta t) = f_k^{'}(\mathbf{x}, t) \tag{12}$$

The density ρ and the flow velocity $\mathbf{u}$ are calculated by:

$$\rho \mathbf{u} = \sum_k f_k \mathbf{e}_k \tag{13}$$

$$\rho = \sum_k f_k \tag{14}$$

and the pressure, p, is expressed as the ideal gas equation of state:

$$p = c_s^2 \rho \tag{15}$$

where c_s is the speed of sound and related to the lattice speed c by: $c_s = c/\sqrt{3}$.
The kinematic viscosity is related to the single relaxation time τ as:

$$\nu = c_s^2 \left(\tau - \frac{1}{2}\right) \tag{16}$$

Different kinds of boundary conditions may be used. Dirichlet and Neumann conditions are imposed using the formulation proposed by Zou and He (1997). For the no-slip boundary condition, two schemes are used, a classical full-way bounce-back denoted by LBM–FBB and a linear interpolated bounce-back denoted by LBM–IBB. The bounce-back technique may be seen as a modified collision equation that reflects the distribution functions f_k in the opposite direction $\mathbf{e}_{\bar{k}}$ such as $\mathbf{e}_{\bar{k}} = -\mathbf{e}_k$. In the full-way bounce-back model, the boundary is located approximately halfway between the solid node and the neighboring fluid node but its exact location is viscosity dependent (Pan et al. 2006). The interpolated bounce-back scheme extends the halfway bounce-back method to take into account the exact position of the physical boundary. If we note $\mathbf{x}_f$ the boundary fluid node such that $\mathbf{x}_s = \mathbf{x}_f + \Delta x$ is a solid node, and $\mathbf{x}+d_x$ is on the solid boundary (Fig. 2a), the linearly interpolated bounce-back scheme may be expressed as follows Pan et al. (2006):
For $d_x < \Delta x/2$,

$$f_{\bar{k}}\left(\mathbf{x}_f, t + \Delta t\right) = 2\frac{d_x}{\Delta x} f_k^{'}\left(\mathbf{x}_f, t\right) + \left(1 - 2\frac{d_x}{\Delta x}\right) f_k^{'}\left(\mathbf{x}_f - \Delta x, t\right) \tag{17}$$

and for $d_x \geq \Delta x/2$,

$$f_{\bar{k}}\left(\mathbf{x}_f, t + \Delta t\right) = \frac{\Delta x}{2d_x} f_k^{'}\left(\mathbf{x}_f, t\right) + \frac{2d_x - \Delta x}{2d_x} f_{\bar{k}}^{'}\left(\mathbf{x}_f, t\right) \tag{18}$$

2.2 Lattice Boltzmann Model with Direct-Forcing Immersed Boundary Method

Immersed boundary methods are classically separated into two classes: sharp and diffuse interface approaches. A typical sharp interface model is the direct-forcing method which consists in maintaining a narrow front through the use of singular forces directly at the interface. The velocities are adjusted by interpolation so that the desired velocity is recovered exactly at the interface. If numerical diffusion is avoided, spurious oscillations, however, may occur. The forcing is introduced after discretization and thus is strongly dependent on the numerical schemes. Another example of sharp IB method is the cut cell approach (Ye et al. 1999; Udaykumar et al. 2001) where the cells close to an immersed boundary are locally reshaped so that the interfacial fluxes are rigorously reconstructed. Concerning the diffuse

Author's personal copy

interface method, a fictitious force is introduced through forcing or penalization terms in the neighborhood of the interface to express the effects of immersed bodies. The forcing is defined before the discretization of the equations, but the front is smoothed out over a diffusion length scale introducing a numerical bias for the surrounding nodes. The feedback or continuous forcing IBM (also referred to as classic IBM in the review of Sotiropoulos and Yang 2014) or the penalization method are a few examples of the diffuse approach. In this work, a direct-forcing method will be considered to keep the fluid–solid interface sharp and maintain a direct control on numerical accuracy and mass balance properties.

As detailed in the Introduction, the coupling with IBM is performed by adding a boundary force density into the momentum equation. Consequently, Eq. (2) is modified as follows:

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\frac{\nabla p}{\rho} + \nu \nabla^2 \mathbf{u} + \frac{\mathbf{g}}{\rho}, \tag{19}$$

where $\mathbf{g}$ represents the forcing term used to satisfy the no-slip condition on the immersed boundaries. Thus, the modified discrete Boltzmann equation becomes:

$$f_k(\mathbf{x} + \mathbf{e}_k \Delta t, t + \Delta t) = f_k(\mathbf{x}, t) - \frac{\Delta t}{\tau}\left[f_k(\mathbf{x}, t) - f_k^{(\mathrm{eq})}(\mathbf{x}, t)\right] + g_k(\mathbf{x}, t)\Delta t \tag{20}$$

with $g_k(\mathbf{x}, t)$ the discrete forcing term.

Basically, this forcing term may be seen as the force required to modify the non-perturbated velocity $\mathbf{u}^*$ in the vicinity of the interface. This correction is derived from the desired velocity $\bar{\mathbf{U}}$ at the lattice node of interest. Lattice nodes where forcing occurs are here the external nodes to the immersed bodies (i.e., the solid grains) inside the fluid domain, as shown in Fig. 2. The velocity $\bar{\mathbf{U}}$ is obtained by interpolation between the velocity at the physical boundary $\mathbf{U}$ (e.g., a zero velocity for a no-slip condition) and the velocity in the bulk fluid $\mathbf{u}_B^*$. We thus obtain for each component $\bar{U}_j$:

$$\bar{U}_j = \frac{U_j + d_j u_{B,j}^*}{1 + d_j}, \qquad j = x, y, z \tag{21}$$

where $\mathbf{d}$ represents the distance vector between the physical interface and the lattice node of interest, as illustrated in Fig. 2 for the x direction. Due to the assumption on the immersed

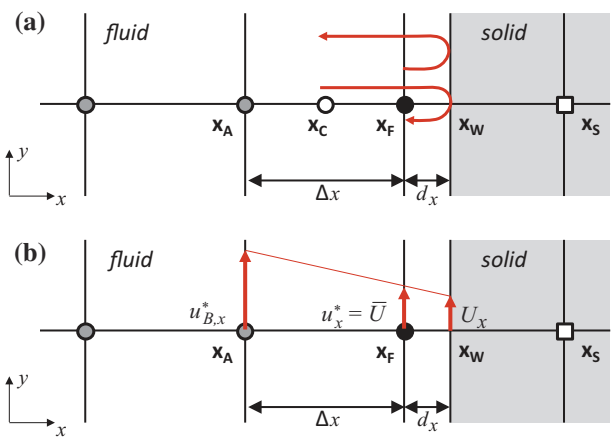

Fig. 2 Illustration of the interpolation procedure in the x direction with **a** the interpolated bounce-back (IBB) condition (scheme modified from Peng and Luo 2008) and **b** the immersed boundary method (IBM)

Author's personal copy

boundary shape (interface remains locally plane inside each cell), we would have here $d_x = \phi(\mathbf{x}, t)$ and $d_y = d_z = 0$.

Two different direct-forcing methods are compared here and differ by (i) the formulation of the forcing term g_i and (ii) the step of velocity correction (before or after the collision step). We define by t^- and t^+, respectively, the pre- and post-collision times.

In the first approach, referred to as IB–LBM1 and based on the interpolating force model developed initially in 2D by Dupuis et al. (2008), the forcing term is given by:

$$g_{k_1}(\mathbf{x}, t^+) = \frac{\omega_k}{c_s^2}\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{g_1}(\mathbf{x}, t^+) \tag{22}$$

$$\mathbf{g_1}(\mathbf{x}, t^+) = \rho\,(\mathbf{x}, t)\,\frac{\bar{\mathbf{U}}\left(\mathbf{x}, t^+\right) - \mathbf{u}^*\left(\mathbf{x}, t^+\right)}{\Delta t} \tag{23}$$

It should be emphasized that the forcing step is introduced just after the collision as described in the calculation procedure below:

Calculation procedure of IB–LBM1:

1. Initialization:

$$\rho(\mathbf{x}, t)\mathbf{u}(\mathbf{x}, t) = \sum_k f_k(\mathbf{x}, t)\mathbf{e}_k \tag{24}$$

2. Collision step:

$$f_k{}'(\mathbf{x}, t^+) = f_k(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau}\left[f_k(\mathbf{x}, t) - f_k^{(\mathrm{eq})}(\mathbf{x}, t)\right] \tag{25}$$

$$\rho(\mathbf{x}, t)\mathbf{u}^*(\mathbf{x}, t^+) = \sum_k f_k{}'(\mathbf{x}, t^+)\mathbf{e}_k \tag{26}$$

3. Forcing step:

$$f_k^{''}(\mathbf{x}, t^+) = f_k{}'(\mathbf{x}, t^+) + \Delta t g_{k_1}(\mathbf{x}, t^+) \tag{27}$$

4. Streaming step:

$$f_k(\mathbf{x} + \mathbf{e}_k\Delta t, t + \Delta t) = f_k^{''}(\mathbf{x}, t^+) \tag{28}$$

On the contrary, for the second method proposed by Kang and Hassan (2011) and called IB–LBM2, the forcing term is split to be applied before and after the collision step. The different calculation steps of the method are summarized below.

Calculation procedure of IB–LBM2:

1. Initialization:

$$\rho(\mathbf{x}, t)\mathbf{u}^*(\mathbf{x}, t) = \sum_k f_k(\mathbf{x}, t)\mathbf{e}_k \tag{29}$$

2. First forcing step:

$$\rho(\mathbf{x}, t)\mathbf{u}(\mathbf{x}, t^-) = \sum_k f_k(\mathbf{x}, t)\mathbf{e}_k + \frac{\Delta t}{2}\mathbf{g}_2(\mathbf{x}, t) \tag{30}$$

3. Collision step:

$$f_k{}'(\mathbf{x}, t^+) = f_k(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau}\left[f_k(\mathbf{x}, t) - f_k^{(\mathrm{eq})}(\mathbf{x}, t^-)\right] \tag{31}$$

Author's personal copy

4. Second forcing step:

$$f_k''(\mathbf{x}, t^+) = f_k'(\mathbf{x}, t^+) + \Delta t g_{k_2}(\mathbf{x}, t) \tag{32}$$

5. Streaming step:

$$f_k(\mathbf{x} + \mathbf{e}_k \Delta t, t + \Delta t) = f_k''(\mathbf{x}, t^+) \tag{33}$$

and the forcing term is expressed as:

$$g_{k_2}(\mathbf{x}, t) = \left(1 - \frac{1}{2\tau}\right) \omega_k \left[3\frac{\mathbf{e}_k - \mathbf{u}(\mathbf{x}, t)}{c^2} + 9\frac{\mathbf{e}_k \cdot \mathbf{u}(\mathbf{x}, t)}{c^4}\mathbf{e}_k\right] \cdot \mathbf{g_2}(\mathbf{x}, t) \tag{34}$$

where

$$\mathbf{g_2}(\mathbf{x}, t) = 2\rho(\mathbf{x}, t)\frac{\bar{\mathbf{U}}(\mathbf{x}, t) - \mathbf{u}^*(\mathbf{x}, t)}{\Delta t} \tag{35}$$

Note that the boundary force density g_{k_2} can be interpreted here as a correction to the equilibrium distribution functions $f_k^{(\mathrm{eq})}$ so that Eq. (20) verifies rigorously the classical LBGK equation, Eq. (8) (Guo et al. 2002).

3 Coupled Fluid Flow and Solute Transport Model

Now, we consider the coupling between fluid flow and reactive transport in a time-evolving porous domain. A large diversity of reactive situations can be encountered in subsurface applications: heterogeneous reaction at the fluid–solid interface, homogeneous reaction between two (or more) chemical species within a phase or a region of the porous domain, etc. Without loss of generality, we focus our investigation on a two-region system where a single chemical species is transported by advection and diffusion within the fluid domain $\Omega_f(t)$ and diffuses within a permeable region $\Omega_r(t)$ (e.g., solid grains coated with a thin biofilm layer) where reaction occurs. The interface $\Sigma(t)$ between both regions is assumed to evolve with time but sufficiently slowly so that a quasi-steady-state approximation can be adopted. Under these assumptions, the mass balance equations for the two-region system, combined with Eqs. (2)–(5), take the following form:

$$\nabla \cdot (\mathbf{u}c_f) = \nabla \cdot (D_f \nabla c_f), \quad \text{in } \Omega_f \tag{36}$$

$$0 = \nabla \cdot (D_r \nabla c_r) - R_c, \quad \text{in } \Omega_r \tag{37}$$

$$D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n} = D_r \nabla c_r \cdot \mathbf{n}, \quad \text{at } \Sigma(t) \tag{38}$$

$$c_f = c_r, \quad \text{at } \Sigma(t) \tag{39}$$

$$c_f = C_{\Gamma_1}\ ;\ c_r = C_{\Gamma_1}, \quad \text{at } \Gamma_1 \tag{40}$$

$$D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n} = \Phi_{\Gamma_2}\ ;\ D_f \nabla c_r \cdot \mathbf{n} = \Phi_{\Gamma_2}, \quad \text{at } \Gamma_2 \tag{41}$$

where c_f (resp. c_r) is the concentration of the solute within Ω_f (resp. Ω_r), $\mathbf{u}$ is the velocity field as predicted from Eqs. (2)–(5), and D_f and D_r are the diffusion coefficients in Ω_f and Ω_r. R_c is the reaction term which is described by first-order kinetics for the sake of simplicity. Dirichlet and Neumann conditions are classically imposed on external boundaries of the domain.

As previously for the flow calculation, non-boundary conforming methods are required to simulate concentration fields at the pore-scale due to growth (or decrease) of Ω_r. Different numerical techniques have been designed to handle such situations, especially for

Author's personal copy

dissolution/precipitation applications (Kang et al. 2002, 2003; Szymczak and Ladd 2004; Verhaeghe et al. 2006; Luo et al. 2012; Oltean et al. 2013), and we recover basically the same type of methods presented previously for computing flow on a non-body-fitted mesh: ALE (Oltean et al. 2013), VOF approach (Ebigbo et al. 2013) or interface reconstruction method (Mittal and Iaccarino 2005). As previously, the choice of the most prevalent method depends on several parameters: complexity of the geometry (2D or 3D domain, instability of the interface shape), heterogeneous or homogeneous reaction, extent of the reaction front (sharp or smooth front), for example.

We consider here two different methods to handle this numerical issue. In both cases, a finite volume discretization scheme is used.

First, a volume-of-fluid-type model is considered. It is based on the approximation that the system behavior is close to the equilibrium. Under the assumption, indeed, that the characteristic time for transport is of the same order of magnitude in both regions and the characteristic time of the reaction kinetics is large, the local mass equilibrium condition is valid. In other words, concentration gradients in the vicinity of the interface are sufficiently small. Concentrations do not vary significantly at the scale of the immersed cells. Therefore, a single concentration C both in Ω_f and Ω_r can be defined. This approximation leads to a one-equation transport model valid everywhere, such as

$$\nabla \cdot (\mathbf{u}_\phi C) = \nabla \cdot (D_\phi \nabla C) - R_\phi, \qquad \text{in } \Omega = \Omega_f \cup \Omega_r \tag{42}$$

$$C = C_{\Gamma_1}(\phi) \qquad \text{at } \Gamma_1 \tag{43}$$

$$D_\phi \nabla C \cdot \mathbf{n} = \Phi_{\Gamma_2}(\phi), \qquad \text{at } \Gamma_2 \tag{44}$$

where $\phi(\mathbf{x}, t)$ describes the volume fraction of Ω_r over Ω. D_ϕ, R_ϕ and $\mathbf{u}_\phi$ represent, respectively, the diffusion coefficient, the reaction term and the velocity vector within Ω. They are expressed as a function of ϕ so that for the two limit cases, $\phi = 0$ and $\phi = 1$, Eqs. (36) and (37) are recovered. A similar comment holds for the external boundary conditions at Γ_1 and Γ_2. Thus, we have:

$$D_\phi(\mathbf{x}, t) = \phi(\mathbf{x}, t) D_r + (1 - \phi(x, t)) D_f, \tag{45}$$

$$R_\phi(\mathbf{x}, t) = \phi(\mathbf{x}, t) R_c(\mathbf{x}, t), \tag{46}$$

$$\mathbf{u}_\phi(\mathbf{x}, t) = (1 - \phi(\mathbf{x}, t)) \mathbf{u}(\mathbf{x}, t). \tag{47}$$

The counterpart of the extreme simplicity of this model is its limited range of validity. Indeed, for high reaction rates or high velocities, the local mass equilibrium is not respected anymore, resulting in a decrease of the model accuracy.

In case of high non-equilibrium conditions or if a fine estimate of interfacial fluxes is required, more sophisticated methods are needed. As an illustrative example, an interface reconstruction finite volume approach (e.g., see Kang et al. 2009) is employed in the present work to avoid laborious cell-merging procedures classically observed in cut cell formulations. This implicit method leads to reconstruct the interfacial fluxes for the cells crossed by the immersed boundary. This reconstruction step, which can be particularly delicate in 3D, is quite straightforward in our case due to the assumption of piecewise–plane interfaces, as illustrated in Fig. 3a. A linear interpolation is used here for recalculating properly the fluxes. A description of the mathematical procedure in a simplified one-dimensional case (as shown in Fig. 3b) is detailed below to support our computations.

First, a single-domain description is used to replace Eqs. (36) and (37)

$$\nabla \cdot (\mathbf{U} C) = \nabla \cdot (D \nabla C) - R \tag{48}$$

Author's personal copy

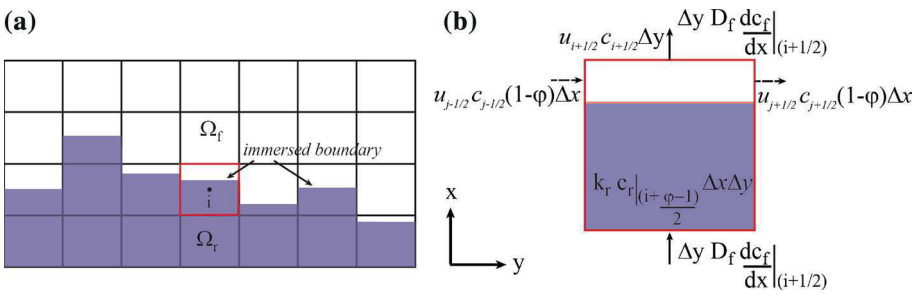

Fig. 3 **a** Cartesian grid cut by the immersed boundary; **b** calculation of the interfacial fluxes from the interface reconstruction method over the cell i

where **U**, D and R are piecewise functions. Finite volume discretization of the diffusive flux, for instance, over the one-dimensional immersed cell depicted in Fig. 3 leads to the following piecewise integration:

$$\int_{i-\frac{1}{2}}^{i+\frac{1}{2}} \frac{\partial}{\partial x} D\left(\frac{\partial c}{\partial x}\right) \mathrm{d}x = \int_{i-\frac{1}{2}+\phi}^{i+\frac{1}{2}} \frac{\partial}{\partial x} D_f\left(\frac{\partial c_f}{\partial x}\right) \mathrm{d}x + \int_{i-\frac{1}{2}}^{i-\frac{1}{2}+\phi} \frac{\partial}{\partial x} D_r\left(\frac{\partial c_r}{\partial x}\right) \mathrm{d}x \tag{49}$$

$$= D_f \frac{\partial c_f}{\partial x}\bigg|_{i+\frac{1}{2}} - D_r \frac{\partial c_r}{\partial x}\bigg|_{i-\frac{1}{2}} \tag{50}$$

These interfacial fluxes need be interpolated properly by considering the immersed boundary. For instance, for $\phi(i) \geq 0.5$, we can differentiate the first term in the right-hand side of Eq. (50) using the Taylor series expansions,

$$c_f\big|_{i+\frac{1}{2}} = c_f\big|_{+} + \frac{\partial c_f}{\partial x}\bigg|_{i+\frac{1}{2}} (1-\phi(i))\,\Delta x + \mathcal{O}(\delta x^2) \tag{51}$$

$$c_f\big|_{i+\frac{1}{2}} = c_f\big|_{i+1} - \frac{\partial c_f}{\partial x}\bigg|_{i+\frac{1}{2}} \frac{\Delta x}{2} + \mathcal{O}(\delta x^2) \tag{52}$$

The indicators $+$ and $-$ refer, respectively, to the position just above and below the interface located at $i-\frac{1}{2}+\phi$. Here, $c_f\big|_{+}$ and $c_r\big|_{-}$ can be calculated from the following decompositions:

$$c_f\big|_{+} = c_f\big|_{i+1} - \frac{\partial c_f}{\partial x}\bigg|_{+} \left(\frac{3}{2} - \phi(i)\right) \Delta x + \mathcal{O}(\delta x^2) \tag{53}$$

$$c_r\big|_{-} = c_r\big|_{i} + \frac{\partial c_r}{\partial x}\bigg|_{-} \left(\phi(i) - \frac{1}{2}\right) \Delta x + \mathcal{O}(\delta x^2) \tag{54}$$

and from the appropriate boundary conditions at the immersed boundary,

$$D_f \frac{\partial c_f}{\partial x}\bigg|_{+} = D_r \frac{\partial c_r}{\partial x}\bigg|_{-} \tag{55}$$

$$c_f\big|_{+} = c_r\big|_{-} \tag{56}$$

Author's personal copy

Finally, Eq. (50) can be rewritten as

$$\int_{i-\frac{1}{2}}^{i+\frac{1}{2}} \frac{\partial}{\partial x} D \left(\frac{\partial c}{\partial x} \right) \mathrm{d}x = \frac{2D_f D_r}{\Delta x} \left[\frac{c_r|_{i+1} - c_r|_i}{D_r\,(3 - 2\phi(i)) + D_f\,(2\phi(i) - 1)} \right] - D_r \frac{c_r|_i - c_r|_{i-1}}{\Delta x} \tag{57}$$

In a similar way, the reaction term can be expressed as

$$\int_{i-\frac{1}{2}}^{i+\frac{1}{2}} R\,\mathrm{d}x = \int_{i-\frac{1}{2}}^{i-\frac{1}{2}+\phi} R_r\,\mathrm{d}x \tag{58}$$

$$\approx k_r\, c_r|_{i+\frac{\phi-1}{2}}\, \Delta x \tag{59}$$

where k_r is the first-order kinetic rate constant and $c_r|_{i+\frac{\phi-1}{2}}$ is calculated by linear interpolation. Similar reconstruction holds for the advective flux, and extension to 3D is seamless due to the assumption on interface shape.

Since the use of lattice Boltzmann units is sometimes tedious, we define two dimensionless numbers, the Péclet and Damköhler numbers, that we will use in the following section to illustrate the applicability of these models:

$$Pe = \frac{V_m\, l_f}{D_f};\; Da = \frac{l_r^2\, k_r}{D_r}. \tag{60}$$

where V_m represents the average velocity in the fluid phase and l_f and l_r are the characteristic lengths associated with Ω_f and Ω_r.

4 Results and Discussion

In this section, we assess the efficiency of immersed boundary methods for computing both flow and solute transport in time-evolving pore-scale geometry. To this end, we consider a 3D single pore with square cross section. This kind of geometry is classically considered for LBM validation (Maier et al. 1996; Zou and He 1997; Strack and Cook 2007). The walls of this pore are assumed to evolve with time so that physical boundaries do not conform to the numerical mesh, as shown in Fig. 4. l represents the pore throat which will decrease with time, $2h$ is the total width of the domain, and H represents the thickness of moving walls such as $2h = 2H + l$. An initial 40×40 mesh size along the square cross section of width $2h$ is considered. It should be pointed out that the coupling with the interface evolution is not considered in the present paper. In order to compare the different models in similar conditions, a uniform plugging of the pore with a quasi-steady-state approximation is implicitly assumed. In this way, comparison of flow is performed for the same geometry at different pore throats without requiring an additional PDE.

We limit our analysis to quasi-steady-state flow conditions. A constant pressure condition is maintained at the inlet and outlet with $\Delta p = 10^{-4} \cdot c_s^2$. It should be emphasized that this constant pressure flow will induce a decrease in the average fluid velocity as the pore reduces. The kinematic viscosity is fixed at $\nu = 1/6\,[lu^2/ts]$. Given the pressure gradient imposed at the pore-scale and the range of variation of the pore throat, the resulting Reynolds number varies between 10^{-5} and 2×10^{-4}. Such low values of Re correspond to a pure Stokes flow, which is the typical situation for flow in porous media.

Author's personal copy

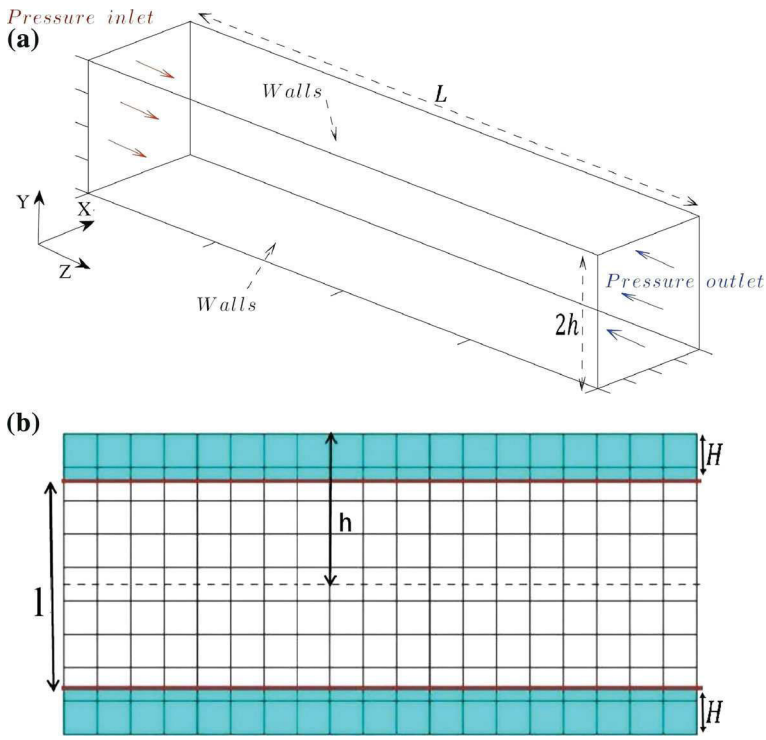

Fig. 4 **a** Computational domain and boundary conditions for fluid flow within a 3D single pore; **b** longitudinal view along the flow direction

$$\nabla p = \mu \nabla^2 \mathbf{u}, \tag{61}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \tag{62}$$

Consequently, we can use a simplified form (Ladd and Verberg 2001) of the equilibrium distribution function, neglecting the nonlinear terms in Eq. (9):

$$f_k^{(\mathrm{eq})} = \omega_k \rho \left[1 + \frac{3(\mathbf{e} \cdot \mathbf{u})}{c^2} \right] \tag{63}$$

This low Re value precludes also any compressibility issues usually met with LBM simulations, and we can consider a constant fluid density, $\rho = 1$ (in lattice unit), during all the simulations. As a first step, the flow models (LBM–FBB, LBM–IBB, IB–LBM1 and IB–LBM2) will be compared to an analytical solution for different pore throats. Then, the coupled reactive transport and flow models will be evaluated against a reference numerical solution for different values of the Damköhler number. It is worth mentioning that all simulations are performed on the initial grid without any mesh refinement.

4.1 Impact of Immersed Boundary Methods on Flow Calculation

First of all, we note that the analytical solution of an incompressible flow in an infinitely long square tube with $-l/2 \leq x, y \leq l/2$ is given by the series approximation (White 1991):

Author's personal copy

$$u_z^a(x, y) = \frac{4l^2}{\rho\nu\pi^3}\left(-\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}\right) \cdot \sum_{i=1,3,5,\ldots}^{\infty} (-1)^{\frac{i-1}{2}} \left[1 - \frac{\cosh(i\frac{\pi y}{l})}{\cosh(i\frac{\pi}{2})}\right] \frac{\cos(i\frac{\pi x}{l})}{i^3}. \tag{64}$$

where u_z^a is the analytical velocity component along the flow direction (here, z).

Consequently, the velocity is maximal at the center of the tube and can be approximated by the following value:

$$V_m \approx 0.5711 \frac{4l^2}{\rho\nu\pi^3}\left(-\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}\right). \tag{65}$$

The resulting velocity profiles along the y direction are presented in Fig. 5 for several values of l. The z component velocity has been reduced by the analytical maximal velocity V_m, given in Eq. (65).

The LBM–FBB solution clearly overestimates the exact solution in all cases. This discrepancy increases as the pore thickness reduces. Indeed, while the gap between physical and bounce-back boundary remains constant, the ratio of this error over the pore thickness increases when l gets smaller. In the worst conditions (i.e., $l = 2.2$), this ratio, $0.9\Delta x/l$, represents 81 %. Besides, as shown in Eq. (65), the velocity theoretically evolves as a square function of l, which indicates that the relative error on velocity is twice the relative error on l.

Contrarily, both IB–LB models and LB–IBB fit relatively well the analytical solution for large pore throats, as shown in Fig. 5a, b. The immersed boundary methods tend to underestimate the velocity, while the interpolated bounce-back condition tends to overestimate it. These three methods show significant improvement except for the coarser mesh (Fig. 5d) compared to the reference LBM solution with IB–LBM2 demonstrating the best accuracy. The discrepancy between the different boundary treatment conditions increases with the decrease in pore throat. When the pore throat is too thin relative to the mesh size ($l = 2.2$), the IBB method degrades heavily toward the reference LBM solution but the IB–LBM2 still shows improved accuracy. At this point, the number of fluid nodes between nearby solid surfaces is not sufficient anymore to ensure an accurate interpolation of the velocity distributions with LBM–IBB (Chun and Ladd 2007). This drawback may become critical for flow situations in complex media where a complete plugging of pores occurs.

Additional insight can be obtained through the calculation of global relative error:

$$E_i = \sqrt{\frac{\sum_{x,y}(u_z^a - u_z^i)^2}{\sum_{x,y}(u_z^a)^2}}, \qquad i = \mathrm{LBM-FBB, LBM-IBB, IB-LBM1, IB-LBM2} \tag{66}$$

such as u_z^a is the analytical solution and u_z is the numerical solution computed by the LBM or IB–LB method. Results are gathered in Table 1 for the different simulations and in Fig. 5e.

The different models are also compared in regard to efficiency. The simulation performance of models is measured in terms of CPU time, indicated for each calculation in Table 1 and Fig. 5f. All the simulations were performed in double precision on a dual Xeon 2.4 GHz workstation. The computing time is dependent on the number of lattice nodes, but also on the number of iterations required to achieve steady state. Both produce opposite effects. When pore throats tend to be narrower, the number of lattice nodes reduces, leading to a decrease in computing time but the models need more iterations to converge. As observed with the velocity profiles, the interpolated scheme shows a significantly lower error than the reference case, with the notable exception when $l = 2.2$, as well as a small increase in computation time (around 20 %). The IB–LBM2 shows improved accuracy, however with a significant

Author's personal copy

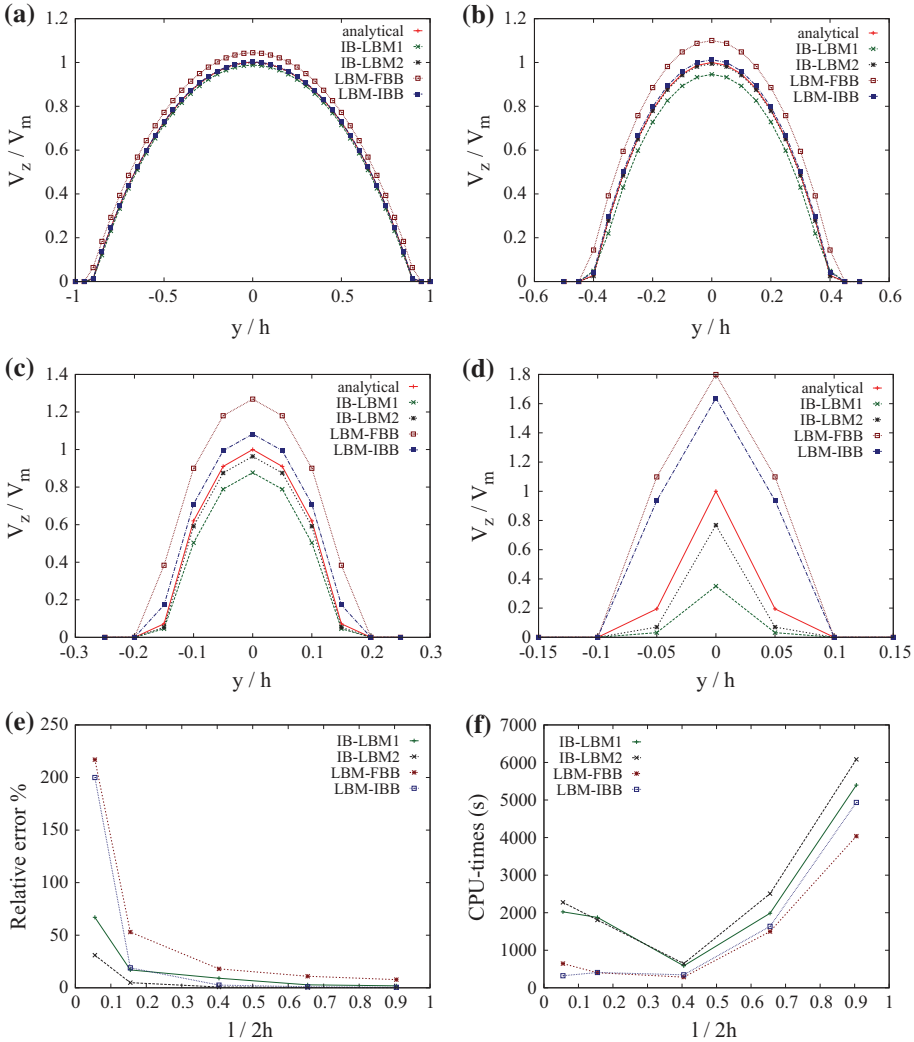

Fig. 5 Comparison of z velocity profiles for the LBM–FBB and LBM–IBB and IB–LBM methods with the analytical solution at different values of l: **a** $l = 36.2$; **b** $l = 16.2$; **c** $l = 6.2$; **d** $l = 2.2$; **e** global relative error given by LBM–FBB and LBM–IBB and the two IB–LBM methods; **f** CPU times for each method

computational cost (up to 4 times slower than the reference case). The IB–LBM1 shows similar CPU times to IB–LBM2 with lesser accuracy. Two major results emerge from these calculations:

– if for fine mesh ($l = 36.2$), there is no striking difference between the models (error does not exceed 7.2 % with LBM–FBB), pore reduction (or mesh degradation) reveals the significance of interpolated schemes and immersed boundary methods for pore-scale calculations with interpolated schemes accuracy degrading strongly at very coarse grids. On a coarse mesh (e.g., $l = 6.2$), the relative error for IB–LBM2 is 10 times smaller than the classical LBM–FBB description and 4 times smaller than for IB–LBM1 and LBM–IBB.

Author's personal copy

Table 1 Comparison of the relative error and CPU times given by the four numerical methods at different pore sizes

Pore throat [lu] l	36.2		26.2		16.2		6.2		2.2	
	Error %	CPU (s)	Error %	CPU (s)	Error %	CPU (s)	Error %	CPU (s)	Error %	CPU (s)
$E_{\mathrm{LBM-FBB}}$	7.8	4037	11	1499	18	285	53	400	217	645
$E_{\mathrm{LBM-IBB}}$	0.53	4963	1	1638	2.6	347	19	407	206	321
$E_{\mathrm{IB-LBM1}}$	1.9	5398	2.8	1985	9.1	585	17	1874	67	2023
$E_{\mathrm{IB-LBM2}}$	0.16	6082	0.3	2507	0.78	645	4.9	1807	31	2275

Author's personal copy

– if we consider an arbitrary threshold value of 10 % for simulation accuracy, Fig. 5e points out that the pore size may reduce by 90 % before a mesh refinement is required for IB–LBM2 method against 75 % for IB–LBM1 and barely 30 % for LBM. In the same order of idea, for a given pore size, a coarser mesh can be used with IB–LBM2 compared with a classical lattice Boltzmann simulation, without any loss of accuracy. This gain can be significant in terms of CPU time, especially in 3D. Such an improvement will likely overcome the lost in computational time due to a more complex model. For instance, a cross analysis of Fig. 5e, f indicates that the computational time necessary to obtain a 1 % error in LBM–IBB (for $l = 26.2$) is over 3 times the one required for IB–LMB2 ($l = 16.2$ is sufficient).

4.2 Impact of Immersed Boundary Methods on Reactive Solute Transport

At this point, we consider transport of reactive species through the single pore, as described by Eqs. (36)–(41). The computational domain remains the same (Fig. 4). Solute may diffuse within the impervious material of Ω_r where it is consumed by chemical reaction. In order to investigate the impact of time-evolving geometry on mesh quality and solution accuracy, we vary the mesh size instead of wall thickness as previously. Therefore, we maintain similar conditions (same characteristic length scales, same Péclet number) for all the simulations in order to perform a suitable comparison between the different transport models. Hence, the reactive wall thickness is kept constant and we have $H/h = 0.172$ (or $l/h = 0.656$). For comparison purpose, the same velocity field has been also kept for all the simulations. Cartesian mesh of the finite volume scheme conforms to the lattice mesh so that velocity and concentration nodes coincide. We focus only on steady-state concentration profiles. Due to the dependence of front velocity to model accuracy, transient profiles would not be consistent and such comparison is useless.

The following case is investigated: the solute is injected through the inlet face at a constant concentration C_0. Diffusion coefficients within Ω_f and Ω_r differ so that we have the following ratio $D_r/D_f = 0.25$. Characteristic length scales used for calculation of Péclet and Damköhler numbers, Eq. (60), are, respectively, l and H. Thus, a constant value of $Pe = 6.5$ is used for all the simulations. Two different values of the Damköhler number, $Da = 1.2$ and $Da = 12$, and two different mesh sizes ($17 \times 17 \times 17$ and $35 \times 35 \times 35$ mesh resolution) will be considered further. This range of Da values corresponds to low to moderate reaction conditions, as typically encountered in subsurface applications.

The reference solution for this geometry is obtained from a refined LBM and finite volume solution for concentration transport. As previously, the computational mesh and physical boundary do not fit with a constant gap of $0.745\Delta x$ and $0.65\Delta x$, respectively, for the $17 \times 17 \times 17$ and $35 \times 35 \times 35$ mesh sizes. Then, three distinct simulations on both meshes have been carried out. First, a lattice Boltzmann simulation with a classical full-way bounce-back condition for the flow part and a finite volume scheme for the solute transport (LBM–FBB–FV) is presented for comparison purposes and to illustrate the impact of mesh degradation on solution accuracy in the absence of any non-boundary conforming methods. The two other simulations differ by the transport scheme, volume of fluid (denoted by VOF) or reconstruction method (denoted by REC). Following the results from Sect. 4.1, we select for these two cases the most accurate immersed boundary method for flow calculation, namely IB–LBM2.

Comparison of the concentration profiles in the middle of the domain is represented in Figs. 6 and 7 for both mesh sizes and the two Da values. The relative error on the mass flux predicted by the different methods is extracted from these figures and compared in Tables 2

Author's personal copy

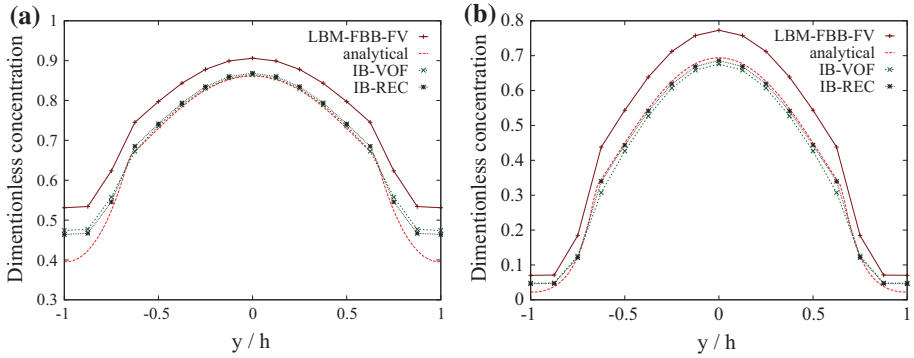

Fig. 6 Comparison of concentration profiles predicted by the classical finite volume scheme, VOF and reconstruction method with the exact solution for different Damköhler numbers over a mesh $17 \times 17 \times 17$: **a** $D_a = 1.2$; **b** $D_a = 12$

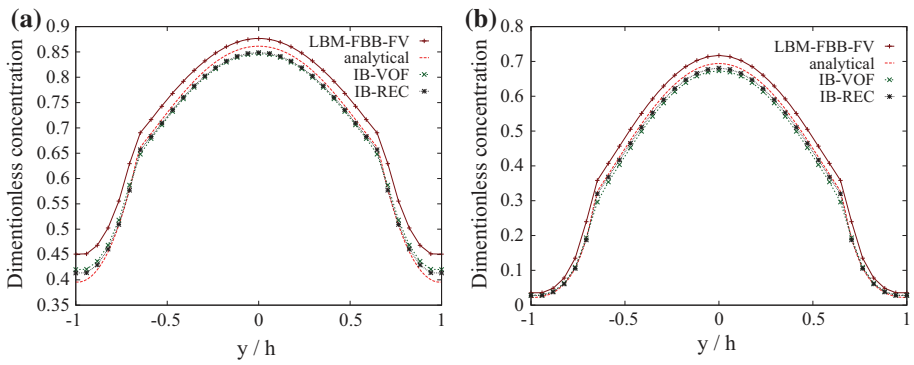

Fig. 7 Comparison of concentration profiles predicted by the classical finite volume scheme, VOF and reconstruction method with the exact solution for different Damköhler numbers over a mesh $35 \times 35 \times 35$: **a** $D_a = 1.2$; **b** $D_a = 12$

Table 2 Comparison of model accuracies for a $17 \times 17 \times 17$ mesh

Da	E^{Φ}_{FV} (%)	E^{Φ}_{VOF} (%)	E^{ϕ}_{REC} (%)
1.2	30	4.7	4.7
12	40	9	6.2

and 3. This error is calculated as follows:

$$E_i^{\Phi} = \frac{|\Phi_{\mathrm{exact}} - \Phi_c^i|}{\Phi_{\mathrm{exact}}} \qquad i = \mathrm{FV, VOF, REC} \tag{67}$$

where Φ_c and Φ_e are, respectively, the computational and exact values of the mass flux flowing through the fluid phase such as:

$$\Phi_{\mathrm{exact}} = \int_{\delta\Omega_f} u_z^{\mathrm{exact}}(x, y, z_0)\, c(x, y, z_0)\mathrm{d}x\mathrm{d}y \tag{68}$$

$$\Phi_c^{\mathrm{LBM}} = \int_{\delta\Omega_f} u_z^{i}(x, y, z_0)\, c(x, y, z_0)\mathrm{d}x\mathrm{d}y \tag{69}$$

Author's personal copy

Table 3 Comparison of model accuracies for a 35 × 35 × 35 mesh

Da	E^{Φ}_{FV} (%)	E^{Φ}_{VOF} (%)	E^{Φ}_{REC} (%)
1.2	8.7	1.8	1.2
12	10.6	4	1.5

$$\Phi^i_c = \int_{\delta\Omega_f \cup \delta\Omega_r} u^i_z(x, y, z_0)\, c(x, y, z_0)\, \phi(x, y, z_0) \mathrm{d}x\mathrm{d}y \qquad i = \mathrm{VOF, REC} \quad (70)$$

Calculation of Φ^i_c differs between the different models due to the presence of the immersed cells with $\phi(x, y, z)$, the fluid volume fraction for the cell (x, y, z). Note that this error only characterizes the solution accuracy within the fluid domain.

A cross analysis of these results indicates that the relative error increases with the Damköhler number for all the models. Due to high reaction kinetics (i.e., high Da), indeed, strong gradients of concentration appear close the moving wall. These gradients impact the immersed boundary description and the care that must be taken on their numerical treatment. If the global relative error remains quite acceptable (depending on the accuracy required by the user), it could be observed that a non-negligible difference occurs between the concentration profiles in the porous reactive region. In the worst conditions, for instance, this local difference goes up to 200 % in Fig. 6b. As previously, a classical model without non-boundary conforming methods (here, LBM–FV) overestimates the concentration predicted whatever the conditions. Indeed, as the reactive layer is reduced compared with the real geometry, the overall reaction is minimized. This phenomenon is obviously enhanced when mesh quality is degraded. As expected, immersed methods (VOF or reconstruction method) partially mitigate for this discrepancy. The reconstruction method leads to a better description of concentration field within the domain. For higher Da values, a second-order polynomial approximation will be probably required for reconstructing the reaction term with enough accuracy. Anyway, this gain of accuracy needs to be balanced in regard to the additional complexity of the method. In particular, the VOF approach may be competitive at low Da conditions.

5 Conclusion

In this paper, we compared different immersed boundary methods and their application to flow and reactive transport at the pore-scale with moving boundaries. These IB methods were evaluated against classical models and reference solutions. The results show a significative improvement in the solution accuracy (flow and concentration profiles) due to the handling of immersed boundaries even when the pore throat reduction becomes critical. This precludes the use of frequent steps of mesh refinement in coupled reactive problems. In other words, the use of IBM allows us to recover the same solution but with a coarser description of the domain. In terms of computational time and calculation efficiency, IB models are more expensive than using interpolated bounce-back conditions but this cost is found to be largely compensated by the accuracy gain. For transport calculation, it was demonstrated that the impact of interfacial physical processes (such as reaction mechanisms) are strongly correlated with the efficiency of the immersed methods.

To conclude, IB models represent a serious alternative to the interpolated bounce-back methods especially when a significant reduction in pore throats is expected. Even though a SRT–BGK formalism is adopted in this paper, the relative impact of mesh degradation on

Author's personal copy

solution accuracy resulting in progressive pore plugging and change in geometry would be likely the same whatever the collision operator (SRT, MRT) used with the lattice Boltzmann equation. In other words, the gain expected by coupling one of these models to immersed boundary methods (or interpolated bounce-back conditions) should be similar and the conclusions of this paper could be generalized to any LBM models. However, it should be emphasized that these studies were conducted only in quasi-steady-state conditions and for simplified geometry. The coupling with the interface evolution would lead to a time- and space-dependent problem (non-uniform interface), and the initial error could be significantly accentuated depending on the hydrodynamic and reaction conditions (e.g., in wormholing regime for dissolution problems, see Golfier et al. 2002). Consequently, even if the IB methods will remain suitable and efficient for such applications, further evaluation of their accuracy should be considered when modeling interface dynamics.

References

Anderson, R., Elliott, N., Pember, R.: An arbitrary Lagrangian–Eulerian method with adaptive mesh refinement for the solution of the Euler equations. J. Comput. Phys. **199**(2), 598–617 (2004)

Benzi, R., Succi, S., Vergassola, M.: The Lattice Boltzmann equation: theory and applications. Phys. Rep. **222**(3), 145–197 (1992)

Bouzidi, M., Firdaouss, M., Lallemand, P.: Momentum transfer of a Boltzmann-Lattice fluid with boundaries. Phys. Fluids **13**, 3452–3459 (2001)

Chen, S., Doolen, G.D.: Lattice Boltzmann method for fluid flows. Annu. Rev. Fluid Mech. **30**(1), 329–364 (1998)

Chen, H., Chen, S., Matthaeus, W.H.: Recovery of the Navier–Stokes equations using a lattice-gas Boltzmann method. Phys. Rev. A **45**, R5339–R5342 (1992)

Chew, C., Yeo, K., Shu, C.: A generalized finite-difference (GFD) ALE scheme for incompressible flows around moving solid bodies on hybrid meshfree-Cartesian grids. J. Comput. Phys. **218**(2), 510–548 (2006)

Chun, B., Ladd, A.J.C.: Interpolated boundary condition for Lattice Boltzmann simulations of flows in narrow gaps. Phys. Rev. E **75**, 066705 (2007)

Dimakopoulos, Y., Tsamopoulos, J.: A quasi-elliptic transformation for moving boundary problems with large anisotropic deformations. J. Comput. Phys. **192**(2), 494–522 (2003)

Dupuis, A., Chatelain, P., Koumoutsakos, P.: An immersed boundary-Lattice-Boltzmann method for the simulation of the flow past an impulsively started cylinder. J. Comput. Phys. **227**(9), 4486–4498 (2008)

Ebigbo, A., Golfier, F., Quintard, M.: A coupled pore-scale model for methanogenic microbial activity in underground hydrogen storage. Adv. Water Resour. **61**, 74–85 (2013)

Farnoush, S., Manzari, M.: Comparison of boundary slip for two variants of immersed boundary method in Lattice Boltzmann framework. Phys. Stat. Mech. Appl. **404**, 200–216 (2014)

Feng, Z.G., Michaelides, E.E.: The immersed boundary-Lattice Boltzmann method for solving fluid–particles interaction problems. J. Comput. Phys. **195**(2), 602–628 (2004)

Feng, Z.G., Michaelides, E.E.: Proteus: a direct forcing method in the simulations of particulate flows. J. Comput. Phys. **202**(1), 20–51 (2005)

Golfier, F., Zarcone, C., Bazin, B., Lenormand, R., Lasseux, D., Quintard, M.: On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium. J. Fluid Mech. **457**, 213–254 (2002)

Guo, Z., Zheng, C., Shi, B.: Discrete lattice effects on the forcing term in the Lattice Boltzmann method. Phys. Rev. E **65**, 046,308 (2002)

He, X., Luo, L.S.: Lattice Boltzmann model for the incompressible Navier–Stokes equation. J. Stat. Phys. **88**(3–4), 927–944 (1997)

Higuera, F.J., Jimenez, J.: Boltzmann approach to lattice gas simulations. Europhys. Lett. **9**(7), 663–668 (1989)

Hirt, C., Nichols, B.: Volume of fluid (VOF) method for the dynamics of free boundaries. J. Comput. Phys. **39**, 201–225 (1981)

Hu, H.H., Patankar, N., Zhu, M.: Direct numerical simulations of fluid–solid systems using the arbitrary Lagrangian–Eulerian technique. J. Comput. Phys. **169**(2), 427–462 (2001)

Author's personal copy

Kang, S.K., Hassan, Y.A.: A comparative study of direct-forcing immersed boundary-Lattice Boltzmann methods for stationary complex boundaries. Int. J. Numer. Meth. Fluids **66**(9), 1132–1158 (2011)
Kang, Q., Zhang, D., Chen, S., He, X.: Lattice Boltzmann simulation of chemical dissolution in porous media. Phys. Rev. E **65**, 036,318 (2002)
Kang, Q., Zhang, D., Chen, S.: Simulation of dissolution and precipitation in porous media. J. Geophys. Res. **108**, B102,505 (2003)
Kang, S., Iaccarino, G., Moin, P.: Accurate immersed-boundary reconstructions for viscous flow simulations. AIAA J. **47**, 1750–1760 (2009)
Kang, Q., Lichtner, P., Viswanathan, H., Abdel-Fattah, A.: Pore scale modeling of reactive transport involved in geologic CO_2 sequestration. Transp. Porous Med. **82**, 197–213 (2010)
Kapellos, G.E., Alexiou, T.S., Payatakes, A.C.: Hierarchical simulator of biofilm growth and dynamics in granular porous materials. Adv. Water Resour. **30**, 1648–1667 (2007)
Ladd, A., Verberg, R.: Lattice-Boltzmann simulations of particle–fluid suspensions. J. Stat. Phys. **104**, 1191–1251 (2001)
Lichtner, P.: The quasi-stationary state approximation to coupled mass transport and fluid–rock interaction in a porous media. Geochim. Cosmochim. Acta **52**, 143–165 (1988)
Luo, H., Bewley, T.R.: On the contravariant form of the Navier–Stokes equations in time-dependent curvilinear coordinate systems. J. Comput. Phys. **199**(1), 355–375 (2004)
Luo, H., Quintard, M., Debenest, G., Laouafa, F.: Properties of a diffuse interface model based on a porous medium theory for solid–liquid dissolution problems. Comput. Geosci. **16**, 913–932 (2012)
Luo, H., Laouafa, F., Guo, J., Quintard, M.: Numerical modeling of three-phase dissolution of underground cavities using a diffuse interface model. Int. J. Numer. Anal. Meth. 2274 (2014)
Mac Namara, G., Zanetti, G.: Use of the Boltzmann equation to simulate lattice-gas automata. Phys. Rev. Lett. **61**, 2332–2335 (1988)
Maier, R.S., Bernard, R.S., Grunau, D.W.: Boundary conditions for the Lattice Boltzmann method. Phys. Fluid **8**(7), 1788–1801 (1996)
Mateescu, D., Mekanik, A., Paidoussis, M.: Analysis of 2-D and 3-D unsteady annular flows with oscillating boundaries, based on a time-dependent coordinate transformation. J. Fluid Struct. **10**, 57–77 (1996)
Mittal, R., Iaccarino, G.: Immersed boundary methods. Annu. Rev. Fluid Mech. **37**, 239–261 (2005)
Niu, X., Shu, C., Chew, Y., Peng, Y.: A momentum exchange-based immersed boundary-Lattice Boltzmann method for simulating incompressible viscous flows. Phys. Lett. A **354**(3), 173–182 (2006)
Oltéan, C., Golfier, F., Buès, M.A.: Numerical and experimental investigation of buoyancy-driven dissolution in vertical fracture. J. Geophys. Res. Solid Earth **118**(5), 2038–2048 (2013)
Orgogozo, L., Golfier, F., Buès, M.A., Quintard, M., Koné, T.: A dual-porosity theory for solute transport in biofilm-coated porous media. Adv. Water Resour. **62B**, 266–279 (2013)
Pan, C., Luo, L.-S., Miller, C.T.: An evaluation of Lattice Boltzmann schemes for porous medium flow simulation. Comp. Fluids **35**, 898–909 (2006)
Peng, Y., Luo, L.-S.: A comparative study of immersed-boundary and interpolated bounce-back methods in LBE. Prog. Comput. Fluid Dyn. **8**, 156–167 (2008)
Peng, D., Merriman, B., Osher, S., Zhao, H., Kang, M.: A PDE-based fast local level set method. J. Comput. Phys. **155**(2), 410–438 (1999)
Peskin, C.S.: Flow patterns around heart valves: a numerical method. J. Comput. Phys. **10**(2), 252–271 (1972)
Qian, Y.H., D'Humieres, D., Lallemand, P.: Lattice BGK models for Navier–Stokes equation. Europhys. Lett. **17**(6), 479 (1992)
Ramaswamy, B., Kawahara, M.: Arbitrary Lagrangian–Eulerian finite element method for unsteady, convective, incompressible viscous free surface fluid flow. Int. J. Numer. Meth. Fluids **7**(10), 1053–1075 (1987)
Smolarkiewicz, P.K., Winter, C.L.: Pores resolving simulation of darcy flows. J. Comput. Phys. **229**(9), 3121–3133 (2010)
Sotiropoulos, F., Yang, X.: Immersed boundary methods for simulating fluid–structure interaction. Prog. Aerosp. Sci. **65**, 1–21 (2014)
Strack, O.E., Cook, B.K.: Three-dimensional immersed boundary conditions for moving solids in the Lattice-Boltzmann method. Int. J. Numer. Meth. Fluids **55**(2), 103–125 (2007)
Sukop, M.C., Thorne Jr, D.T.: Lattice Boltzmann Modeling: An Introduction for Geoscientists and Engineers. Springer, Heidelberg (2006). 172 p
Suzuki, K., Inamuro, T.: A higher-order immersed boundary-Lattice Boltzmann method using a smooth velocity field near boundaries. Comput. Fluids **76**, 105–115 (2013)
Szymczak, P., Ladd, A.J.C.: Microscopic simulations of fracture dissolution. Geophys. Res. Lett. **31**, L23,606 (2004)

Author's personal copy

Szymczak, P., Ladd, A.J.C.: Wormhole formation in dissolving fractures. J. Geophys. Res. **114**, B06203 (2009). doi:10.1029/2008JB006122

Thullner, M., Zeyer, J., Kinzelbach, W.: Influence of microbial growth on hydraulic properties of pore networks. Transp. Porous Med. **49**, 99–122 (2002)

Tsiveriotis, K., Brown, R.A.: Boundary-conforming mapping applied to computations of highly deformed solidification interfaces. Int. J. Numer. Meth. Fluids **14**(8), 981–1003 (1992)

Udaykumar, H., Mittal, R., Rampunggoon, P., Khanna, A.: A sharp interface cartesian grid method for simulating flows with complex moving boundaries. J. Comput. Phys. **174**, 345–380 (2001)

Verhaeghe, F., Arnout, S., Blanpain, B., Wollants, P.: Lattice-Boltzmann modeling of dissolution phenomena. Phys. Rev. E **73**, 036,316 (2006)

White, F.M.: Viscous Fluid Flow. McGraw-Hill, New York (1991)

Willingham, T., Werth, C.J., Valocchi, A.J.: Evaluation of the effects of porous media structure on mixing-controlled reactions using pore-scale modeling and micromodel experiments. Environ. Sci. Technol. **42**(9), 3185–3193 (2008)

Ye, T., Mittal, R., Udaykumar, H.S., Shyy, W.: An accurate Cartesian grid method for viscous incompressible flows with complex boundaries. J. Comput. Phys. **156**, 209 (1999)

Yoon, H., Valocchi, A.J., Werth, C.J., Dewers, T.: Pore-scale simulation of mixing induced calcium carbonate precipitation and dissolution in a microfluidic pore network. Water Resour. Res. **48**(2), W02524 (2012). doi:10.1029/2011WR011192

Zhao C, Hobbs B, Alt-Epping P.: Modeling of ore-forming and geoenvironmental systems: roles of fluid flow and chemical reaction processes. J. Geochem. Explor. **144**, 3–11 (2014)

Zou, Q., He, X.: On pressure and velocity boundary conditions for the Lattice Boltzmann BGK model. Phys. Fluids **9**(6), 1591–1598 (1997)

Modélisation de la croissance bactérienne à l'échelle du pore

3

Sommaire

3.1 Modèle théorique 59
3.1.1 Hypothèses 59
3.1.2 Mise en équation 60
3.1.3 Conditions aux limites 61
3.1.4 Adimensionnement des équations 62
3.2 Modèle numérique 63
3.3 Automate cellulaire 64
3.4 Mécanisme de détachement 68
3.5 Mécanisme d'attachement 71
3.6 Validation du modèle de croissance de biofilm 72
3.6.1 Cas 1 : croissance bactérienne sur une surface solide sous l'effet de la diffusion 73
3.6.2 Cas 2 : croissance bactérienne sur une surface solide en présence d'un écoulement 76
3.7 Cas 3 : application à des milieux poreux 2D et 3D 79
3.7.1 Milieu poreux 2D 79
3.7.2 Milieu poreux 3D 86
3.7.3 Diagramme de régime de croissance *Pe-Da* 87

.

3.1 Modèle théorique

Nous rappelons tout d'abord dans cette section les équations de conservation qui décrivent le problème à l'échelle du pore ainsi que les conditions limites associées, brièvement présentées dans le Chapitre 2. À cette échelle, trois phases en présence sont considérées : la phase solide (s), la phase fluide (f) et la phase biofilm (b).

3.1.1 Hypothèses

Compte tenu de la complexité des phénomènes biologiques et physico-chimique impliqués dans l'évolution des populations bactériennes au sein du milieu poreux (i.e., disponibilité du nutriment, résistance mécanique du biofilm et influence des forces de cisaillement sur le détachement des bactéries sessiles, compétition pour le substrat et effet de symbiose entre les différentes populations bactériennes, « Quorum Sensing », évolution de l'état physiologique des cellules), des hypothèses simplificatrices sont requises afin de réussir à décrire les principaux mécanismes dans leur globalité lors de la modélisation numérique. En particulier, nous considèrerons par la suite que :

— La matrice solide est supposée indéformable et le milieu parfaitement saturé.
— Une seule espèce bactérienne est présente dans le milieu et uniquement sous forme sessile (biofilm mono-espèce).
— Le biofilm est considéré comme un milieu continu et homogène (Wood et Whitaker 1998) bien que celui-ci soit par nature caractérisé par une hétérogénéité structurelle (cellules bactériennes, EPS, nutriments) et une biodiversité intrinsèque (bactéries, protozoaires).
— Les réactions métaboliques qui entrent en jeu dans le processus de croissance bactérienne ne dépendent que d'un seul soluté, molécule organique servant de source de carbone et d'énergie et jouant le rôle du donneur d'électron dans le processus redox. Les autres substances (accepteur d'électron, sels minéraux, acides aminés) nécessaires à la survie des bactéries sont supposées en large excès dans le milieu. Dans ces conditions, la cinétique de biodégradation est décrite par une cinétique de Monod (MeeGee et al. 1970).
— le soluté est transporté par convection - diffusion dans la phase fluide et uniquement par diffusion dans la phase biofilm. En d'autres termes, les macro-porosités au sein du biofilm où de la convection pourrait avoir lieu sont supposées suffisamment larges pour être discrétisées de manière explicite et sont donc rattachées à la phase fluide.
— la concentration de l'espèce chimique dissoute dans la phase fluide est suffisamment faible de sorte que le transport du soluté dans l'eau ne modifie pas les propriétés physiques initiales du fluide, autrement dit sa viscosité dynamique μ_f ainsi que sa masse volu-

mique ρ. De cette manière, les équations d'écoulement et de transport peuvent être découplées.

— le détachement d'une partie du biofilm (et son rattachement éventuel à une surface solide) est supposé ne dépendre que des contraintes externes de cisaillement. Les détachements d'amas bactériens ou détachements par mue sont négligés (détachement par érosion uniquement).

Pour conclure, nous utiliserons par la suite à notre avantage l'hypothèse de séparation des temps caractéristiques des différents processus mis en jeu (écoulement, transport et croissance de la biomasse) en adoptant une approche *quasi-stationnaire*. En effet, le temps caractéristique de relaxation du champ de vitesse est très petit devant le temps caractéristique de transport, qui est lui-même généralement très petit devant le temps caractéristique de croissance du biofilm (Picioreanu et al. 1998b). Cette hypothèse est dans la plupart des cas valide (Skowlund 1990). On résoudra ainsi les équations d'écoulement et de transport d'espèce de manière stationnaire, l'évolution temporelle du milieu étant régie au travers de l'équation de croissance bactérienne (et le modèle d'automate cellulaire associé).

3.1.2 Mise en équation

Sur la base des hypothèses formulées ci-dessus, le problème à l'échelle microscopique peut finalement être énoncé comme suit.

3.1.2.1 Équation de conservation du mouvement

Dans la phase fluide, l'écoulement d'un fluide newtonien incompressible en régime permanent et à faible nombre de Reynolds, est décrit par les équations de Stokes :

$$\nabla p = \mu_f \nabla^2 \mathbf{u}, \qquad \text{dans la phase fluide} \tag{3.1}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \qquad \text{dans la phase fluide} \tag{3.2}$$

auxquelles viennent s'ajouter des conditions limites de non glissement aux interfaces fluide-solide A_{fs} et fluide-biofilm A_{fb},

$$C.L.1 \qquad \mathbf{u} = 0, \qquad \text{sur } A_{fb} \tag{3.3}$$

$$C.L.2 \qquad \mathbf{u} = 0, \qquad \text{sur } A_{fs} \tag{3.4}$$

Ici p, $\mathbf{u}$ et μ_f représentent respectivement la pression, le vecteur vitesse et la viscosité dynamique du fluide. A_{ij} désigne les interfaces entre les phases i et j $(i, j = f, b, s)$, et $\mathbf{n}_{ij}$ les normales extérieures aux interfaces entre la phase i et j . Ces équations sont résolues à l'aide du modèle $LB - IBM$ détaillé dans le chapitre précédent. Il faut rappeler ici que les interfaces A_{ib}, bien qu'évoluant au cours du temps, sont supposées se déplacer lentement comparativement à la relaxation du champ de pression (approximation quasi-stationnaire) de telle sorte qu'une condition de non-glissement puisse être adoptée.

3.1.2.2 Transport du soluté

Le transport de l'espèce chimique en solution dans les phases fluide et biofilm est régi par le système d'équations de conservation suivant :

$$\nabla \cdot (\mathbf{u} c_f) = \nabla \cdot (D_f \nabla c_f), \qquad \text{dans la phase fluide} \tag{3.5}$$

$$0 = \nabla \cdot (D_b \nabla c_b) - R_b, \qquad \text{dans la phase biofilm} \tag{3.6}$$

$$D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n_{fb}} = D_b \nabla c_b \cdot \mathbf{n_{fb}}, \qquad \text{sur } A_{fb} \tag{3.7}$$

$$c_f = K_{bf}\, c_b, \qquad \text{sur } A_{fb} \tag{3.8}$$

$$0 = D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n_{fs}}, \qquad \text{sur } A_{fs} \tag{3.9}$$

$$0 = D_b \nabla c_b \cdot \mathbf{n_{bs}}, \qquad \text{sur } A_{bs} \tag{3.10}$$

où c_f (resp. c_b) est la concentration du soluté au sein de la phase fluide (resp. biofilm) et D_f et D_b sont les coefficients de diffusion dans chacune des deux phases. K_{bf} représente le coefficient de partage entre les deux phases (sa valeur est généralement proche de 1 pour un système fluide/biofilm). En considérant que seul le soluté est limitant dans la réaction (e.g., accepteur d'électrons en excès), le terme de réaction R_b lié à l'activité bactérienne suit une cinétique non linéaire de Monod du premier ordre :

$$R = -\rho_{bio} \mu \frac{c}{c + K} \tag{3.11}$$

Avec ρ_{bio}, μ, K respectivement la concentration en biomasse, le taux maximum de réaction et le constante de demi-saturation.

3.1.2.3 Évolution de la biomasse

La dernière équation couplée est reliée à l'évolution au cours du temps de la concentration en biomasse ρ_{bio}. Celle-ci est régie par l'équation de conservation donnée ci-dessous :

$$\frac{\partial \rho_{bio}}{\partial t} = F_\lambda \rho_{bio} \mu \frac{c}{c + K} - k_d \rho_{bio} \tag{3.12}$$

F_λ est le coefficient stoechiométrique de la réaction biologique et k_d est le coefficient d'extinction des bactéries.
Cette loi simplifiée ne tient compte que de la croissance bactérienne produite par la consommation de substrat C et de l'extinction des bactéries k_d . Elle ne décrit pas en revanche la distribution spatiale de la biomasse au sein du milieu poreux. La croissance du biofilm, qui découle directement de cette équation, sera prédite au travers du modèle d'automate cellulaire détaillé dans le paragraphe 3.3.

3.1.3 Conditions aux limites

Des conditions limites de type Dirichlet ou Neumann sont classiquement imposées aux frontières externes du domaine. Sur les parois d'entrée et de sortie, une condition en pression ou vitesse imposée est donnée d'une part avec une concentration fixée C_0 à l'entrée et une condition de flux libre d'autre part. Des conditions de périodicité, de symétrie ou de parois imperméables peuvent être fixées sur les limites latérales.

3.1.4 Adimensionnement des équations

À ce stade, nous avons un système complet d'équations décrivant l'écoulement, le transport de soluté et la croissance de la biomasse au sein du domaine à l'échelle du pore. Afin de faciliter l'analyse des résultats et leur interprétation, les équations presentées ci-dessus peuvent être mises sous forme adimensionnelle en introdusisant les variables adimensionnées ci dessous :

$$x^{'} = \frac{x}{l},\ y^{'} = \frac{y}{l},\ z^{'} = \frac{z}{l},\ t^{'} = t\ \frac{D_f}{l^2},\ c_i^{'} = \frac{c_i}{C_0}, \quad (i = f, b) \tag{3.13}$$

$$p^{'} = \frac{p\,l}{\mu_f\, u_{moy}},\ \mathbf{u}^{'} = \frac{\mathbf{u}}{u_{moy}},\ \rho_{bio}^{'} = \frac{\rho_{bio}}{\rho_{biomax}} \tag{3.14}$$

$$K^{'} = \frac{K}{C_0}, \mu^{'} = \mu\frac{l^2}{D_f},\ k_d^{'} = k_d\frac{l^2}{D_f},\ D_i^{'} = \frac{D_i}{D_f} \tag{3.15}$$

ρ_{biomax}, C_0, u_{moy} et l représentent respectivement la concentration maximale en biomasse, la concentration de substrat imposée en entrée du domaine, la vitesse moyenne et une longueur caractéristique du milieu. L'objectif d'une telle approche est de mettre en évidence les nombres adimensionnels qui contrôlent les processus mis en jeu et de dégager les variables indépendantes.

Nous obtenons ainsi le système d'équations réduites suivant (l'indice d'adimensionnement ' sur l'opérateur nabla n'a pas été conservé par souci de lisibilité),

Phase fluide :

$$\nabla p^{'} = \nabla^2 \mathbf{u}^{'}, \tag{3.16}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u}^{'} = 0, \tag{3.17}$$

$$Pe\,\mathbf{u}^{'} \cdot \nabla c_f^{'} = \nabla \cdot (D_f^{'} \nabla c^{'}) \tag{3.18}$$

Phase biofilm :

$$0 = \nabla \cdot (D_b^{'} \nabla c_b^{'}) - Da\,\rho_{bio}^{'} \frac{c_b^{'}}{\frac{c_b^{'}}{K^{'}} + 1}, \tag{3.19}$$

$$\frac{\partial \rho_{bio}^{'}}{\partial t^{'}} = Da\,G\,\rho_{bio}^{'} \frac{c_b^{'}}{\frac{c_b^{'}}{K^{'}} + 1} - k_d^{'} \rho_{bio}^{'} \tag{3.20}$$

en utilisant les nombres adimensionnels introduits dans le Chapitre 2, i.e. :

$$\text{Nombre de Péclet : } Pe = \frac{u_{moy} \cdot l}{D_f} \tag{3.21}$$

$$\text{Nombre de Damköhler : } Da = \frac{\mu \cdot l^2 \cdot \rho_{biomax}}{D_f K} = \frac{\mu^{'}}{K^{'}}\Gamma \tag{3.22}$$

et le paramètre adimensionnel G qui traduit le découplage entre le temps caractéristique de croissance du biofilm et celui de consommation du substrat (il faut consommer G unités de substrat pour produire une unité

de biomasse), sur lequel repose une partie de l'hypothèse de quasi-stationnarité :

$$G = \frac{F_\lambda}{\Gamma} \quad \text{avec } \Gamma = \frac{\rho_{biomax}}{C_0} \tag{3.23}$$

3.2 Modèle numérique

Le modèle numérique, codé en Fortran 90, vise à modéliser le transport d'un soluté réactif en milieu poreux et la croissance de la biomasse à l'échelle du pore dans une configuration $3D$. Ce modèle comprend, outre la résolution numérique des Eqs, 3.1- 3.4, Eqs. 3.5- 4.17 et Eq. 3.12, un algorithme d'automate cellulaire pour décrire la répartition spatiale du biofilm ainsi que des algorithmes de détachement et d'attachement.

Afin de prendre en compte de manière précise l'évolution de la géométrie du domaine tout en évitant des opérations couteuses et fréquentes de remaillage, l'écoulement a été résolu en utilisant un modèle de Lattice Boltzmann couplé avec une approche de frontières immergées (IB-LBM) modèle présenté dans le chapitre précédent.

De manière similaire et sur la base de l'étude comparative menée dans le Chapitre 2, le transport des espèces chimiques dans les phases fluide et biofilm a été résolu en utilisant une approche de type VOF (Volume Of Fluid) et en considérant une hypothèse d'équilibre local entre les deux phases à l'échelle de la sous-maille. Ceci revient à supposer qu'au sein d'une maille, les concentrations moyennes de soluté dans la phase fluide et biofilm sont globalement à l'équilibre thermodynamique. Autrement dit, une seule grandeur, notée C, suffit à caractériser la concentration dans chaque maille. Sous cette hypothèse, le système d'équations de transport, Eqs. 3.5- 4.17, se ramène à une seule et unique équation valable dans tout le domaine et fonction localement de la fraction volumique de biofilm $\phi(\mathbf{x}, t)$ au sein de la maille. Elle s'exprime alors sous la forme :

$$\nabla \cdot (\mathbf{u}_\phi C) = \nabla \cdot (D_\phi \nabla C) - R_\phi \tag{3.24}$$

avec C la concentration du substrat et $\phi(\mathbf{x}, t)$ la fraction volumique de biofilm. D_ϕ, R_ϕ et $\mathbf{u}_\phi$ représentent respectivement le coefficient de diffusion, le terme de réaction et le vecteur vitesse. Ils sont définis en fonction de ϕ de telle sorte que pour les deux cas limites, i.e. : $\phi = 0$ et $\phi = 1$, on récupère l'équation de conservation pour une maille totalement fluide ou totalement biofilm.

$$D_\phi(\mathbf{x}, t) = \phi(\mathbf{x}, t) D_b + (1 - \phi(x, t)) D_f, \tag{3.25}$$

$$R_\phi(\mathbf{x}, t) = \phi(\mathbf{x}, t) R_b(\mathbf{x}, t), \tag{3.26}$$

$$\mathbf{u}_\phi(\mathbf{x}, t) = (1 - \phi(\mathbf{x}, t)) \mathbf{u}(\mathbf{x}, t). \tag{3.27}$$

où D_b, D_f, R_b sont respectivement le coefficient de diffusion dans le phase biofilm, le coefficient de diffusion dans le phase fluide et le terme de réaction dans le phase biofilm. L'équation est discrétisée à l'aide de la méthode des Volumes Finis avec un schéma numérique amont pour la

partie convective. Une méthode de pénalisation est appliquée sur la partie solide (un coefficient fictif de diffusion, inférieur de plusieurs ordres de grandeur à D_f et D_b, est affecté à la phase solide) afin de modéliser les conditions de flux nul aux interfaces fluide-solide (ou biofilm-solide).

La concentration en biomasse ρ_{bio} est calculée ensuite à chaque pas du temps à partir de l'Eq. 3.12 ce qui permet de déterminer la valeur par maille de la fraction volumique ϕ (la densité de la biomasse étant supposée constante dans tout le domaine). Comme ρ_{bio} ne peut pas augmenter indéfiniment (le volume de chaque maille étant fini), celle-ci est répartie spatialement à l'aide du modèle d'automate cellulaire (décrit plus en détails dans le paragraphe 3.3), dès que sa valeur dépasse localement une valeur arbitraire notée ρ_{biomax} (correspondant à une valeur de $\phi = 1$). Le pas de temps de calcul est défini par rapport à un pas de temps de croissance de référence, noté t_{growth} défini comme permettant une augmentation de ϕ de 0.01 sur la base d'un taux de réaction maximal.

Quant aux phénomènes de détachement et d'attachement/transport du biofilm, ils interviennent également à chaque pas de temps (cf paragraphe 3.4 et 3.5 pour plus de détails). Le détachement éventuel d'un partie du biofilm formé est calculé maille par maille selon que la valeur critique du taux local de cisaillement soit atteinte ou non. Les flocs détachés sont transportés le long des lignes de courant jusqu'à ce qu'ils trouvent une maille biofilm ou solide sur laquelle ils peuvent s'attacher ou sortent des frontières du domaine.

Le champ de concentration est ensuite recalculé afin de prendre en compte la variation spatiale de la concentration en biomasse enregistrée au pas de temps antérieur. Par contre, la résolution de l'équation de l'écoulement est conditionnée par le changement de la distribution spatiale, i.e. : la géométrie du biofilm. La Figure 3.1 décrit le fonctionnement général du modèle.

3.3 Automate cellulaire

La répartition spatiale du biofilm est gérée via un automate cellulaire activé dès que la concentration de la biomasse dépasse la valeur seuil imposée.

Comme pour tous les modèles numériques de croissance de biofilm, le principe de l'automate cellulaire est fondé sur l'hypothèse d'une croissance bactérienne vers les zones dont la concentration en substrat est la plus élevée.

Dans ce contexte, le modèle de l'automate cellulaire développé au laboratoire (Cuny 2014) reposait dans sa version initiale sur l'idée de répartir la biomasse excédentaire sur plusieurs cellules voisines (8 en $2D$, 26 en $3D$) au prorata de leur concentration en substrat. Tout d'abord, la répartition était orientée préférentiellement vers les cellules fluides,

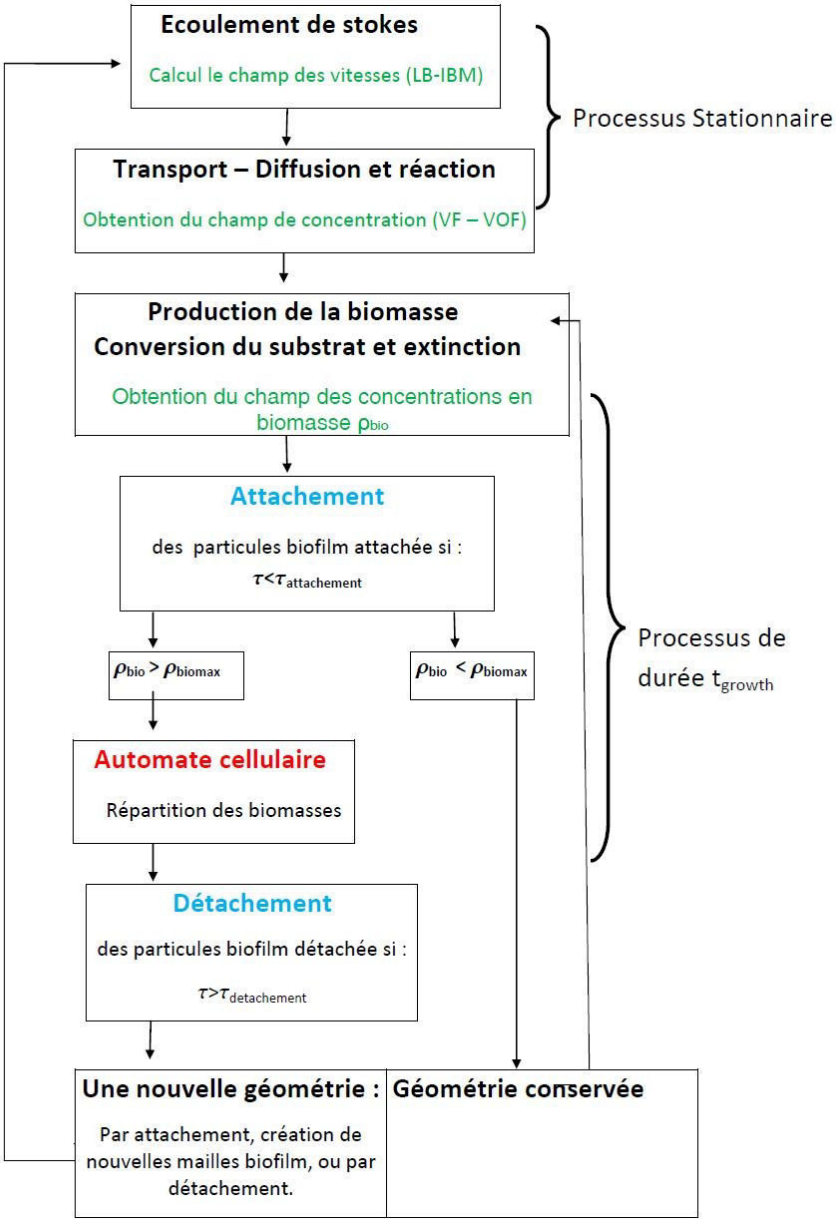

FIGURE 3.1 – *Structure de l'algorithme général du modèle*

sinon vers les cellules biofilm pour lesquelles $\rho_{bio} < \rho_{biomax}$. Dans l'hypothèse où toutes les cellules voisines étaient des cellules biofilm avec $\rho_{bio} \geq \rho_{biomax}$, l'automate choisissait au hasard l'une d'entre elles pour répartir le biomasse excédentaire. Cet excédent était ensuite réparti de nouveau sur les mailles voisines de la cellule cible, et ce, jusqu'à ce que la valeur maximale de ρ_{bio} ne soit plus dépassée (algorithme de poussée).

Nous avons testé cette version de l'automate sur un biofilm se développant dans un milieu fluide au repos (en absence d'écoulement), impliquant un transfert du substrat uniquement par diffusion depuis une source idéale localisée sur la limite supérieure du domaine. Initialement, le biofilm était présent sous forme d'un patch rectangulaire. Ce test, mené aussi bien dans une configuration $2D$ que $3D$, a révélé que la croissance

du biofilm simulée n'était pas réaliste. Le biofilm avait tendance à croître préférentiellement selon les diagonales. (Fig. 3.2a, Fig. 3.2b).

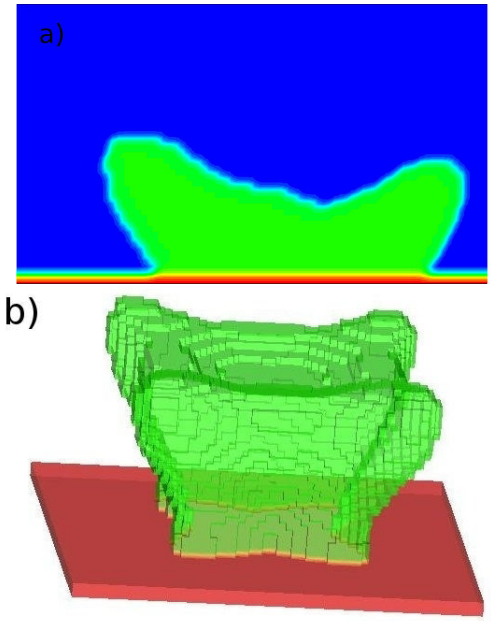

FIGURE 3.2 – *Distribution spatiale de la biomasse simulé dans le cas d'une concentration de substrat imposée sur la limite supérieure du domaine, en absence d'écoulement. Les résultats indiquent une direction préférentielle de développement du biofilm selon les diagonales. La biomasse est représentée en vert, la paroi solide en rouge et le fluide en bleu. a) Simulation 2D, b) Simulation 3D.*

Cette distribution est vraisemblablement due à un biais causé par l'utilisation d'un maillage cartésien. En effet, la croissance est complètement contrôlée ici par la diffusion. Le champ de concentration en substrat est au départ très homogène, et le biofilm se développe uniformément. Mais on observe toujours l'existence d'un gradient de concentration autour des biofilms. Compte tenu des conditions aux limites et de l'absence d'écoulement, les isoconcentrations présentent une forme globalement circulaire autour du patch de biofilm, du moins localement. Ces isocontrations circulaires génèrent des différences minimes mais non nulles entre les cellules lors du passage en maillage cartésien. Cette discrétisation cartésienne crée des mailles ayant une valeur de concentration en substrat légèrement plus importante sur la diagonale de certaines cellules biofilm. La croissance du biofilm étant un phénomène instable, peu à peu des directions diagonales préférentielles de développement apparaissent, ce qui déforme encore plus le champ des concentrations et entraîne une croissance privilégiée selon ces directions (Fig. 3.3).

Pour résoudre le problème rencontré par cette approche, nous avons exclu dans un premier temps, les mailles diagonales lors de la répartition de la biomasse. Si les tests effectués montraient bien l'influence de cette correction sur la distribution de la biomasse ((Fig. 3.4) - pas de croissance préférentielle selon les mailles diagonales), ils soulignaient également sa limite. En effet, la croissance semble être cette fois-ci très uniforme avec une évolution uniquement verticale du biofilm ce qui contredit les résultats expérimentaux et numériques obtenus dans la littérature (Picioreanu

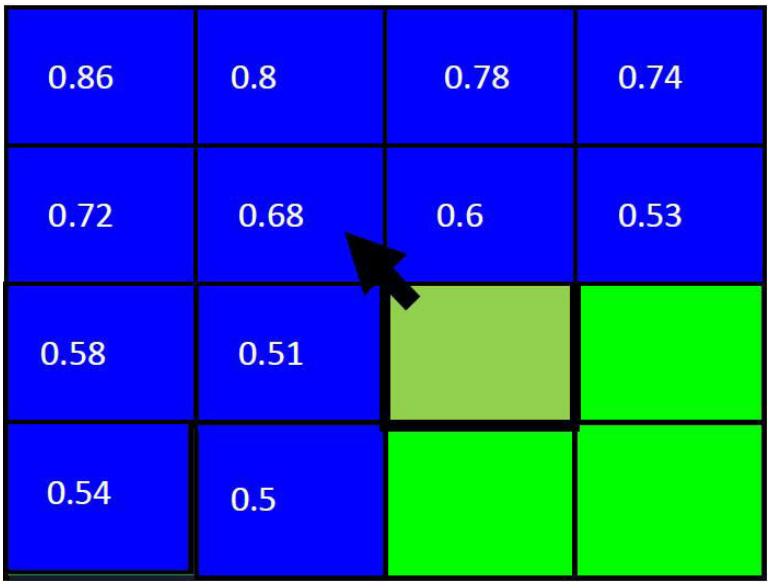

FIGURE 3.3 – *Exemple schématique de discrétisation du gradient de concentration sur un maillage cartésien*

et al. 1998a), (Eberl et al. 2001). Bien que la distribution de biomasse soit effectuée dans les 4 cellules adjacentes à la cellule d'interrogation, cette répartition est menée au prorata de la concentration en nutriment dans les cellules voisines. Or le gradient préférentiel de concentration conduit logiquement à une direction préférentielle de croissance après quelque temps.

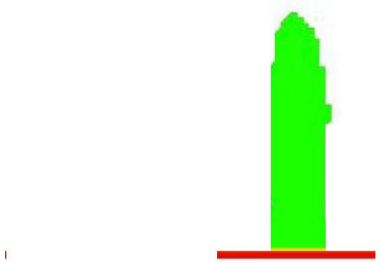

FIGURE 3.4 – *Distribution spatiale de la biomasse simulée dans les mêmes conditions que sur la Figure 3.2 . La biomasse est représentée en vert et la paroi solide en rouge.*

Dans ce contexte, une nouvelle modification de l'algorithme de l'automate cellulaire a été réalisée. Cette fois, la biomasse excédentaire est déposée dans une cellule voisine choisie aléatoirement, en conservant cependant, la même priorité que celle définie précédemment, i.e. : (i) maille fluide, (ii) maille biofilm avec $\rho_{bio} < \rho_{biomax}$ max et (iii) maille biofilm avec $\rho_{bio} > \rho_{biomax}$.

Cet algorithme de distribution est similaire à celui utilisé par (Picioreanu et al. 1998a). L'amélioration apportée ici par rapport à ces modèles repose sur l'utilisation de mailles partiellement occupées par le biofilm. Cette modification est, bien entendu, motivée par l'utilisation des méthodes IB-LBM pour le calcul de l'écoulement et l'approche VOF utilisée pour le transport. À la différence des modèles classiques, la maille "fluide"

n'est plus nécessairement totalement transformée en une maille "biofilm" lorsqu'elle reçoit de la biomasse (Figs. 3.5)a et 3.5)b). À la place, une partie seulement de la maille cible devient du biofilm au travers de l'augmentation de la fraction volumique ϕ de celle-ci (Figs. 3.5)a et 3.5)c). La nouvelle valeur de ϕ est définie comme suit : $\phi = \frac{\Delta\rho}{\rho_{max}}$ avec $\Delta\rho$ l'excédent de biomasse à répartir. Cette approche ne permet pas toutefois de préciser la forme de l'interface fluide-biofilm au sein de la maille, bien que celle-ci soit nécessaire pour l'utilisation de la méthode des frontières immergées dans le calcul du champ de vitesse et de pression. Pour faciliter par la suite la résolution de l'écoulement, nous avons supposé que ces interfaces fictives restent parallèles aux facettes tout en étant perpendiculaires à la direction de poussée (Fig. 3.5)c).

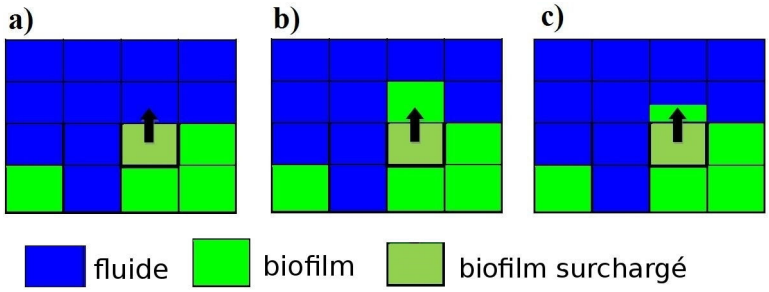

FIGURE 3.5 – *Présentation schématique de la répartition de biomasse par l'automate cellulaire. a) avant la répartition, b) approche discrétisée classique, c) simplification de l'évolution de biofilm avec des interfaces planes.*

Cette version de l'automate cellulaire sera conservée pour la suite de la thèse, elle sera validée dans le chapitre suivant en l'appliquant sur des benchmarks issus de la littérature et sur des géométries de milieu poreux complexes en $2D$ et $3D$.

3.4 Mécanisme de détachement

Le mécanisme de détachement modélisé ici s'apparente à un mécanisme de détachement par érosion plutôt que par mue. Autrement dit, le détachement massif de protubérances ou de bras entiers de biofilm (i.e. plusieurs mailles biofilms connectées entre elles) n'est pas considéré ; seul l'arrachement sous l'effet des forces de cisaillement des couches superficielles du biofilm (i.e., les mailles avec une interface fluide/biofilm) est pris en compte dans le modèle. Nous supposerons que l'arrachement d'une partie ou de la totalité de la biomasse présente au niveau d'une maille se produit lorsque le taux de cisaillement dépasse localement une valeur seuil fixée. Cette approche est bien entendue une vision extrêmement simplifiée de la complexité des processus réellement mis en jeu (résistance mécanique du biofilm fonction de la quantité d'EPS produite, évolution des propriétés mécaniques du biofilm en fonction des condi-

tions environnementales) mais elle conserve la dépendance du taux de détachement à la contrainte de cisaillement et présente l'avantage d'être facile à caler par rapport à des données obtenues en laboratoire (e.g. : Paul et al. 2012). Elle permet en outre de considérer aussi bien des processus d'érosion surfacique (pour des faibles valeurs de ϕ_{det}) que d'érosion volumique (la taille maximale des particules pouvant être détachées étant limitée par la dimension des mailles) qui joue un rôle majeur dans l'évolution de l'épaisseur du biofilm comme souligné par Derlon et al. (2013).

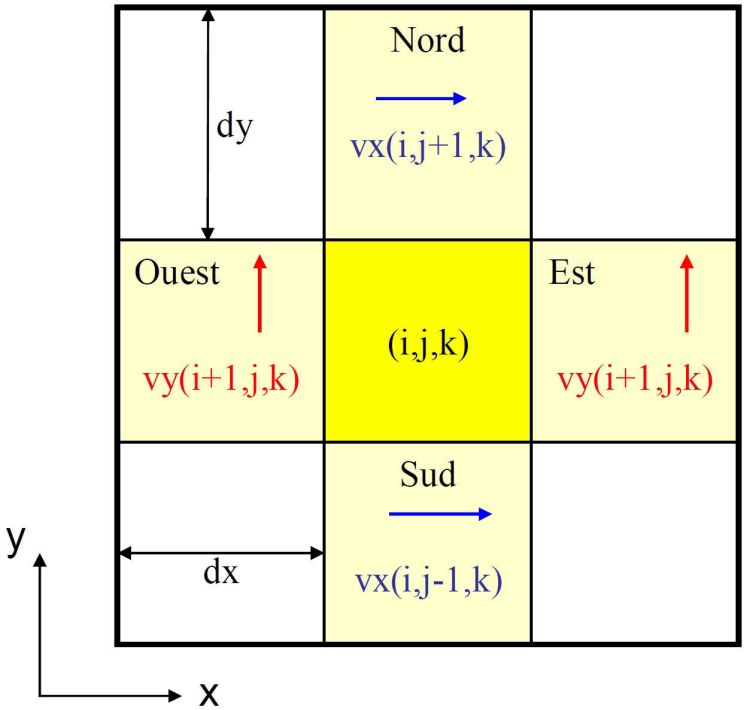

FIGURE 3.6 – *Maille (i, j, k) avec ses quatre voisines et leurs vecteurs vitesse servant au calcul de τ*

Afin de déterminer la quantité de biomasse érodée, nous calculons dans un premier temps les contraintes de cisaillement exercées sur chacune des mailles du biofilm, le long des facettes en contact avec le fluide. La contrainte maximale exercée ainsi sur chaque maille est prise comme valeur de référence pour le calcul du détachement. Cette valeur est évidemment actualisée à chaque pas de temps en fonction des modifications de la géométrie du milieu et de la solution du champ de vitesse. Pour la maille (i, j, k), représentée Figure 3.6, nous obtenons ainsi en 2D :

$$\tau = max(\tau_{nord}, \tau_{sud}, \tau_{est}, \tau_{ouest}) \tag{3.28}$$

$$= \mu_f \times max(\frac{\partial v_y}{\partial x}, \frac{\partial v_x}{\partial y}) \tag{3.29}$$

où les mailles " est, ouest, sud et nord" représentent les mailles fluides voisines de la cellule biofilm. Les gradients pariétaux de vitesse sont dis-

crétisés par différences finis. Nous obtenons ainsi pour la contrainte de cisaillement sur la face supérieure :

$$\tau_{nord} = \mu_f \times \frac{2 \times v_x(i, j+1, k)}{\partial y} \tag{3.30}$$

dans le cas où la maille i, j, k est totalement biofilm (rappelons que la vitesse est nulle lorsque la maille est du biofilm).

Si la contrainte maximale exercée sur la maille biofilm est supérieure à la valeur critique τ_{max}, alors une partie (ou la totalité) de la biomasse présente au sein de la maille est détachée sous l'effet de l'érosion. Afin de modéliser ce processus de détachement, nous nous sommes basés sur les résultats expérimentaux de Paul et al. (2012) qui indiquent que l'épaisseur du biofilm diminue exponentiellement lorsqu'on augmente le taux de cisaillement. Compte-tenu de ces observations, nous avons établi une formulation empirique reliant la fraction volumique de biofilm détaché ϕ_{det} au taux de cisaillement τ tel que :

$$\phi_{det} = 0 \qquad \text{pour } \tau < \tau_{max} \tag{3.31}$$

$$\phi_{det} = e^{C_{det} \frac{(\tau - 2 \times \tau_{max})}{\tau_{max}}} \qquad \text{pour } \tau_{max} \leq \tau \leq 2 \times \tau_{max} \tag{3.32}$$

$$\phi_{det} = 1 \qquad \text{pour } \tau \geq 2 \times \tau_{max} \tag{3.33}$$

avec C_{det} une constante empirique. Un exemple d'évolution de la fraction volumique de biofilm détaché en fonction de la contrainte imposée est présenté sur la Figure 3.7 :

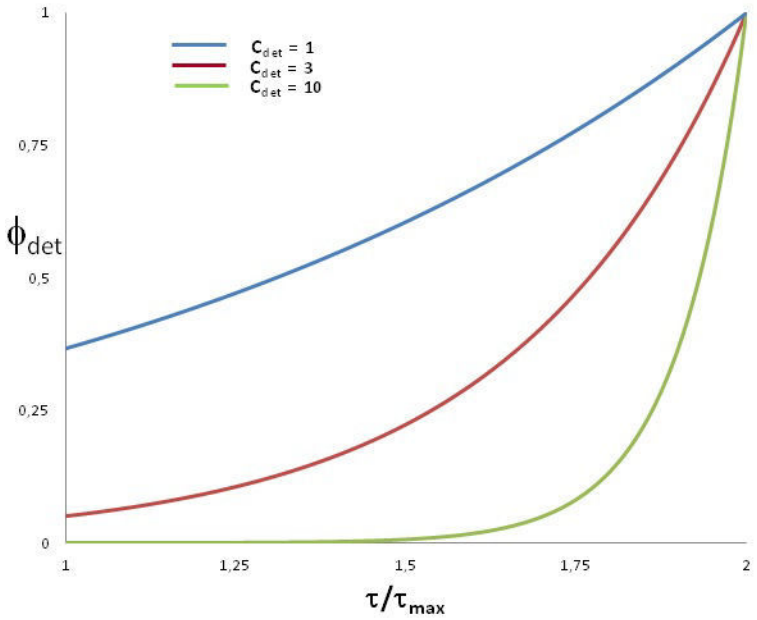

FIGURE 3.7 – *Évolution de la fraction volumique de biofilm détaché ϕ_{det} en fonction de la contrainte imposé τ*

La maille de biofilm est totalement érodée lorsque $\tau \geq 2 \times \tau_{max}$ et celle-ci devient alors une nouvelle maille fluide. Dans le cas contraire, la

fraction volumique de biofilm présent est diminuée de la valeur de ϕ_{det} et la concentration en biomasse associée est déduite de la relation ci-dessous en supposant que la biomasse conserve une masse volumique constante :

$$\rho_{bio} = \rho_{biomax}(\phi - \phi_{det}) \tag{3.34}$$

Il reste maintenir à déterminer le devenir des particules de biofilm arrachés ce qui nous amène à la description du processus d'attachement.

3.5 Mécanisme d'attachement

Les particules de biofilm détachées sont ensuite entraînées par l'écoulement et peuvent potentiellement se réattacher à la paroi d'un grain ou à la surface d'un autre biofilm qu'elles rencontrent sur leurs trajectoires si les contraintes de cisaillement y sont favorables, i.e. : $\tau < \tau_{attach}$. Il faut souligner que ce phénomène est rarement pris en compte dans les modèles de croissance bactérienne (**?**). Il joue pourtant un rôle non négligeable en milieu poreux compte-tenu de la forte variabilité des tailles de pore et donc des contraintes locales de cisaillement.

Les particules détachées sont assimilées à des flocs bactériens transportés le long des lignes de courant. Ils sont supposés suffisamment petits pour ne pas être soumis à des effets inertiels (nombre de Stokes inférieur à 1) et de même masse volumique que le fluide (un biofilm est composé à plus de 90 % d'eau) de telle sorte que les effets de sédimentation soient négligeables. Comme précisé précédemment, le transport des bactéries planctoniques est négligé dans ce modèle. Enfin, les conditions d'attachement sont supposées ne dépendre que des contraintes hydrodynamiques environnementales, i.e. : de la valeur du taux de cisaillement local.

Compte tenu des hypothèses émises, le transport des particules de biofilm arrachées est modélisé par une approche de type ligne de courant (3.8). On vérifie ainsi pour chaque maille fluide traversée ou jusqu'à ce que le floc bactérien soit transporté hors du domaine de calcul, si les conditions de cisaillement lui permettent d'adhérer à l'interface fluide/solide ou fluide/biofilm. Dans le cas où cette condition est vérifiée, la maille fluide devient alors une nouvelle maille biofilm (partiellement ou en totalité).

L'algorithme général de ce module détachement (voir 3.1) peut se résumer ainsi :

1. Recherche de toutes les mailles fluides contenant une concentration en biomasse non nulle.
2. Pour chaque maille de ce type, on réalise sur la durée du pas de temps de calcul $\Delta total = t_{growth}$ les étapes suivantes :
   (a) Calcul de t_{min} = le temps de parcours requis entre la maille courante et la maille voisine le long de la ligne de courant (de centre de maille à centre de maille).
   (b) Déplacement de la particule de biofilm virtuelle dans la maille suivante sur la ligne de courant.

(c) Vérification si l'attachement est possible - si au minimum une des mailles voisines est du type biofilm ou solide, interrogation si $\tau < \tau_{attach}$.

i. Si OUI, (Fig. 3.8)b), la particule de biofilm est attachée (la maille est transformée en maille biofilm) et on traite une nouvelle particule mobile. (Retour en 2.)

ii. Si NON, (Fig. 3.8)a), on incrémente le temps de sorte que $\Delta total = \Delta total - tmin$ et on revient en (a) afin de déplacer d'une maille supplémentaire la particule de biomasse mobile jusqu'à ce que $\Delta total = 0$ ou que la particule sorte du domaine, si celle-ci n'a pas adhéré à une interface entre temps.

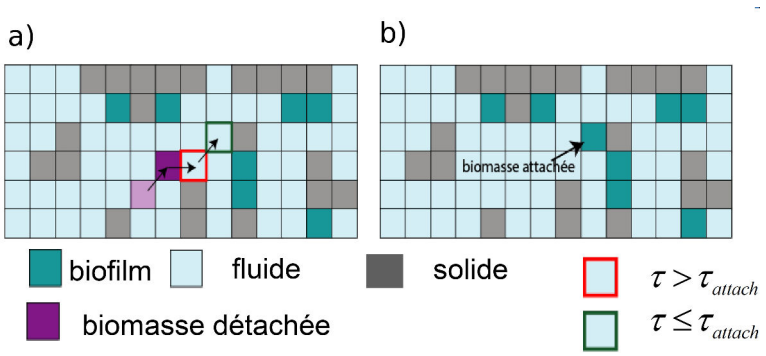

FIGURE 3.8 – *Représentation schématique d'étapes d'attachement*

3.6 Validation du modèle de croissance de biofilm

Afin d'évaluer la capacité de notre modèle numérique, une étape de validation par rapport à des données expérimentales ou des benchmarks 'numériques' issus de la littérature est indispensable. Compte-tenu de la difficulté de mettre en place de telles expériences ou de disposer de données expérimentales dans des conditions contrôlées (et donc reproductibles d'un point de vue de la modélisation), notre choix s'est porté sur la seconde option. Cette validation s'est effectuée en trois parties. Tout d'abord, nous avons considéré le cas d'un biofilm se développant sur une surface solide plane en $2D$ et $3D$ en condition hydrostatique (i.e. : en absence d'écoulement). Le nutriment est transporté uniquement par diffusion depuis la partie supérieure du domaine. Ce premier cas test nous a permis d'étudier les conditions limites du régime de croissance, i.e. : la limitation par le transport ou par la cinétique. Dans un deuxième temps, nous avons imposé un écoulement latéral afin de vérifier l'influence des conditions hydrodynamiques sur la structure du biofilm modélisé. Enfin, nous avons appliqué notre modèle à des milieu poreux complexes $2D$ et $3D$, afin d'observer le rôle de la croissance du biofilm sur les propriétés géométriques du milieu et notamment sa porosité.

3.6.1 Cas 1 : croissance bactérienne sur une surface solide sous l'effet de la diffusion

3.6.1.1 Description du cas test

Soit le domaine $\Omega = [0, lx] \times [0, lz]$ en $2D$ et $\Omega = [0, lx] \times [0, ly] \times [0, lz]$ en $3D$ discretisé sur un maillage uniforme de dimension $(Nx - 1) \times (Ny - 1) \times (Nz - 1)$ avec une résolution $\Delta x = \frac{lx}{Nx-1} = \frac{ly}{Ny-1} = \frac{lz}{Nz-1}$. On considère n_0 colonies de biofilm distribuées aléatoirement sur une surface solide plane, localisée en $(z = 0)$. Chaque colonie occupe la surface d'une maille et mesure 2 mailles de hauteur selon la verticale (Fig. 3.9). La concentration en biomasse initiale est identique pour toutes les colonies de biofilm et vaut $\rho_0 = \rho_{max}$. Une concentration constante C_0 en nutriment est imposée sur la limite supérieure du domaine, i.e. : en $(z = lz)$. Des conditions aux limites périodiques sont imposées selon les directions x en $(2D)$ et x, y en $(3D)$ afin de ne pas générer d'effets de bord. Enfin, un flux nul est imposé sur la frontière solide en $(z = 0)$.

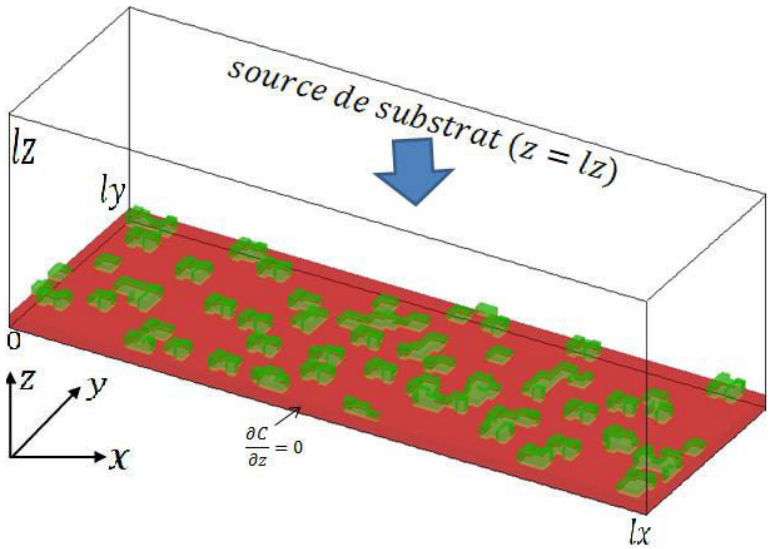

FIGURE 3.9 – *Représentation du domaine étudié pour le Cas test 1. Les colonies bactériennes sont en vert, le substratum solide est représenté en rouge.*

Les valeurs des données de simulation adimensionnées sont reportées ci-dessous (Tab. 3.1). Notons que les valeurs de μ et K dépendent de la valeur de Da considéré.

3.6.1.2 Évolution du biofilm en fonction du temps pour $Da = 10$

Pour cette première simulation, nous avons considéré une valeur intermédiaire du nombre de Damköhler, correspondant à $Da = 10$. Durant les premiers pas de temps de simulation, la concentration étant bien stratifiée sous l'effet de la diffusion et pratiquement constante selon l'horizontale, on observe un développement homogène du biofilm qui occupe pratiquement toute la surface solide (Fig. 3.10a). Cette distribution spatiale s'accompagne, avec l'accroissement des bactéries, d'une modification de la disponibilité du nutriment (Fig. 3.10b). Cette perturbation du champ

TABLE 3.1 – *Valeurs de simulation utilisées en 2D et 3D pour le Cas test 1*

Paramètre	valeur en $2D$	valeur en $3D$
lx'	3	1
ly'	–	1
lz'	1	1
Nx	151	66
Ny	–	66
Nz	51	66
n_0	70	200
$\rho'_{max} = \rho'_0 = 1$	1	1
D'_f	1	1
D'_b	0.25	0.25
F_λ	0.7	0.7
k'_d	5×10^{-3}	10^{-4}
Γ	300	300

de concentration qui s'amplifie au fur et à mesure vient déstabiliser à son tour le développement de la biomasse (Fig. 3.10b- Fig. 3.10c). En effet, la quantité de substrat étant le facteur limitant, les colonies bactériennes proches de la source continuent de croître et de produire de la biomasse au détriment de celles plus éloignées. Cette distribution hétérogène, qui favorise les grandes colonies bactériennes (Fig. 3.10d), conduit à la formation de structures de type doigts en $2D$ (Fig. 3.10c-Fig. 3.10d) ou de type champignons en $3D$ (Fig. 3.13b, Fig. 3.13d) qui ont été également rapportées dans la littérature (Costerton et al. 1994, Picioreanu et al. 1998a, Eberl et al. 2001).

3.6.1.3 Influence de la valeur du Da sur la croissance de la biomasse

Nous nous intéressons maintenant à l'influence du nombre de Damköhler sur la croissance du biofilm aussi bien pour des configurations $2D$ que $3D$, en régimes limités par la croissance bactérienne ou par le transfert du substrat par diffusion.

Pour des faibles valeurs de Da, l'influence du taux de transfert du substrat au sein du biofilm est prédominante. En présence d'une faible consommation par les bactéries, le substrat pénètre une partie importante du biofilm (dans la Figure 3.11a, le profil de la concentration moyenne $\bar{C}$ montre une pénétration du substrat sur toute l'épaisseur du biofilm). Ceci conduit à un taux maximal de croissance microbienne et une concentration en bactéries plus ou moins uniforme sur l'ensemble du biofilm. On observe ainsi un biofilm compact et plus lisse (Fig. 3.11a, Fig. 3.13a-Fig. 3.13b), correspondant à une croissance limitée par la cinétique. En revanche, lorsque la cinétique de réaction augmente (Fig. 3.11b-Fig. 3.11d), (Fig. 3.13c-Fig. 3.13d), celle-ci devient de plus en plus importante par rapport au taux de diffusion. La croissance est alors limitée par le transport. On observe que la surface externe du biofilm devient plus irrégulière et le biofilm de plus en plus poreux avec des nombreux canaux et des vides entre les colonies qui se développent sous forme de doigts. La concentration n'atteignant plus que les couches superficielles du biofilm (partie

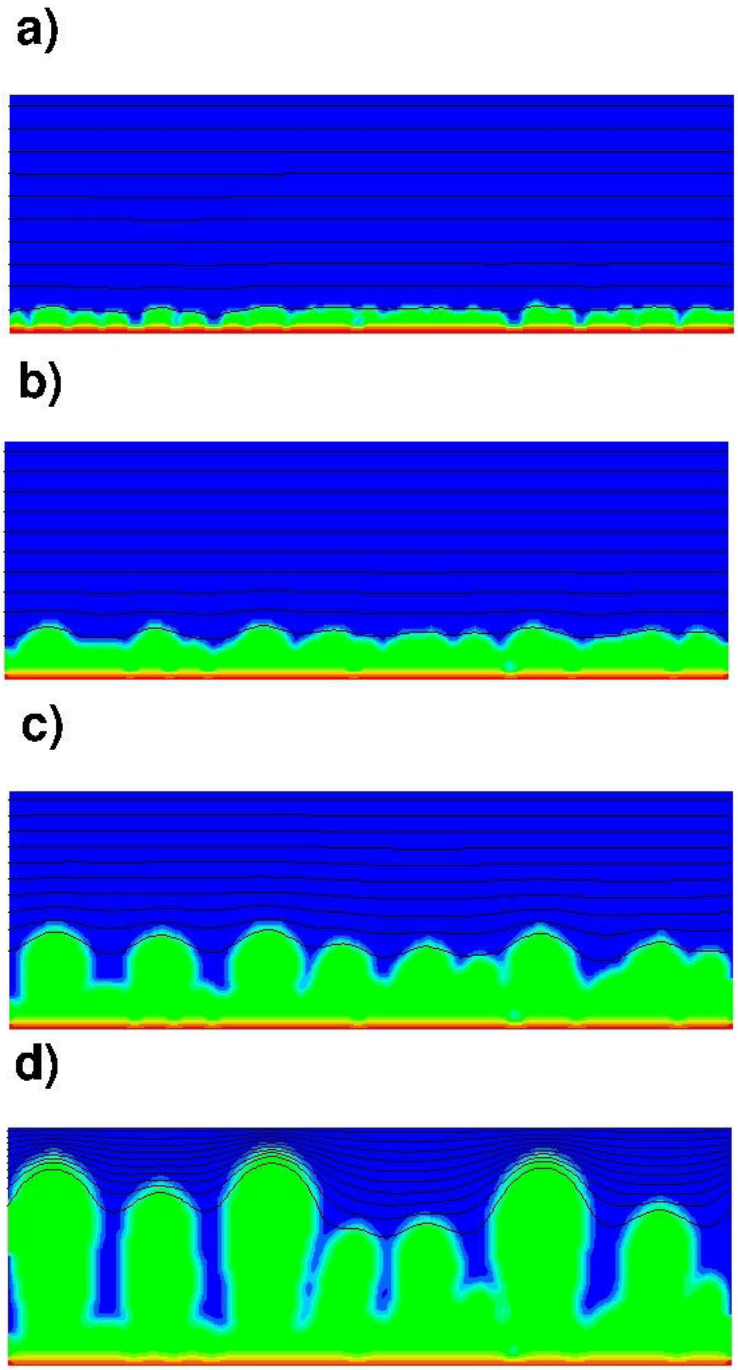

FIGURE 3.10 – *Évolution temporelle de la géométrie 2D d'un biofilm pour* $Da = 10$. *Le biofilm est représenté en vert, le fluide en bleu et le substratum solide en rouge. Les lignes noires indiquent les valeurs d'iso-concentrations. Celles-ci montrent la décroissance de la concentration en substrat depuis la surface supérieure fluide (zone bleu) jusqu'au biofilm (en vert), avec une variation de* 10% *entre les lignes. a)* $t' = 10$, *b)* $t' = 50$, *c)* $t' = 100$, *d)* $t' = 160$.

supérieure des doigts), le processus instable de croissance se retrouve amplifié. Les digitations deviennent ainsi de plus en plus fines et de plus en plus resserrées (diminution de la longueur d'onde des digitations) lorsque le Da augmente. En conséquence, la concentration bactérienne moyenne $\bar{\rho}$ devient aussi plus étalée selon la verticale du domaine comme

elle diminue lorsqu'on se rapproche de l'extrémité des digitations mais aussi 'à proximité du support solide où sous l'effet de la raréfaction en nutriments, les couches de bactéries les plus matures sont impactées par l'extinction cellulaire. On retrouve un comportement similaire pour les configurations $2D$ et $3D$.

La Figure 3.12 qui correspond à un zoom de la partie encadrée de la Figure 3.11c, présente les gradients en concentration qui sont proportionnels aux flux de masse transférés au biofilm. Lorsque le Da augmente, le flux n'est plus perpendiculaire au substrat, mais plutôt perpendiculaire à la surface du biofilm, ce qui est en accord avec les résultats numériques de (Picioreanu et al. 1998a) ainsi qu'avec les profils d'oxygène mesurés expérimentalement par (de Beer et al. 1994).

3.6.2 Cas 2 : croissance bactérienne sur une surface solide en présence d'un écoulement

Pour ce second cas test, nous conservons le même domaine d'étude ($2D$ ou $3D$) (lx, ly, lz) et les mêmes données (Tab. 3.1) que précédemment, en modifiant, cependant, les conditions aux limites. La condition imposée sur la limite supérieure du domaine $(z = lz)$ est remplacée par une condition de symétrie et le substrat de concentration $C = C_0$ est injecté en $x = 0$ avec un profil de vitesse parabolique (Fig. 3.14). Ces conditions sont exprimées sous la forme :

$$u_x(0,z) = u_{max} \times (2z/lz - z^2/lz^2),\ z \in [0, lz] \tag{3.35}$$
$$u_z(0,z) = 0,\ z \in [0, lz] \tag{3.36}$$
$$\frac{\partial u_x(x, lz)}{\partial z} = 0, x \in [0, lx] \tag{3.37}$$
$$u_z(x, lz) = 0,\ x \in [0, lx] \tag{3.38}$$
$$\frac{\partial u_x(lx, z)}{\partial x} = 0, z \in [0, lz] \tag{3.39}$$
$$u_z(lx, z) = 0,\ x \in [0, lz] \tag{3.40}$$
$$\left.\frac{\partial C}{\partial n}\right|_{z=lz} = 0 \tag{3.41}$$

Une distribution aléatoire de $n_0 = 25$ colonies a été appliquée au temps initial. Afin de limiter l'influence des conditions aux limites, les colonies ont été disposées entre $x = 0.26\,lx$ et $x = 0.74\,lx$. À $t = 0$ s, chacune des colonies recouvre entièrement la surface d'une maille et mesure 2 mailles de hauteur.

Afin d'étudier l'influence de la convection sur la disponibilité du substrat et l'évolution de la population bactérienne, nous avons modélisé la croissance de biofilm sous différents régimes hydrodynamiques via le nombre de Péclet. Il est important de préciser que les mécanismes d'attachement / détachement des bactéries ont été supprimés pour ces simulations afin de ne pas perturber l'analyse des résultats. Le nombre de

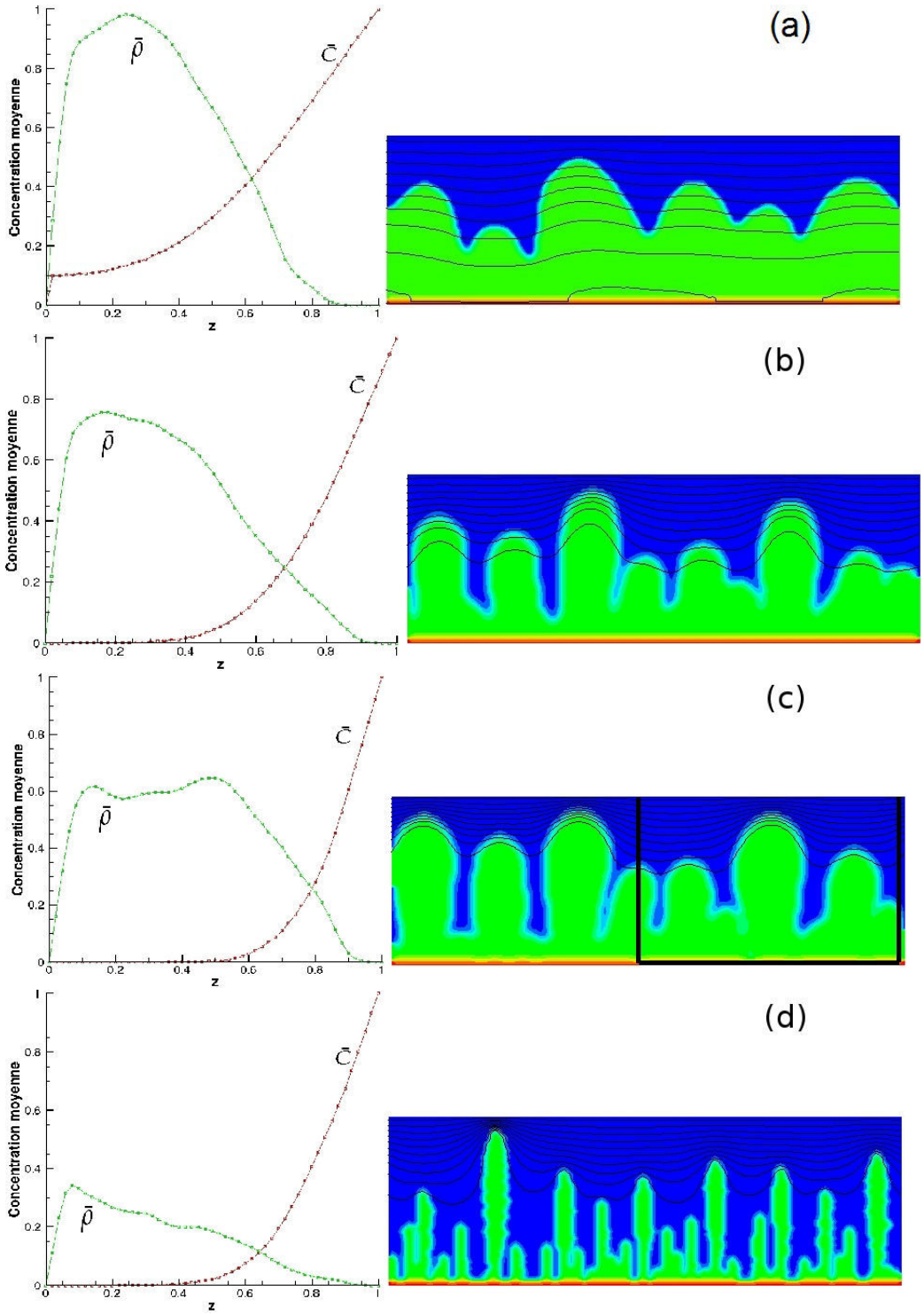

FIGURE 3.11 – *À droite : résultats numériques de la distribution de la biomasse pour différentes valeurs de Da. Les lignes noires représentent les iso-concentration avec une variation de* 10% *entre chacune. À gauche : profils de la concentration moyenne en substrat* $\bar{C}$ *en rouge, et de la concentration moyenne en biomasse* $\bar{\rho}$ *en vert selon z. a)* $Da = 0.05$, $t' = 600$, *b)* $Da = 1$, $t' = 190$, *c)* $Da = 10$, $t' = 160$, *d)* $Da = 1000$, $t' = 46$.

Damköler est conservé constant pour toutes les simulations à $Da = 1$. Les résultats obtenus sont illustrés Figure 3.15 dans le cas 2D pour trois valeurs représentatives du nombre de Péclet : $Pe = 0.1, 1$ et 100.

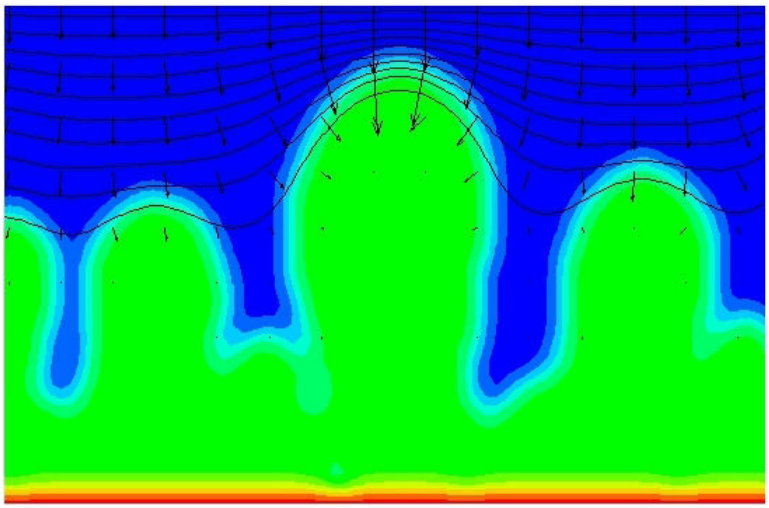

FIGURE 3.12 – *Distribution spatiale de la biomasse - zoom de la partie encadrée sur la figure 3.11c. Les vecteurs représentent le gradient de concentration en substrat.*

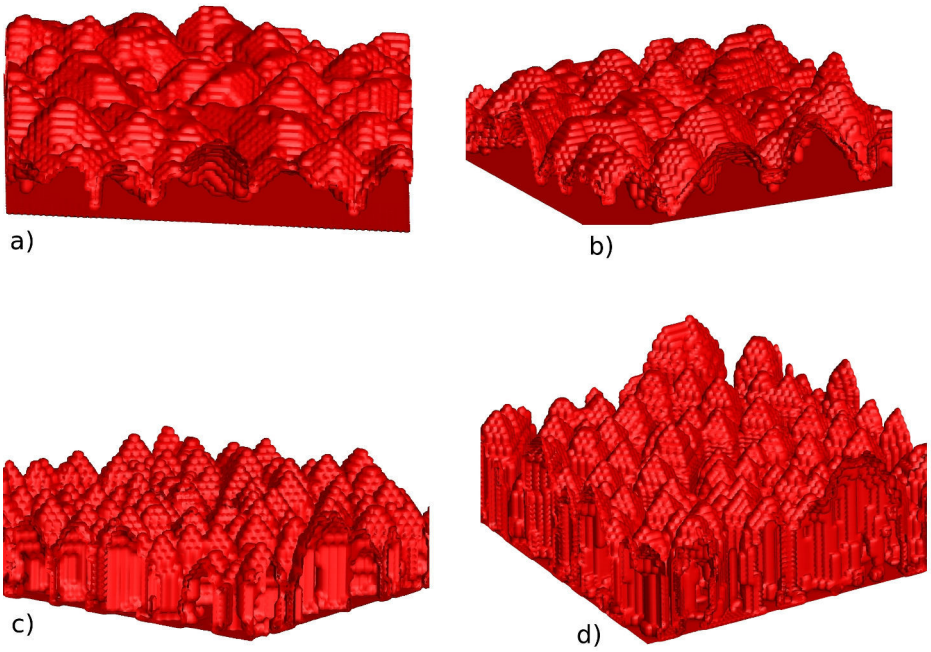

FIGURE 3.13 – *Évolution de la géométrie du biofilm en 3D. Le biofilm est représenté en rouge, a)* $Da = 0.01$, $t' = 86$, *b)* $Da = 0.01$, $t' = 113$, *c)* $Da = 100$, $t' = 26$, *d)* $Da = 100$, $t' = 42$.

— Pour des forts *Pe* (Fig. 3.15c), en absence de mécanisme de détachement, la croissance du biofilm semble ne pas être influencée par le comportement du champ de vitesse. Les colonies du biofilm présentent une croissance pratiquement uniforme. Les hautes vitesses d'écoulement favorisent l'apport constant de nutriment dont les iso-concentrations sont ainsi globalement uniformes autour du patch de biofilm qui s'est développé.
— La diminution du nombre de Péclet (Fig. 3.15a-Fig. 3.15b), entraîne

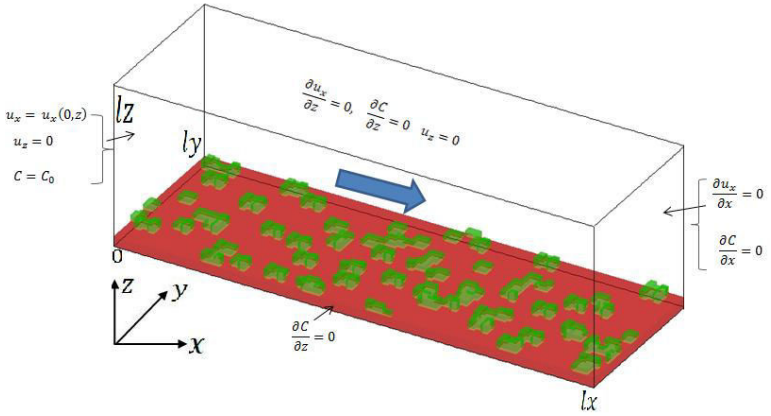

FIGURE 3.14 – *Géométrie initiale du domaine et conditions aux limites du problème. Les colonies bactériennes sont représentées en vert, le substratum solide en rouge. La flèche indique le sens d'écoulement.*

une croissance différenciée en favorisant les colonies à proximité de la source de nutriment. Lorsque le nombre de Péclet diminue (à *Da* constant), le temps caractéristique de convection devient à partir d'une certaine valeur très grand par rapport au temps caractéristique de réaction (donnée par la cinétique de Monod et exprimé au travers de la valeur du nombre de Damköhler). La disponibilité du substrat se retrouve alors diminuée au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la source d'injection (ici, en $x = 0$). Ce phénomène est amplifié par la croissance des colonies les plus proches de la source, qui, en se développant, crée un obstacle à l'écoulement et modifie la distribution des lignes de courant. Ces résultats numériques sont en parfait accord avec ceux obtenus par (Picioreanu et al. 2000a).

3.7 Cas 3 : application à des milieux poreux 2D et 3D

Notre modèle de croissance étant maintenant validée (d'un point de vue qualitatif) sur des configurations simples, nous avons appliqué notre modèle à des géométries plus complexes et plus proches de nos objets d'étude.

3.7.1 Milieu poreux 2D

Nous avons tout d'abord considéré un milieu poreux 2D complexe (Fig.3.16), issu d'une image 2D d'une roche et dont la géométrie avait déjà été utilisée pour des applications en modélisation par Wood et al. (2007). Le milieu est inséminé initialement par un volume de bactéries correspondant à 5,5% du volume total. Les bactéries sont réparties aléatoirement sur les surfaces solides. Un champ de vitesses est imposé à l'entrée du domaine en $x = 0$ tandis que la pression est conservée constante en sortie, et des conditions limites de périodicité sont introduites sur les frontières $z = 0$, $z = lz$. Nous faisons ensuite varier les nombres de Péclet et de Damköler afin d'analyser l'influence des effets de convection et de consommation du substrat ainsi que l'impact des mécanismes de dé-

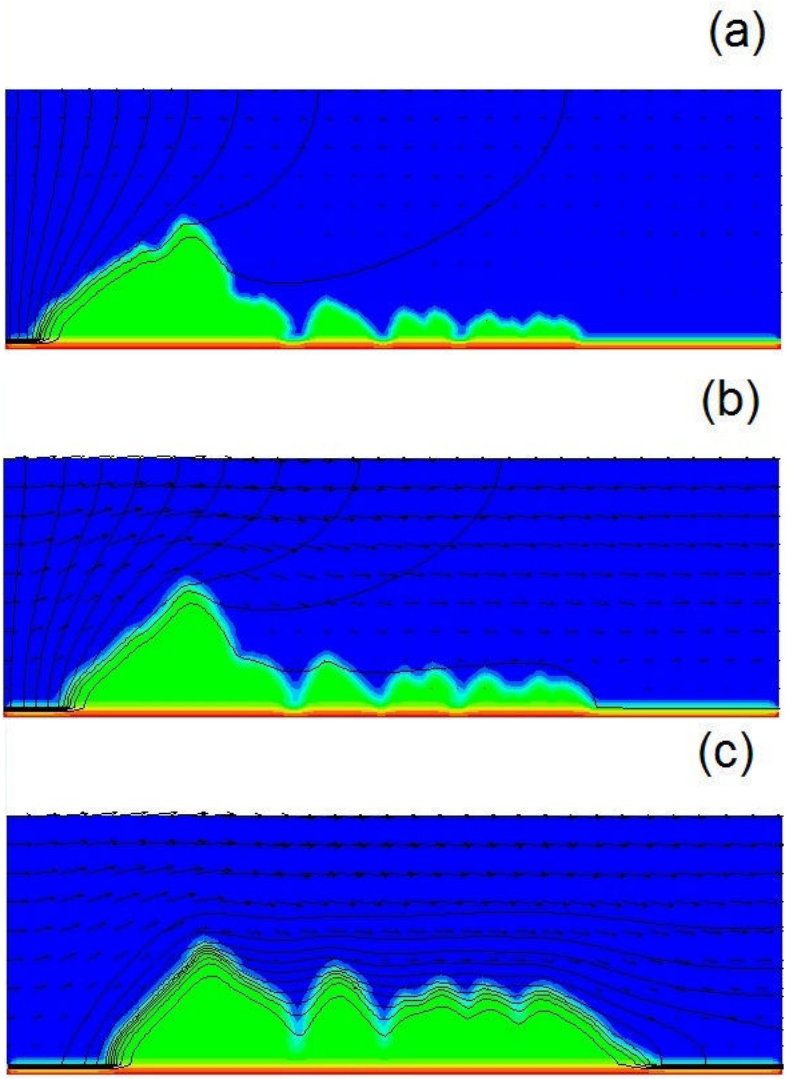

FIGURE 3.15 – *Croissance 2D de biofilm pour $Da = 1$ et différentes valeurs de Pe. Les iso-concentrations sont représentées tous les 10% de variation. Les vecteurs vitesses sont aussi indiqués. a) $Pe = 0.1$, $t' = 1400$, b) $Pe = 1$, $t' = 1100$, c) $Pe = 100$, $t' = 450$.*

tachement et d'attachement sur l'organisation structurale du biofilm. Le tableau ci-dessous (Tab. 3.2) contient les données en valeurs adimensionnées utilisées pour l'ensemble des simulations numériques. Sur l'ensemble des simulations réalisées, trois couples de valeurs $Pe - Da$ ont été retenus comme particulièrement représentatifs des différents faciès de croissance obtenus : $Pe = 1$ - $Da = 10^{-2}$ (faible Pe, faible Da), $Pe = 10^{-1}$ - $Da = 10^{2}$ (faible Pe, fort Da) et $Pe = 500$ - $Da = 10^{-1}$ (Fort Pe, faible Da). Leurs résultats sont discutés ci-dessous.

3.7.1.1 Faible Pe, faible Da

Pour des faibles valeurs de Pe ($Pe = 1$), il n'y a aucune influence de la contrainte de cisaillement sur la croissance du biofilm. Et comme le nombre de Damköhler ($Da = 0.01$) est petit par rapport au nombre de Péclet, les mécanismes de transport (diffusion au sein de la phase biofilm ; convection et diffusion pour la phase fluide) sont prépondérants par rap-

TABLE 3.2 – *valeurs adimensionnées des paramètres utilisés pour les simulations*

Paramètre	valeur adimensionnée
lx'	1
lz'	1
Nx	150
Nz	150
$\rho'_{max} = \rho_0$	1
D'_f	1
D'_b	0.25
F_λ	0.7
k'_d	5×10^{-3}
Γ	300
τ_{max}	2×10^5
C_{det}	5

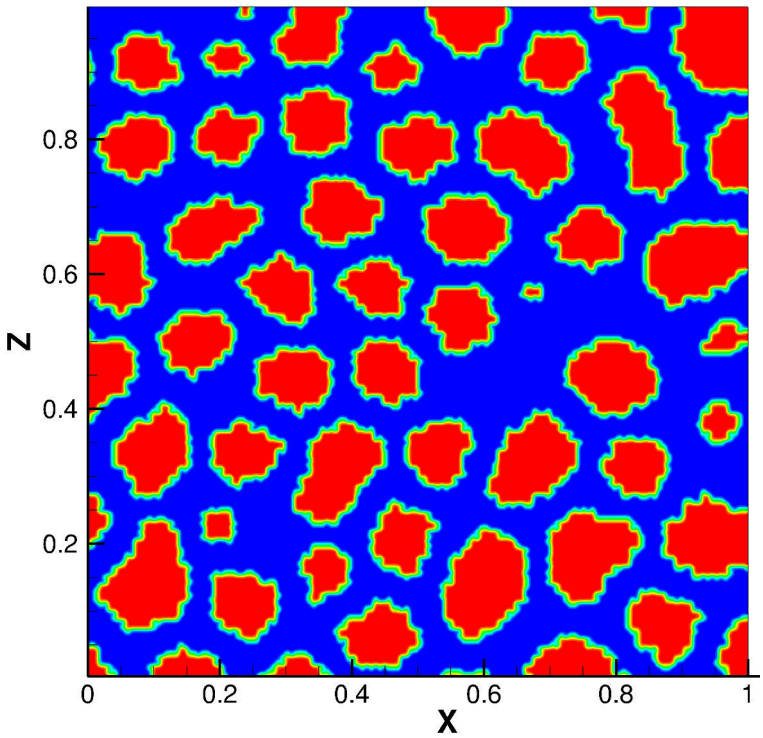

FIGURE 3.16 – *Géometrie initiale (image d'un milieux poreux d'après Wood et al. 2007), la phase biofilm est illustrée en vert, solide en rouge et le fluide en bleu.*

port à la réaction. En conséquence, le substrat est disponible de manière pratiquement uniforme dans tout le milieu poreux (Fig. 3.17a) et la biomasse croit de manière relativement uniforme autour des grains solide (Fig. 3.17c).

On peut noter toutefois, même pour ces faibles valeurs de *Pe-Da*, une accumulation de biomasse légèrement plus prononcée à proximité de la source en $x = 0$ (Fig. 3.17b) liée à un gradient de concentration faible mais non nul dans le sens de l'écoulement. Cette petite différence de croissance est amplifiée dans le temps et conduit vers une diminution localement de la porosité du milieu, voire une obstruction des pores. (Fig. 3.17c-Fig.

3.17d). À terme, les colonies bactériennes en sortie recevront de moins en moins de substrat ce qui entraînera une forte diminution de leur croissance, voire un arrêt et enfin une extinction de celles-ci. On retrouvera alors le comportement observé pour de faible *Pe*, fort *Da* (voir paragraphe suivant). Il faut souligner que ce comportement sera d'autant plus marqué que le milieu est étendu (la différence de concentration entre l'entrée et la sortie sera plus importante pour un même gradient de concentration).

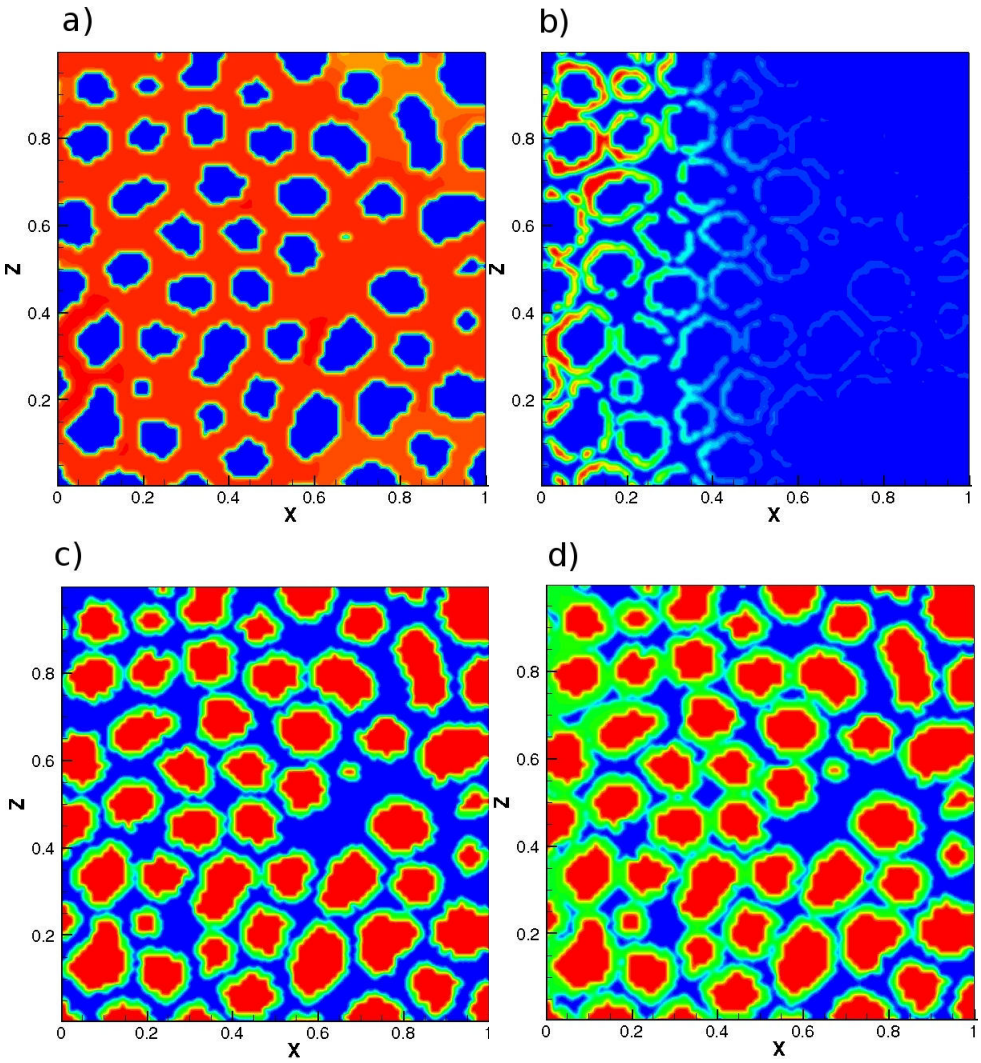

FIGURE 3.17 – *Résultats de simulation de croissance pour* $Pe = 1$, $Da = 0.01$. *Le champ de concentration en biomasse et en substrat varie de* 1 *en rouge à* 0 *en bleu. a) champ de concentration à* $t' = 10$, *b) champ de concentration en biomasse à* $t' = 1780$, *c) géometrie du milieu à* $t' = 780$, *d) géometrie du milieu à* $t' = 9800$.

3.7.1.2 Faible *Pe*, fort *Da*

Nous considérons maintenant le cas d'une croissance de biofilm pour un nombre de Damköhler élevé, $Da = 100$ mais toujours à faible nombre de Péclet ($Pe = 0.1$). Le temps caractéristique de réaction est maintenant largement inférieur à celui associé au transport de nutriment. Autrement

dit, le soluté donneur d'électron est consommé avant d'avoir traversé totalement le milieu. Comme on peut le voir Figure 3.18a, on a un gradient de concentration très important sur les premières mailles du domaine (avec une concentration proche de zéro au-delà). Cet abattement significatif de la concentration se traduit par une croissance très marquée de la biomasse à l'entrée (Fig. 3.18b - 3.18c) où la concentration en substrat est maximale et très faible vers la sortie où la quantité de substrat disponible est réduite, voire insuffisante (Fig. 3.18a). L'extinction des bactéries commence à se faire ressentir loin de la zone d'injection (Fig. 3.18b).

C'est pour de telles conditions que l'obstruction du milieu peut être la plus rapide à moins que l'augmentation des vitesses, sous l'effet de la diminution de la taille des pores, génère des contraintes de cisaillement suffisantes pour favoriser l'arrachement de la biomasse (ce cas est discuté dans le paragraphe suivant). Ici, au bout de $t^{'} = 2$, le milieu poreux est déjà totalement bio-cloggé en entrée (Fig. 3.18c-Fig. 3.18d). Les propriétés hydrodynamiques du milieu sont ainsi fortement impactées. La porosité du milieu diminue faiblement sur l'ensemble du domaine (bien qu'elle décroit fortement localement) alors que la perméabilité chute de plusieurs ordres de grandeur.

3.7.1.3 Fort Pe, faible Da

Nous terminons cette analyse de l'influence des conditions environnementales sur l'évolution structurale du biofilm par le cas à fort nombre de Péclet, $Pe = 500$, mais à faible nombre de Damköhler, $Da = 0.1$. Comme pour le premier cas considéré ($Pe = 1$ - $Da = 0.01$), le nombre de Péclet est plus grand que le nombre de Damköhler ce qui implique que les mécanismes de transport sont prépondérants par rapport à la réaction. Dans un premier temps, on retrouve ainsi le même comportement observé précédemment, avec une croissance plutôt uniforme du biofilm attaché autour des grains et une distribution uniforme de la concentration au sein du milieu (Fig. 3.19a).

Toutefois, au fur et à mesure du développement du biofilm, les pores vont peu à peu se rétrécir. On constate tout d'abord l'obstruction des pores les plus fins alors que seuls quelques canaux restent ouverts. Ces canaux créent rapidement des chemins d'écoulement préférentiel qui vont se traduire par une augmentation localement des vitesses d'écoulement (l'injection est réalisée à débit constant) et donc des forces de cisaillement exercées à la surface du biofilm (Fig. 3.19e). Une fois atteinte la valeur critique requise, c'est dans ces zones également que l'arrachement d'une partie de la biomasse présente va débuter (Fig. 3.19c). Dans les zones d'écoulement stagnant, localisées entre plusieurs grains solides, l'obstruction devient quasi-totale (Fig. 3.19d). Après un certain temps, e.g. : $t^{'} = 140$, le système semble atteindre un équilibre entre la croissance et le détachement. Le substrat est disponible seulement dans les canaux où la croissance n'est plus possible due à l'intensité de la force de cisaillement. (Fig. 3.19b et Fig. 3.19f). On observe ici un mécanisme de mise en place d'écoulement préférentiel, assez similaire à celui observé en dissolution

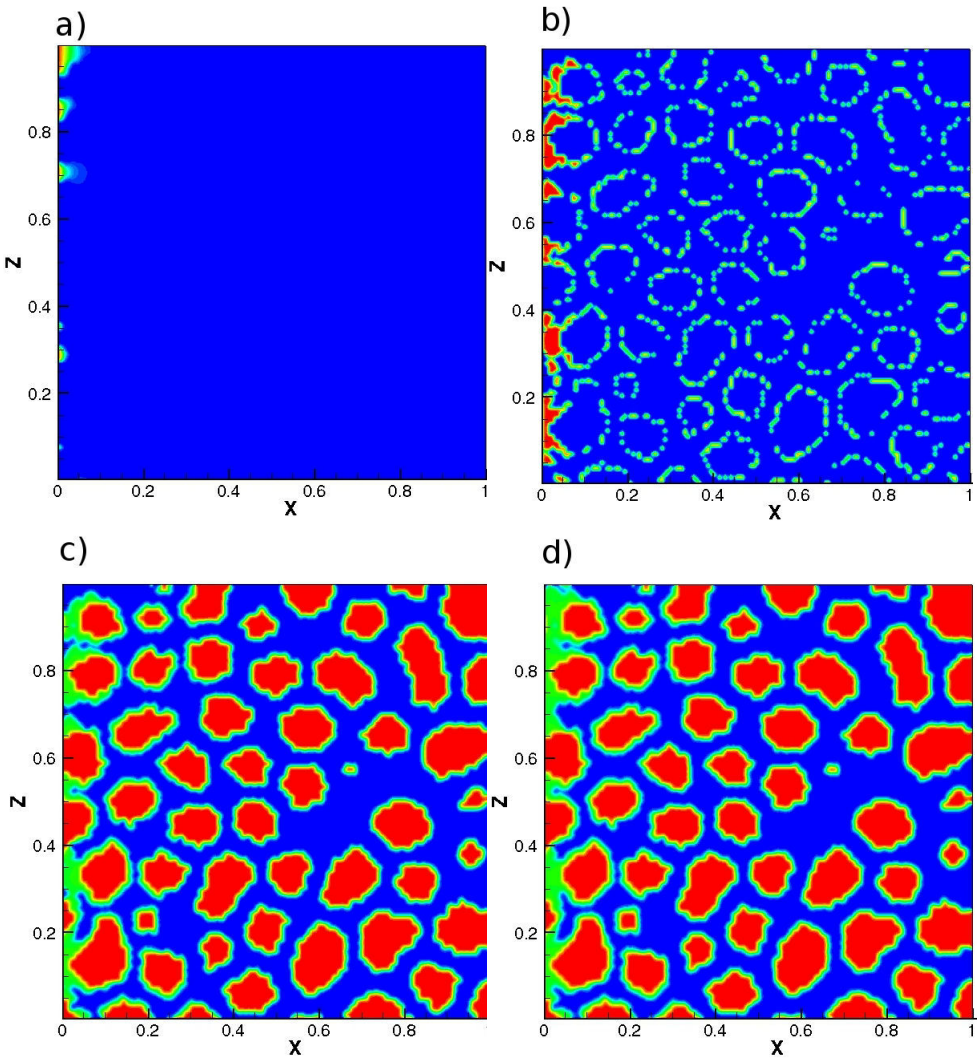

FIGURE 3.18 – *Résultats de simulation de croissance pour* $Pe = 0.001$, $Da = 100$. *Le champ de concentration en biomasse et en substrat varie de* 1 *en rouge à* 0 *en bleu. a) champ de concentration à* $t' = 1$, *b) champ de concentration en biomasse à* $t' = 1$, *c) géométrie du milieu à* $t' = 1$, *d) géométrie du milieu à à* $t' = 2$.

avec le développement de wormholes (Golfier et al. 2002).

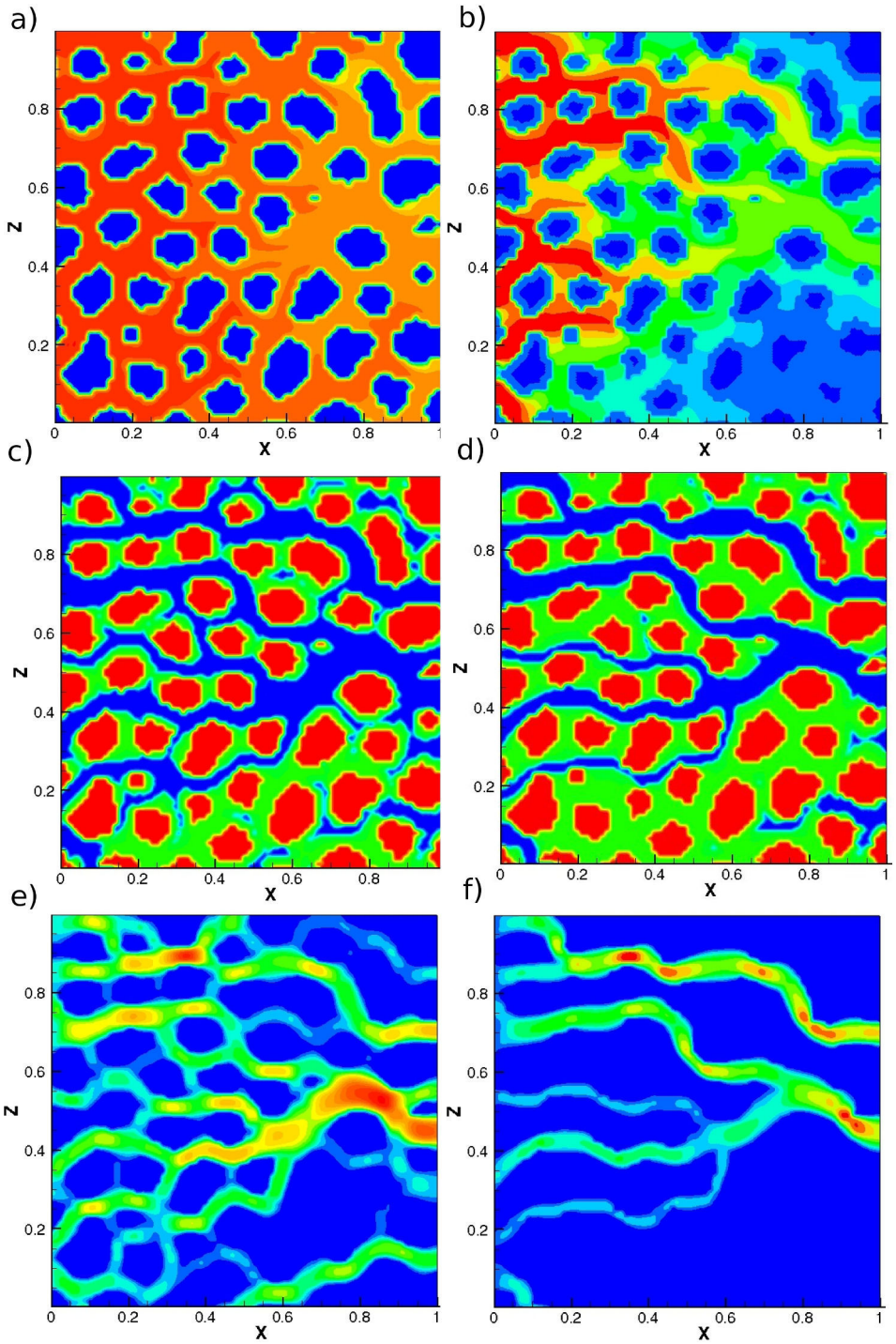

FIGURE 3.19 – *Résultats de simulation de croissance pour* $Pe = 500$ *et* $Da = 0.1$. *Le champ de concentration en biomasse et en substrat varie de* 1 *en rouge à* 0 *en bleu. Le taux de cisaillement varie de* 2×10^6 *en rouge à* 0 *en bleu. a) concentration du substrat à* $t' = 70$, *b) concentration du substrat à* $t' = 140$. *c) géometrie du milieu à* $t' = 70$, *d) géometrie du milieu à* $t' = 140$. *e) taux de cisaillement à* $t' = 700$, *il varie de* 2×10^6 *en rouge à* 0 *en bleu. f) le taux de cisaillement à* $t' = 140$, *il varie de* 2×10^6 *en rouge à* 0 *en bleu.*

3.7.2 Milieu poreux 3D

Le modèle a été appliqué de manière similaire sur un milieu poreux $3D$. Compte-tenu des temps de calcul très long, il a été nécessaire de réduire la complexité géométrique du réseau poral considéré. La configuration retenue en 3D est constituée par 27 grains sphériques solides entourés chacun par une couche mince de biofilm (Fig. 3.20). À l'exception des données suivantes : $lx = ly = lz = 1$ et $nx = ny = nz = 50$, , tous les autres paramètres de simulation sont identiques avec ceux spécifiés dans le Tableau 3.1.

FIGURE 3.20 – *Géométrie initiale du milieu poreux 3D, où le biofilm est indiqué en vert, le solide en rouge. L'écoulement est orienté de la gauche vers la droite.*

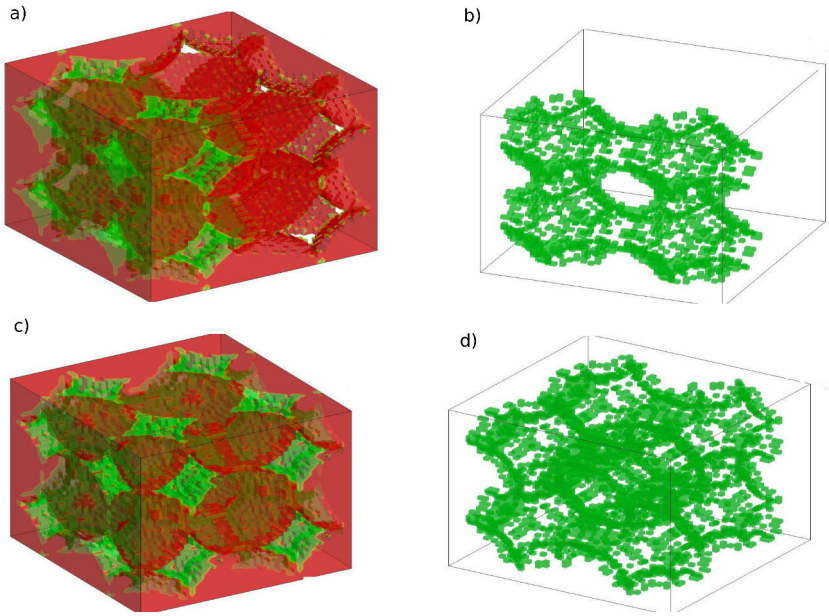

FIGURE 3.21 – *Croissance de biofilm dans un milieu poreux 3D (a, c) et répartition de la biomasse au sein du réseau poral (b, d). (a-b) : $Pe = 1$ et $Da = 10$, (c - d) : $Pe = 10$ et $Da = 1$*

Les simulations numériques présentées sur la Fig. 3.21 ont été réalisées pour deux valeurs de Pe et Da dans le cas d'une croissance limitée par le transport de masse ($Pe = 1$ - $Da = 10$) et par la cinétique ($Pe = 10$ - $Da = 1$). Les résultats obtenus amènent pratiquement aux mêmes commentaires que ceux effectués en $2D$. Pour $Pe = 1$ et $Da = 10$ (Fig. 3.21a-Fig. 3.21b), la croissance est favorisée en entrée du domaine où le substrat est en abondance. Pour un $Pe = 10$ et $Da = 1$ (Fig. 3.21c-Fig. 3.21d), la croissance est relativement uniforme de par la disponibilité du substrat dans la totalité du domaine sous l'effet de la convection. Une différence à souligner, toutefois, concerne l'obstruction totale de l'entrée du milieu qui est ici beaucoup plus lente. L'écoulement, en effet, a toujours plus de facilité à passer entre les pores en $3D$ qu'en $2D$. On s'attend donc à une réduction moins rapide de la perméabilité.

3.7.3 Diagramme de régime de croissance *Pe-Da*

Sur la base des simulations réalisées aussi bien en $2D$ qu'en $3D$, trois régimes caractéristiques de croissance de biofilm en milieu poreux ont pu être observés :

Croissance limitée par la cinétique : le biofilm se développe essentiellement à proximité de la zone d'injection du nutriment, conduisant rapidement à une bio-obstruction totale du milieu (Figs. 3.18 et 3.21a,b).

Croissance limitée par le transfert de masse : le biofilm se développe de manière uniforme au sein du milieu conduisant à une réduction progressive et homogène de la porosité (Figs. 3.17 et 3.21c,d)

Croissance limitée par le taux de cisaillement : des chemins d'écoulement préférentiels persistent au sein du milieu colonisé, sous l'effet des forces de cisaillement. L'obstruction du milieu n'est jamais totale (Fig. 3.19).

La mise en place de l'un ou l'autre de ces régimes dépend des conditions environnementales, matérialisées par les valeurs des nombres de Péclet et de Damköhler. Afin d'aider à la compréhension des mécanismes observées, nous avons répertorié ces 3 régimes sur un diagramme Péclet - Damköhler, comme illustré Fig. 3.22. L'utilisation de ce type de diagramme pour des géométries ou des conditions autres que celles simulées nécessite toutefois d'être effectuée avec précaution. En particulier, il faut garder à l'esprit que :

— La valeur limite du nombre de Péclet au dessus de laquelle le cisaillement devient prédominant (dans notre cas, autour de 100) dépend de la valeur de τ_{max} qui a été fixée.

— il n'y a pas de passage net d'un régime de croissance à l'autre mais plutôt un ensemble de faciès de transition où aucun des mécanismes qui pilotent la croissance n'est prédominant.

— le choix du régime de croissance à associer à tel ou tel faciès observé reste très subjectif et dépend du moment de l'observation et de la longueur du domaine étudié. En effet, un régime limité par le taux de cisaillement peut être associé au début de la croissance du

biofilm (avant que les vitesse pariétales augmentent de manière suffisante) à un régime contrôlé par le transfert de masse. À l'inverse, pour un couple *Pe-Da* donné, un milieu poreux de longueur fixé peut présenter un régime de croissance contrôlé par le transfert de masse alors que pour un milieu poreux cent fois plus long, on observerait une croissance bactérienne limitée par la cinétique. Cette dépendance à l'égard des dimensions du domaine d'étude (i.e. : d'un facteur de forme) est toutefois généralisable à l'ensemble des diagrammes de régime qui peuvent être rencontrées dans la littérature que ce soit en dissolution (Golfier et al. 2002) ou pour les écoulements de fluides non miscibles (e.g. : le diagramme de phase de Lenormand et Zarcone 1985) par exemple.

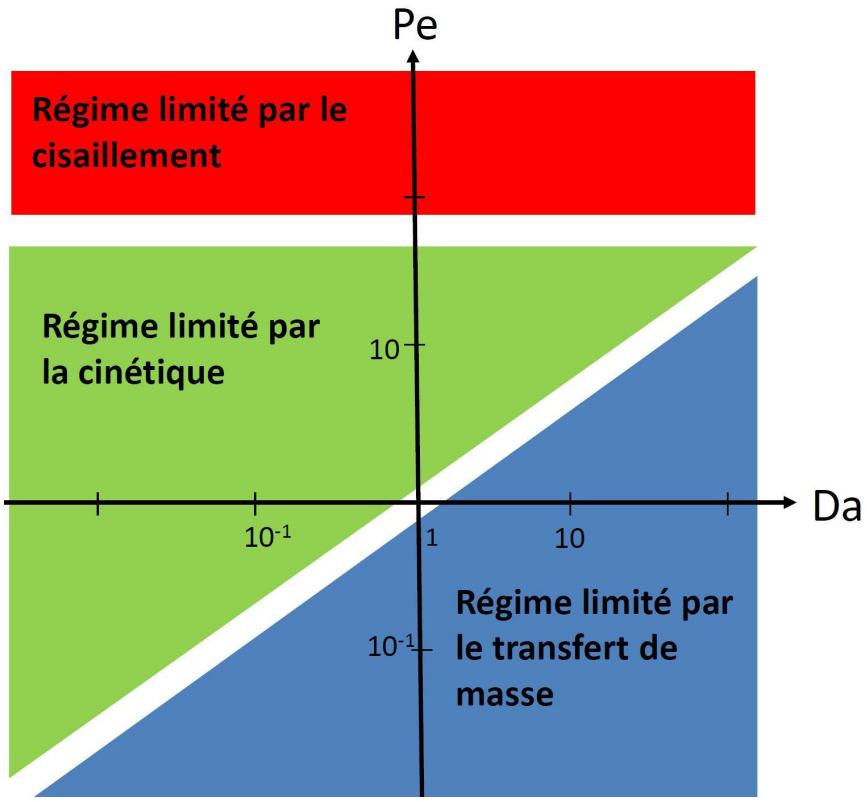

FIGURE 3.22 – *Diagramme des différents régimes de croissance du biofilm en milieu poreux en fonction des nombres de Péclet et de Damköhler*

CONCLUSION DU CHAPITRE

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons présenté le modéle d'automate cellulaire adopté permettant de modéliser à l'échelle du pore l'évolution spatio-temporelle de la biomasse sous l'effet de la croissance bactérienne ainsi que les mécanismes induits par l'écoulement fluide, tel que le détachement ou l'attachement de flocs bactériens. La seconde partie a été dédiée à la validation de notre modèle en le confrontant à des benchmarks proposés dans la littérature. Les résultats obtenues sont en bon accord avec les observations expérimentales et numériques publiées

dans la littŕature. Le modèle a ensuite été appliqué à des milieux poreux complexes en $2D$ et $3D$ afin d'analyser l'influence des conditions environnementales (cinétique de réaction, vitesse d'écoulement) sur l'évolution de la structure. Trois régimes caractéristiques de croissance ont ainsi pu être mis en évidence.

4 Modélisation de la dissolution et de la biodégradation d'une phase NAPL à l'échelle du pore

Sommaire

4.1 Introduction 93
4.1.1 Les NAPLs 93
4.1.2 Interactions entre le biofilm et les NAPLs 94
4.1.3 Processus liés à la dissolution des NAPLs 96
4.2 Description du modèle théorique et numérique 102
4.2.1 Hypothèses du modèle 103
4.2.2 Modélisation de l'écoulement 104
4.2.3 Modélisation du transport d'espèces au sein du système eau-biofilm-NAPL 104
4.2.4 Modélisation de la dissolution du NAPL 107
4.2.5 Cinétique de croissance de la biomasse et effet d'inhibition 110
4.2.6 Conditions aux limites 111
4.2.7 Adimensionnement des équations 111
4.3 Résultats et discussion 114
4.3.1 Dissolution du NAPL en absence de biodégradation . . . 114
4.3.2 Impact des bactéries sur la dissolution du NAPL 117
4.3.3 Influence de la toxicité du NAPL 123
4.3.4 Vers l'échelle macroscopique : pertinence de l'hypothèse d'équilibre de masse local 126
4.4 Conclusion 128

4.1 Introduction

4.1.1 Les NAPLs

Il est bien connu que de nombreux composés organiques (produits pétroliers, dérivés chlorés) sont pratiquement non miscibles à l'eau. Ces contaminants, généralement regroupés sous leur classification anglo-saxonne de NAPL pour Non-Aqueous Phase Liquids, représentent un risque particulier pour les nappes souterraines en raison de leur faible solubilité. Ils restent en effet piégés sous forme de gouttelettes et/ou d'amas non-miscibles au sein des aquifères constituant ainsi une source rémanente de pollution difficile à décontaminer.

Les NAPLs sont des hydrocarbures englobant aussi bien la famille des solvants chimiques halogénés que les produits pétroliers (PCB, HAP, BTEX, ...) qui contaminent souvent le sous-sol suite à un déversement accidentel ou en raison d'un défaut des ouvrages de stockage (Mercer et Cohen 1990, Miller et al. 1998). La différence des propriétés physico-chimiques de l'eau et du NAPL conduit à la formation d'une interface physique entre les deux fluides qui les empêche de se mélanger.

Une fois infiltré dans le sol, le NAPL migre vers le bas sous l'effet des forces de pression et de gravité à travers la zone non saturée jusqu'à la nappe. Cette migration verticale est aussi accompagnée dans une certain mesure par une propagation latérale sous l'effet des forces capillaires (Schwille 1988) et en raison de la variabilité spatiale du milieu (hétérogénéités de perméabilité). Une propagation préférentielle se produira lorsque les NAPLs rencontrent des couches relativement perméable, des fractures, ou toute autre formation présentant une faible résistance capillaire. La vitesse de déplacement du NAPL et la profondeur parcouru dépendent de plusieurs facteurs. Les propriétés physiques du milieu poreux (porosité, taille de pore, agencement du grain, perméabilité) sont classées parmi les paramètres importants contrôlant la migration du NAPL. Zhu et Sykes (2000) ont ainsi montré que la perméabilité jouait un rôle prépondérant sur le transport du NAPL. Les NAPLs s'accumulent sous forme de "flaques" au dessus des zones moins perméables et migrent latéralement jusqu'à atteindre les bords de la couche ou jusqu'à ce que leur charge hydraulique devienne suffisante pour leur permettre de vaincre les forces capillaires qui s'opposent à leur déplacement vertical.

Lors de ce processus de migration verticale à travers la zone non-saturée, le NAPL peut être piégé dans les pores de la matrice poreuse sous forme de gouttelettes constituant ainsi une contamination résiduelle qui se dissout naturellement et progressivement au contact de l'eau. Ce piégeage est dû à l'action des forces de tension superficielle. Plusieurs mécanismes contribuent à la migration des contaminants. Tout d'abord, l'infiltration d'eau dans la zone non saturée solubilise une partie des composés organiques lors de son passage à travers le NAPL résiduel. Ensuite, certains composés du NAPL peuvent migrer sous forme de vapeur à travers la zone vadose sur des distances non négligeables, soit suite à leur

volatilisation directement à partir des amas piégés (selon la loi de Raoult) ou par la volatilisation des composés dissous dans l'eau (selon la loi de Henry). Une fois atteint la surface libre de la nappe, un étalement de la phase liquide organique se produit sous l'effet des forces d'advection et de dispersion. Les NAPLs qui sont plus denses que l'eau (DNAPLs) ont tendance à migrer vers le mur de l'aquifère tandis que ceux qui sont plus légers (LNAPLs) flottent à la surface libre de la nappe. La Fig. 4.1 illustre ce modèle conceptuel de migration d'un DNAPL dans une formation aquifère avec les différents mécanismes de déplacement impliqués.

Le NAPL représente donc, pour la matrice solide sur laquelle il est adsorbé, une source de pollution à long terme par un rejet lent mais continu de polluant gouverné par des cinétiques de désorption et diffusion. Des méthodes de pompage et traitement (*"Pump and Treat"*) notamment, permettent d'accélérer la dissolution par injection de débits élevés d'eau (Chesnaux 2008). Notons que la dépollution des sites contaminés par un DNAPL est généralement plus difficile et plus onéreuse que celle employée pour les LNAPLs. La présence des DNAPLs pose encore à l'heure actuelle un sérieux défi pour toutes les technologies d'assainissement des eaux souterraines classiques (Lee et al. 2007, Kent et Bianchi 2001). Les méthodes de bioremédiation *in situ* (biostimulation, bioaugmentation) ou d'atténuation naturelle représente dans ce contexte une solution alternative crédible pour ce type de site contaminé.

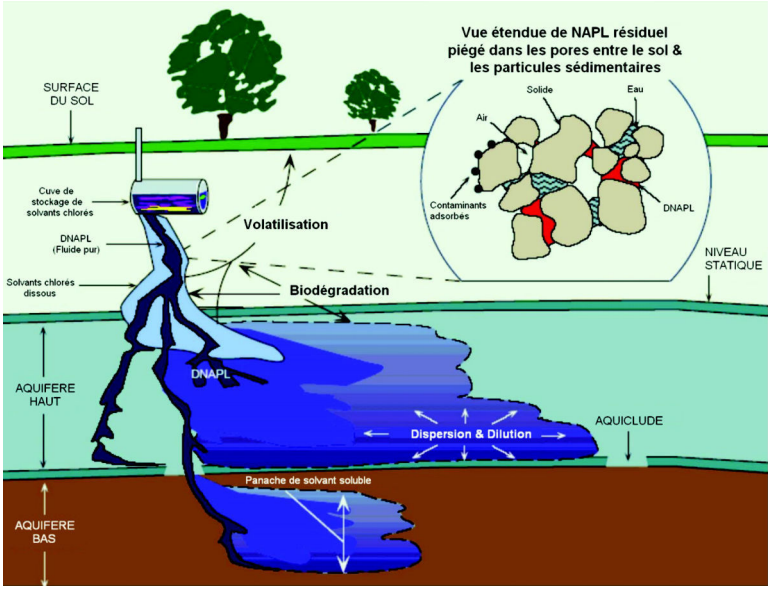

FIGURE 4.1 – *Modèle conceptuel de migration des DNAPLs (ref : EPA/600/F-98/022)*

4.1.2 Interactions entre le biofilm et les NAPLs

La dégradation d'un NAPL dissous par des bactéries semble faire intervenir des enzymes extracellulaires (des catalyseurs biologiques comme les peroxydases ou laccases) transformant les NAPLs en fragments moléculaires facilement assimilables par les cellules. Les différentes étapes

du métabolisme bactérien entraînent l'apparition de sous-produits métaboliques. Certains de ces sous-produits, particulièrement intéressants lorsque le biofilm se trouve en présence de NAPL sont des biosurfactants. Ce sont des agents de surface actifs (molécule amphiphile avec une partie lipophile et une partie hydrophile modifiant la tension superficielle entre deux surfaces), qui réduisent la tension interfaciale à la surface de la gouttelette de NAPL pur pour ainsi la déstabiliser et la fragmenter en petite gouttelettes évacuées par l'écoulement (Armstrong et Wildenschild 2012). Le NAPL devient néanmoins avec le temps, de moins en moins disponible à l'action microbienne du fait d'une séquestration dans les pores du sol. Les mécanismes en jeu ne sont pas totalement identifiés, mais il semble que ce phénomène soit fonction de la concentration en NAPL et de la présence ou non d'autres molécules polluantes (Mougin 2002).

Le NAPL constitue néanmoins un agent xénobiotique pour les bactéries (molécule chimique présente dans un organisme mais qui peut être toxique pour celui-ci), ce qui explique que sa dégradation nécessite la mise en place de stratégies adaptatives pour celles-ci. Certains NAPLs peuvent n'être que partiellement dégradés en résidus secondaires ou tertiaires. Ils peuvent ainsi devenir de nouvelles espèces moléculaires formées à partir du composant mère ou des produits de transformation, qui sont souvent des complexes associés à des constituants organiques du sol ou d'organismes liés à des sites réactifs de la surface des colloïdes dans le sol (Mougin 2002). Ainsi par exemple le PCE (perchloroéthylène) peut être dégradé par des bactéries déhalogénatrices en TCE (trichloroéthylène) et DCE (dichloroéthylène) qui sont beaucoup plus solubles que la molécule originale. Ils sont aussi des inhibiteurs pour le métabolisme des micro-organismes non déhalogénateurs, d'où l'efficacité de ce type de bactéries pour coloniser les zones sources de PCE (Chu et al. 2004).

La transformation des xénobiotiques sous l'action bactérienne peut être due à différentes interactions :

— La biodégradation : les bactéries utilisent les xénobiotiques pour leur métabolisme. En les transformant en dioxyde de carbone ou autre molécule inorganique finale, ils produisent l'énergie nécessaire à leur croissance.
— Le cométabolisme : les bactéries transforment les xénobiotiques en utilisant un cosubstrat. En général, les modifications sur les xénobiotiques sont mineures mais elles peuvent devenir importantes dans le cas de transformations cométaboliques séquentielles faisant intervenir différents organismes dégradant différents résidus de NAPL.
— Synthèse de conjugaison ou d'oligomérisation : le processus de conjugaison lie une molécule xénobiotique à un substrat formant des fonction méthyl, acetyl, alkyl, glycosides ou des acides aminés pouvant être stockées par les cellules bactériennes ou racinaires des plantes. Durant le processus d'oligomérisation, une molécule xénobiotique crée des liaisons internes ou se lie à une autre molécule xénobiotique devenant alors plus stable et entrant dans la compo-

sition de composants cellulaires bactériens ou de la constitution du sol.

Ces mécanismes naturels peuvent être exploités aux fins de la rémédiation des sites et sols pollués. Ainsi, une pollution de nappe par un NAPL peut être traitée par une approche passive de stratégie de management à long terme basée sur la capacité du sol et de la biomasse à contrôler la migration et à traiter le contaminant ou par une approche active en stimulant avec des nutriments et via l'injection de donneurs ou d'accepteurs d'électrons l'activité de la population bactérienne.

4.1.3 Processus liés à la dissolution des NAPLs

4.1.3.1 Dissolution des NAPLs dans l'eau

Le NAPL résiduel, présent sous la forme de goutelettes ou d'amas piégés dans les pores, est dissous sous l'effet des échanges de masse avec la phase aqueuse en mouvement, créant ainsi une source potentielle de contamination à long terme pour les eaux souterraines. Déterminer l'extension et la rémanence de la contamination nécessite de savoir localiser et quantifier avec précision la (ou les) source(s) du polluant, ainsi qu'une parfaite compréhension des mécanismes qui contrôlent le flux de dissolution. La prédiction du taux de dissolution passe en effet par une caractérisation précise de la géométrie de ces amas piégés et du transfert de masse à travers l'interface NAPL/eau.

Cet intérêt a motivé un certain nombre de chercheurs pour étudier la dissolution des NAPLs en milieux poreux à partir d'expériences en colonne ou sur des milieux poreux 2D. Ces études ont mis en évidence la dépendance du coefficient de transfert de masse (caractérisant le flux de dissolution du NAPL à l'échelle de l'expérience) au régime d'écoulement, aux propriétés physico-chimiques du fluide ou aux caractéristiques du milieu (Miller et al. 1990, Powers et al. 1992, Imhoff et al. 1994, Powers et al. 1994b). Powers et al. (1991) ont ainsi observé que le taux de saturation en NAPL influe fortement sur le transfert de masse. Bradford et al. (2000) ont montré que la dissolution de la phase huile dépend à la fois de la mouillabilité du sol et de la distribution spatiale du NAPL. La composition du NAPL peut également agir sur le transfert de masse (Abriola 1989) ainsi que sa viscosité ou sa densité (Miller et al. 1990). Dans un milieu poreux constitué d'une seule couche de billes de verre, Kennedy et Lennox (1997) ont mesuré la dissolution d'anneaux pendulaires. Ils en ont déduit les coefficients de transfert de masse pour chaque goutelette et ont conclu que la variation du taux de dissolution est liée à la variation du champ de vitesses dans les pores autour de chaque gouttelette. Jia et al. (1999) ont mené des expériences de dissolution dans un réseau 2D de pore gravé en verre et ont mesuré la concentration des NAPLs dissous dans l'écoulement en sortie. Cette approche leur a permis d'observer directement la géométrie des goutelettes sur tout le réseau. Dillard et Blunt (2000) ont développé un modèle de dissolution des NAPLs dans un milieu tridimensionnel de réseau de pores et ont comparé leurs prévisions avec les résultats expérimentaux de Powers et al. (1992). Pour obtenir un accord raisonnable entre les résultats expérimentaux et numériques, ils

ont couplé les conditions d'équilibre local aux interfaces NAPL/eau avec un modèle conceptuel simplifié du type "diffusion angulaire" (Zhou et al. 2000) pour la modélisation du transfert de masse. Tous ces travaux ont conduit à une meilleure compréhension des facteurs contrôlant la dissolution dans les systèmes expérimentaux utilisés et ont permis de proposer des corrélations semi-empiriques pour l'expression du transfert de masse, bien que celles-ci soient généralement difficilement généralisables à une large gamme de milieu poreux et de conditions opératoires. Les résultats de ces études soulignent aussi l'importance de caractériser avec précision le champ de vitesse à proximité des interfaces NAPL/eau ainsi que la morphologie des ganglions piégés.

4.1.3.2 Calcul du transfert de masse interfacial

Le processus de dissolution est l'un des principaux mécanismes de pollution de l'aquifère. Il se caractérise par l'échange de masse entre le NAPL et l'eau. De manière simplifiée, la description de la dissolution d'un NAPL mono-constituant est couramment décrite sous la forme d'une réaction du 1er ordre (Imhoff et al. 1994) :

$$J = \alpha(C_{eq} - C) \tag{4.1}$$

J est le taux de dissolution (ou flux de matière dissoute), α est le coefficient de transfert de masse, C est la concentration du contaminant dans la phase aqueuse et C_{eq} est la valeur de la concentration à l'équilibre dans la phase fluide.

Le coefficient de transfert de masse peut être considéré comme étant lui même un produit de l'aire interfaciale NAPL/eau (a_{fh}) et d'un coefficient de transfert de masse intrinsèque (k) (Powers et al. 1991) :

$$\alpha = ka_{fh} \tag{4.2}$$

Le coefficient de transfert de masse (k) dépend fortement de la vitesse dans la phase aqueuse et de la connectivité des phases (Powers et al. 1994a, Seagren et al. 1999)tandis que l'aire interfaciale (a_{fh}) est connue pour dépendre du niveau de saturation (Culligan et al. 2004, Brusseau et al. 2006, Culligan et al. 2006).

Le coefficient de transfert de masse est généralement exprimé au travers de corrélations semi-empiriques reliant le nombre de Sherwood $(Sh = \frac{kl}{D})$ ou le nombre de Sherwood modifié $(Sh' = \frac{\alpha\, d_m^2}{D})$ aux différents paramètres adimensionnels caractérisant l'écoulement ou la structure du milieu. Ici l représente une longueur caractéristique, D est le coefficient de diffusion et d_m est le diamètre moyen des grains. (Geller et Hunt 1993, Saba et Illangasekare 2000, Nambi et Powers 2003, Parker et Park 2004, Christ et al. 2006, Saenton et Illangasekare 2007, Basu et al. 2008, Kokkinaki et al. 2013, Richards et al. 2013).

Le tableau 4.1 ci-dessous récapitule quelques unes des principales corrélations semi-empiriques du coefficient de transfert de masse issues de la littérature :

Références	modèle Sh'	conditions	système
Miller et al. (1990)	Sh'=12.$Sc^{0.5}.Re^{0.75}.\theta_N^{0.6}$	Re=0.005-0.1, S_N=0-0.21	$1D$
Imhoff et al. (1994)	Sh'=340.$Re.\theta_N^{0.87}.\frac{x}{d_{50}}^{-0.31}$	Re=0.0012-0.021, S_N=0-0.16, $\frac{x}{d_{50}}$=7	$1D$
Powers et al. (1994b)	Sh'=44.75.$Re^{0.526}.S_N^{0.937}$	Re=0.034-0.588, S_N=0.001-0.197	$1D$
Saba et Illangasekare (2000)	Sh'=11.34.$Sc^{0.33}.Re^{0.2767}.\frac{d_m\theta_N}{\tau L}^{1.037}$	Re=0.0015-0.01, S_N^{av}=0.22, τ=2, L=dx	$2D$
Nambi et Powers (2003)	Sh'=37.15.$Re^{0.61}.S_N^{1.24}$	Re=0.018-0.0134, S_N=0.01-0.35	$2D$

TABLE 4.1 – *Corrélations du coefficient de transfert de masse extraites de la littérature. S_N est la saturation du NAPL, $\theta_N = \epsilon S_N$ est la fraction volumique de la phase non aqueuse (ϵ la porosité), d_{50} est la taille médiane des grains, U le coefficient d'uniformité, τ la tortuosité, Re le nombre de Reynold, $Sc = \frac{\mu_F}{\rho D}$ le nombre de Schmidt (μ_F est la viscosité dynamique du fluide, ρ la masse volumique de l'eau)*

4.1.3.3 Influence des biosurfactants

Les biosurfactants sont l'une des nombreuses adaptations des microorganismes qui métabolisent les hydrocarbures et représentent globalement une réponse physiologique à des exigences spécifiques rencontrées par les cellules en fonction de leur environnement. Ils sont des sous-produits du métabolisme de certaines bactéries. Leur unicité structurelle réside dans la coexistence d'une partie hydrophile (un sucre ou un peptide) et d'une partie hydrophobe (chaîne d'acide gras) dans la même molécule, ce qui leur permet d'occuper l'interface des systèmes de phase mixte (par exemple huile / eau, air / eau, huile / solide / eau) et par conséquent de modifier les forces régissant les conditions d'équilibre. D'un point de vue thermodynamique, leur présence conduit à réduire l'énergie libre interfaciale, modifiant ainsi la tension interfaciale et la solubilité. Ce mécanisme est à l'origine des propriétés associées aux biosurfactants sur l'émulsification, la dispersion, la dissolution, la solubilisation ou le mouillage (Banat et al. 2000, Desai et Banat 1997). Lorsque la concentration en surfactants dissous dans l'eau dépasse une valeur seuil dit concentration de micelle critique (cmc), ceux-ci forment des aggrégats de type colloïdaux communément appelés micelles. Ce processus de micellisation, qui résulte d'un équilibre entre les différentes forces intermoléculaires, tend à augmenter significativement l'impact des surfactants sur les propriétés interfaciales (tension superficielle, solubilité) comme illustré Fig. 4.2.

Dans le cas de la biodégradation d'un NAPL, les propriétés amphiphiles des biosurfactants leur donnent la capacité de modifier les tensions superficielles et de déstabiliser la gouttelette de NAPL et ainsi la rendre plus vulnérable à la dissolution et donc à la bioassimilation bactérienne.

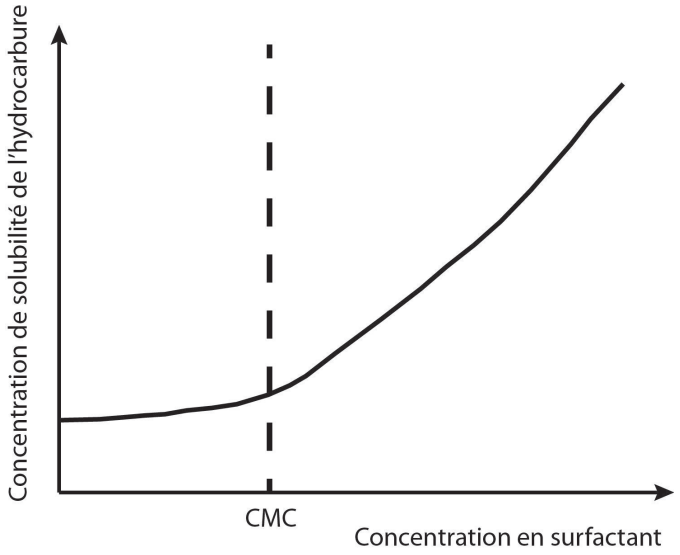

FIGURE 4.2 – *Schéma de variation de la solubilité d'un hydrocarbure en fonction de la concentration en surfactant*

Une étude expérimentale réalisée sur des micromodèles 2D gravés sur verre par Armstrong et Wildenschild (2012) a comparé l'efficacité de la dégradation abiotique et biotique des NAPLs et le rôle de chaque paramètre sur le processus global. Cette étude a permis de conclure que la biodégradation est optimale en présence de biomasse produisant des biosurfactants, bénéficiant simultanément des effets de mobilisation et de consommation du NAPL. Elle confirme aussi l'existence d'une biodégradation en présence de biomasse sans production de biosurfactants. L'étude menée par Paulsen et al. (1989) mérite d'être signalée tant elle met parfaitement en évidence l'impact de la production de biosurfactant sur le processus de dissolution d'une phase hydrocarbure. Paulsen et al. (1989) ont étudié expérimentalement l'influence de biosurfactants sur une gouttelette de NAPL à l'échelle du pore afin de décrire les mécanismes de déstabilisation de l'interface. Sur la Figure 4.3, on peut tout d'abord observer la croissance du biofilm et des biofilaments associés se développant préférentiellement autour de la gouttelette, voire même sur la goutelette, et dans le sillon de l'écoulement de sorte que les bactéries puissent assimiler le NAPL dissous (Fig. 4.3). Il est intéressant de noter que la contrainte de cisaillement semble avoir un impact moins important sur l'arrachement des bactéries fixées directement sur la gouttelette de NAPL, probablement à cause des liaisons hydrophobiques les liant.

Le suivi au cours du temps de l'évolution de la déstabilisation de la gouttelette par le biofilm souligne également un autre processus : en réduisant la tension superficielle de la gouttelette, les biosurfactants peuvent fragmenter celle-ci en la sub-divisant (Fig. 4.4). La Figure 4.4 montre l'évolution de la gouttelette durant les 11 premiers jours (photographies 1 à 3), la phase de séparation pendant les 4 jours suivants (photographies 4 à 12) et enfin la stabilisation de la gouttelette après fragmentation le dernier jour (photographies 13 à 15). Cette expérience démontre que cette diminution de la tension superficielle liée à la production de surfactant n'est

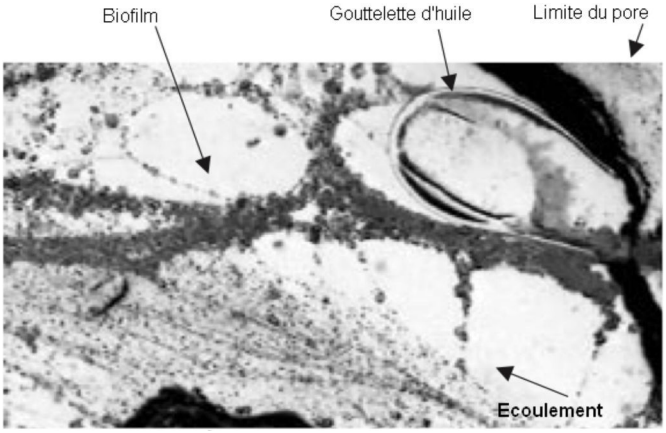

FIGURE 4.3 – *Photographie au microscope illustrant le développement préférentiel du biofilm à la périphérie d'une gouttelette d'huile (Paulsen et al. 1989)*

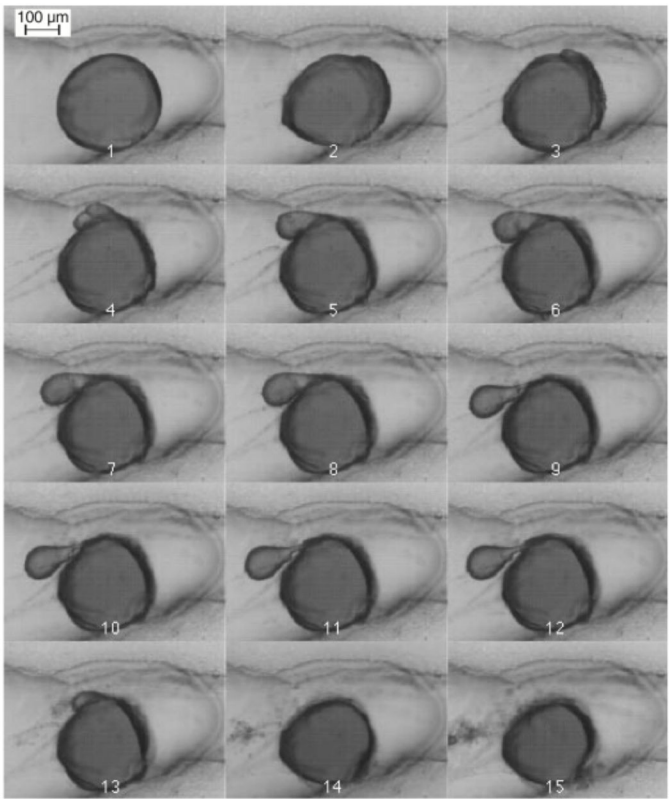

FIGURE 4.4 – *Série de photographies au microscope montrant l'évolution de la fragmentation d'une gouttelette d'huile sur 16 jours (Paulsen et al. 1989)*

pas répartie de manière uniforme sur le pourtour de l'interface mais extrêmement localisée. En effet, la structure de la gouttelette de NAPL est maintenue par les forces capillaires liées au différentiel de pression Δp_c entre le fluide et le NAPL :

$$\Delta p_c = \frac{2\sigma}{R} \tag{4.3}$$

avec σ le tension interfaciale et R le rayon de courbure local. Une estimation par analyse d'image indique une valeur initiale de $30mN/m$ pour la tension superficielle de la gouttelette. Afin de surmonter ces forces capillaire, il faudrait abaisser la tension superficielle sous $0.3mN/m$ si les biosurfactants avaient un impact uniforme. Or, la tension superficielle de la gouttelette après séparation (Figure 4.4, photographie 13 à 15) est estimée à environ $2mN/m$ d'après l'Eq. 4.3. Ces estimations suggèrent ainsi une réduction localisée de la tension interfaciale par un facteur 15 environ.

Seule une fraction de la gouttelette initiale est ainsi mobilisée. Paulsen et al. (1989)suggèrent que le biofilm entourant la gouttelette stabilise et immobilise la gouttelette après qu'elle ait réduit en taille. La fraction de NAPL remobilisé est ensuite entraînée par l'écoulement et peut se retrouver piégée dans un pore de plus petite taille. Il faut toutefois préciser que ce phénomène est, semble-t-il, assez rare car sur cette expérience menée pendant 25 jours sur de nombreuses gouttelettes, une seule a montré un tel processus de fragmentation

Le second effet significatif lié à la production de biosurfactants correspond à l'augmentation de la solubilité des composés organiques de la phase hydrocarbure et donc un accroissement des flux de dissolution (Chun et al. 2002). Cette augmentation de solubilité qui dépend de la concentration en surfactant, et en particulier si celle-ci a dépassé ou non la concentration de micelle critique, peut aller jusqu'à plusieurs ordres de grandeur. Garcia-Junco et al. (2003) ont mesuré par exemple une augmentation de la concentration de solubilité du pyrène de 18 à $560ng/mL$ pour des concentrations de biosurfactants variant de 0 à $100\mu g/mL$.

4.1.3.4 Toxicité des NAPL et impact sur la biodégradation

Un des facteurs limitant dans le processus de biodégradation du NAPL est lié au métabolisme des microorganismes qui requiert une concentration en substrat optimale compte tenu du caractère xénobiotique de ces substances. La plupart des NAPL peuvent en effet être assimilés sous leur forme dissoute à faible concentration par les bactéries, mais deviennent toxiques à concentration plus élevée, pouvant provoquer un dysfonctionnement du métabolisme et de l'anabolisme de la bactérie (Ray et Peters 2008). Le processus de chimiotaxie conduit à former une accumulation de biomasse autour des pores contenant du NAPL, à une distance où la concentration dissoute permet une croissance optimale.

L'influence de la toxicité des NAPLs pour le biofilm peut être observé expérimentalement par des procédés de marquage par fluorescence (Fig,

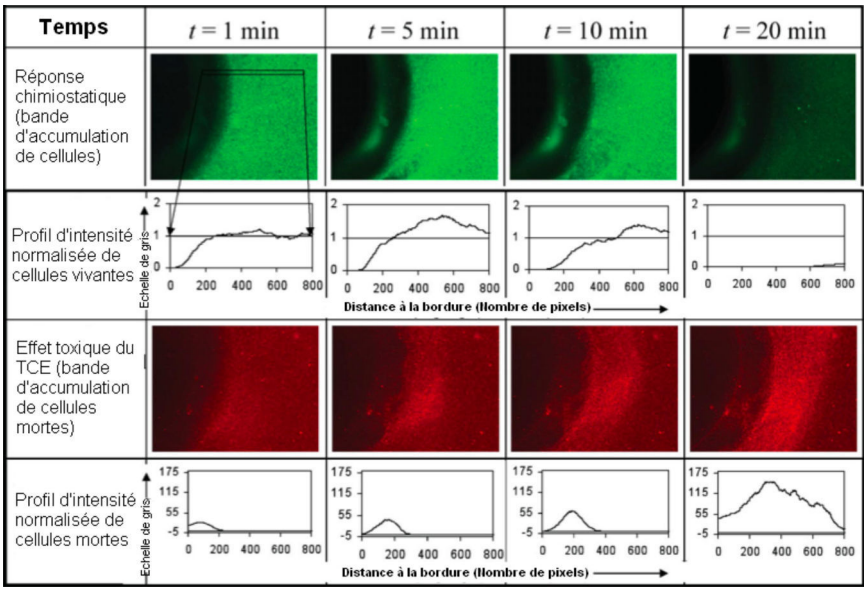

FIGURE 4.5 – *Résultats d'une expérience exposant un biofilm de* Pseudomonas *à l'influence d'une gouttelette de TCE Singh et Olson (2010)*

4.5). Dans l'expérience de Singh et Olson (2010) par exemple, une gouttelette de TCE est mise en présence de *Pseudomonas sp.*. L'étude suit l'évolution de la concentration en bactéries vivantes et mortes autour du NAPL en fonction du temps. Initialement, le biofilm se développe de manière uniforme en périphérie de la gouttelette, mais, après 5 minutes, les bactéries vivantes migrent progressivement loin du TCE. Dans le même temps, nous observons une augmentation du nombre de cellules mortes dans le proche voisinage de la gouttelette. Cette zone d'accumulation de cellules mortes s'élargit avec le temps (Fig. 4.5 à 1, 5, 10 et 20 minutes). Cette expérience souligne l'influence de l'effet toxique du NAPL, qui, à forte concentration, provoque la mort des bactéries situées à proximité. Une autre expérience de laboratoire a montré que des cultures multi-espèces pouvaient réduire le PCE à concentration de saturation malgré sa toxicité (Yang et McCarty 2000). Le PCE et ses sous-produits de dégradation (notamment le cDCE) étaient inhibants pour certaines populations mais cela avait paradoxalement un effet bénéfique sur le processus global de déhalogénation en réduisant la compétition inter-espèces. L'influence de la toxicité sur la dissolution favorisée par la biodégradation du PCE a été étudiée à partir de simulations numériques à l'échelle macroscopique par Chu et al. (2004).

4.2 Description du modèle théorique et numérique

Nous proposons d'étendre le modèle de croissance bactérienne développé dans le Chapitre 3 à la biodégradation et à la dissolution d'une phase NAPL piégée de manière résiduelle. Ce modèle a bénéficié du travail initié durant le master de Fischer (2014). À notre connaissance, il n'existe pas à l'heure actuelle de modèle capable de décrire à la fois la

biodégradation d'un polluant non miscible et la croissance de biomasse associée à l'échelle du pore.

4.2.1 Hypothèses du modèle

Le développement numérique que nous proposons ici, est une extension du modèle présenté au chapitre précédent en introduisant une phase NAPL supplémentaire. Le modèle comporte donc maintenant quatre phases : une phase solide s (notée par le suffixe s), une phase fluide (f), une phase biofilm (b) et une phase NAPL (h). Aux hypothèses préalablement introduites dans le paragraphe 3.1.1. viennent s'ajouter les simplifications suivantes :

- Le NAPL est supposé piégé de manière résiduelle au sein de la matrice poreuse. Il se comporte comme une phase immobile d'un point de vue de l'écoulement.
- La phase NAPL est un corps pur composé d'un seul constituant qui est biodégradable et joue le rôle du donneur d'électron pour les bactéries présentes dans le milieu (comme précédemment, les autres substances nécessaires à leur survie sont supposées en large excès).
- La diffusion de l'eau au sein de la phase NAPL est négligeable.
- les gouttelettes de NAPL sont parfaitement sphériques (ou circulaires en 2D). Le piégeage sous forme de film est négligé. D'autre part, les variations des flux de masse échangés sur le pourtour de l'interface (dans le cas d'une interface mixte avec le fluide et le biofilm pour une même gouttelette) est supposée ne pas être suffisante pour vaincre les forces de tension superficielle (pas de rupture de la gouttelette). Autrement dit, le rayon de chaque gouttelette de NAPL diminue au cours du temps en fonction de la somme des flux échangés avec le milieu environnant.
- Le biofilm peut se développer aussi bien à l'interface en contact avec la phase fluide qu'avec la phase NAPL. Les bactéries produisent des biosurfactants dont la concentration est supposée constante et qui sont présents uniquement dans le biofilm (pas de transport des biosurfactants produits au sein de la phase fluide ni de variabilité des conditions interfaciales en fonction de la concentration de surfactant).
- Seule l'augmentation de la solubilité de l'hydrocarbure dissout (via le coefficient de partage K_{bh}) en présence de biosurfactants est considérée. La modification de la tension superficielle n'est pas prise en compte. La remobilisation des gouttelettes de NAPL par l'écoulement est supposée négligeable devant le processus de dissolution proprement dit.
- La biodégradation de l'hydrocarbure dissout au sein de la phase biofilm est régie par une cinétique de Haldane afin de tenir compte des effets de toxicité (voir paragraphe 4.2.4).

4.2.2 Modélisation de l'écoulement

Sous l'hypothèse d'une phase NAPL à saturation résiduelle et d'une quasi-stationnarité des processus de dissolution et de croissance bactérienne, le système d'équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement sont similaires à celles obtenues précédemment, Eqs. 3.1-3.4, auxquelles vient s'ajouter une condition limite de non glissement à l'interface fluide-NAPL A_{fh} :

$$\nabla p = \mu_f \nabla^2 \mathbf{u}, \qquad \text{dans la phase fluide} \tag{4.4}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \qquad \text{dans la phase fluide} \tag{4.5}$$

$$C.L.1 \qquad \mathbf{u} = 0, \qquad \text{sur } A_{fb} \tag{4.6}$$

$$C.L.2 \qquad \mathbf{u} = 0, \qquad \text{sur } A_{fs} \tag{4.7}$$

$$C.L.3 \qquad \mathbf{u} = 0, \qquad \text{sur } A_{fh} \tag{4.8}$$

Comme dans le chapitre précédent, nous avons considéré que les interfaces A_{fi} avec la phase i (y compris avec la phase NAPL), bien qu'évoluant au cours du temps, sont supposés se déplacer lentement comparativement à la relaxation du champ de pression (approximation quasi-stationnaire) de telle sorte qu'une condition de non-glissement puisse être adoptée.

Ces équations sont résolues à l'aide du modèle $LB - IBM$ détaillé dans le chapitre 2. L'interface mobile entre la goutte de NAPL et le fluide (ou le biofilm) est prise en compte, de la même manière que celle entre les phases biofilm et fluide, au travers de mailles immergées. On notera ainsi par $\phi_b(\mathbf{x}, t)$ et $\phi_h(\mathbf{x}, t)$ respectivement la fraction volumique de biofilm et de NAPL au sein de chaque maille. Dans le cas où uniquement deux phases occupent la maille ($\phi_h = 0$ ou $\phi_b = 0$), le calcul de l'écoulement au sein des mailles immergées est identique à celui effectué précédemment. En revanche, si les 3 phases coexistent au sein de la maille, nous ferons l'hypothèse supplémentaire que celles-ci sont présentes sous la forme d'un milieu stratifié (le biofilm croît de manière uniforme et reste parallèle à l'interface fluide-NAPL au sein de la sous-maille). Autrement dit, l'interface où s'applique la condition de vitesse nulle est distante de $(1 - \phi_b - \phi_h)\delta x$ de la facette externe de la maille. La résolution numérique est alors similaire au cas précédent.

4.2.3 Modélisation du transport d'espèces au sein du système eau-biofilm-NAPL

Le transport de l'hydrocarbure dissout au sein de ce système triphasique est décrit par les équations de conservation et les conditions limites données ci-dessous :

$$\frac{\partial c_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u} c_f) = \nabla \cdot (D_f \nabla c_f), \qquad \text{dans la phase fluide} \tag{4.9}$$

$$\frac{\partial c_b}{\partial t} = \nabla \cdot (D_b \nabla c_b) - R_b, \qquad \text{dans la phase biofilm} \tag{4.10}$$

$$\frac{\partial c_h}{\partial t} = 0, \qquad \text{dans la phase NAPL} \tag{4.11}$$

$$c_f = K_{bf}\, c_b, \qquad \text{sur } A_{fb} \tag{4.12}$$

$$c_f = K_{fh}\, c_h, \qquad \text{sur } A_{fh} \tag{4.13}$$

$$c_b = K_{bh}\, c_h, \qquad \text{sur } A_{bh} \tag{4.14}$$

$$0 = D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n}_{fs}, \qquad \text{sur } A_{fs} \tag{4.15}$$

$$0 = D_h \nabla c_h \cdot \mathbf{n}_{hs}, \qquad \text{sur } A_{hs} \tag{4.16}$$

$$0 = D_b \nabla c_b \cdot \mathbf{n}_{bs}, \qquad \text{sur } A_{bs} \tag{4.17}$$

$$D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n}_{fb} = D_b \nabla c_b \cdot \mathbf{n}_{fb}, \qquad \text{sur } A_{fb} \tag{4.18}$$

$$D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n}_{fh} = D_h \nabla c_h \cdot \mathbf{n}_{fh}, \qquad \text{sur } A_{fh} \tag{4.19}$$

$$D_b \nabla c_b \cdot \mathbf{n}_{bh} = D_h \nabla c_h \cdot \mathbf{n}_{bh}, \qquad \text{sur } A_{bh} \tag{4.20}$$

$$D_f \nabla c_f \cdot \mathbf{n}_{fh} = -c_h\, \mathbf{w}_{fh} \cdot \mathbf{n}_{fh}, \qquad \text{sur } A_{fh} \tag{4.21}$$

$$D_b \nabla c_b \cdot \mathbf{n}_{bh} = -c_h\, \mathbf{w}_{bh} \cdot \mathbf{n}_{bh}, \qquad \text{sur } A_{bh} \tag{4.22}$$

À la différence du chapitre précédent, il est important de souligner que la résolution des équations de transport est maintenant effectuée en transitoire. En effet, comme le transport de l'hydrocarbure dissout est directement relié à l'évolution temporelle des gouttelettes de NAPL, la solution stationnaire des équations de transport n'est jamais atteinte. Nous conservons toutefois une hypothèse de quasi-stationnarité des processus de transport par rapport aux cinétiques d'évolution des interfaces mobiles (de même que l'hypothèse de quasi-stationnarité de l'écoulement qui reste toujours d'actualité) en résolvant de manière séquentielle les Eqs. 4.9 – 4.20 et les Eqs. 4.21 – 4.22. Ce choix de modélisation va fortement impacter par la suite le temps de calcul du modèle.

Ici c_i représente la concentration d'hydrocarbure au sein de la phase i, $\mathbf{w}_{hj}$ la vitesse locale de déplacement de l'interface A_{hj}. Notons que c_h est constante et correspond à la masse volumique du NAPL puisque celui-ci est monoconstituant. La cinétique utilisée pour le terme de réaction R_b sera discutée plus longuement dans le paragraphe 4.2.4.

Les valeurs des coefficients de partage K_{fh} et K_{bh} peuvent être différentes afin de tenir compte de la présence des biosurfactants au niveau de l'interface biofilm-NAPL. Nous aurons généralement la relation :

$$K_{fh} \leqslant K_{bh} \tag{4.23}$$

Il faut également préciser que les trois coefficients de partage ne sont pas strictement indépendants. Afin de respecter la condition d'équilibre thermodynamique du système au repos, nous avons ainsi :

$$K_{bf} = \frac{K_{fh}}{K_{bh}} \tag{4.24}$$

Une dernière remarque concerne l'expression des conditions limites régissant l'évolution de l'interface de la phase NAPL, Eqs. 4.21 et 4.22. Ces équations, valables dans le cas de l'hypothèse d'un traceur (faible concentration d'hydrocarbure dissout), relient le flux diffusif interfacial à la vitesse de déplacement $\mathbf{w}_{hj}$ de l'interface A_{hj}. Les valeurs de $\mathbf{w}_{fh}$ et $\mathbf{w}_{bh}$ ne sont pas nécessairement identiques compte tenu des variations de solubilité entre la phase fluide et la phase biofilm. Dans le cas d'une gouttelette de NAPL présentant une interface commune à la fois avec le biofilm et le fluide environnant, cela peut théoriquement conduire à une déformation du contour de l'amas piégé. Toutefois, les Eqs. 4.21 et 4.22 ne tiennent pas compte des effets de tension superficielle qui sont supposés contrebalancer ce phénomène. Nous reviendrons dans le paragraphe 4.2.4 sur les approches envisagées pour résoudre ce problème et décrire la dissolution du NAPL.

Comme précédemment, la difficulté liée à la discrétisation spatiale du système d'équations, Eqs 4.9 – 4.20, réside dans la présence de frontières immergées au sein de mailles pouvant contenir jusqu'à 3 phases. Dans le cas du système fluide-biofilm, étudié dans le Chapitre 3, ce problème était surmonté grâce à une méthode de type VOF basée sur une hypothèse d'équilibre local entre les deux phases. En présence d'une phase NAPL supplémentaire, cette hypothèse est toutefois plus difficile à cautionner. Compte tenu des forts gradients de concentration existant dans le domaine (les seules sources d'apport de soluté sont issues des gouttelettes piégées), la plage de conditions hydrodynamiques pour lesquels le NAPL serait proche des conditions d'équilibre de masse local avec le fluide et/ou le biofilm (même uniquement au voisinage des frontières immergées) semble extrêmement réduite. Sur la base de cette réflexion, nous avons donc opté pour une méthode de reconstruction d'interfaces au niveau des frontières immergées. Un schéma aux volumes finis est utilisé pour discrétiser les équations. En pratique, cela revient à modifier le volume des mailles au voisinage de la frontière immergée. Le volume de contrôle de la maille immergée est alors réduit au volume occupé par la phase majoritaire (i.e., dont la fraction volumique est la plus importante) tandis que la maille voisine est agrandie de la fraction volumique restante (Fig. 4.6). Cette modification impacte non seulement le volume et les surfaces d'échange des mailles au contact de la frontière immergée mais aussi le calcul des flux interfaciaux associés. Nous renvoyons le lecteur au Chapitre 2 pour plus de détails sur la méthodologie adoptée dans le cas d'un système diphasique. Lorsque les trois phases (et donc deux interfaces mobiles) sont présentes au sein de la même maille, une hypothèse d'équilibre local est tout d'abord utilisée entre les phases fluide et biofilm. L'interface entre le NAPL et la phase mixte fluide-biofilm (dont les propriétés dépendent des fractions volumiques des deux phases) est ensuite modélisée par la méthode de reconstruction d'interface décrite précédemment.

Concernant la discrétisation temporelle, le pas de temps de calcul du transport t_{CFL} est déterminé à partir des valeurs de vitesse aux noeuds sur la base de la condition de Courant (ou condition CFL pour Courant-Friedrichs et Lewy) afin d'éviter des problèmes d'oscillation.

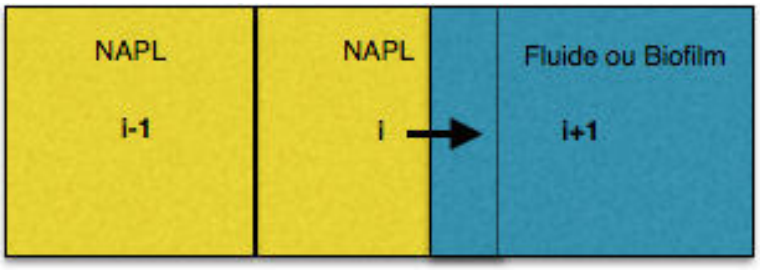

FIGURE 4.6 – *Exemple d'extension d'une maille fluide ou biofilm et réduction de la maille NAPL pour la méthode de reconstruction d'interface*

$$t_{CFL} = \frac{CFL}{max(V_x^{max}/\Delta_x, V_y^{max}/\Delta_y, V_z^{max}/\Delta_z)} \tag{4.25}$$

avec V_x^{max}, V_y^{max}, V_z^{max} les vitesses maximales pour l'ensemble du domaine d'étude selon chaque direction, Δ_x, Δ_y, Δ_z le pas d'espace selon chaque direction et CFL une constante choisie la plus proche de 1 (généralement 0.9). Le temps caractéristique de croissance du biofilm t_{growth} restant le phénomène limitant, l'étape de transport est résolue N_{ct} fois sur le pas de temps t_{CFL} tel que :

$$N_{ct} = \left[\frac{t_{growth}}{t_{CFL}}\right] \tag{4.26}$$

où [.] représente la fonction partie entière. Pour rappel, le temps caractéristique t_{growth} a été fixé arbitrairement de la manière suivante dans le Chapitre 3 :

$$t_{growth} = 1\% \frac{1}{F \times \mu} \tag{4.27}$$

avec F le coefficient stoechiométrique et μ le taux maximum de réaction.

4.2.4 Modélisation de la dissolution du NAPL

Comme nous l'avons déjà évoqué, les différences de solubilité de l'hydrocarbure en présence des phases fluide et biofilm vont conduire à des variations des flux interfaciaux qui peuvent être significatives. Dans le cas d'un gouttelette de NAPL en contact avec ces deux phases, cela peut générer des variations spatiales du taux de dissolution sur le pourtour de l'interface. Théoriquement, ce phénomène devrait être compensé par les forces de tension superficielle qui ont un effet stabilisateur sur la forme de l'interface. Si ces forces sont prépondérantes, les variations du taux de dissolution seront réparties sur l'ensemble du pourtour de manière à conserver une gouttelette sphérique. Dans le cas contraire, l'écart entre les vitesses de dissolution conduira à une rupture de l'interface et à la formation de deux nouvelles gouttelettes. Cependant, comme nous avons délibérément choisi de ne pas tenir compte de ces effets de tension superficielle (entre autre pour des raisons de temps de calcul), il est nécessaire

d'envisager des alternatives afin de conserver une modélisation réaliste de la dissolution des amas piégés. Deux approches ont été envisagées :

modèle de dissolution locale : la dissolution du NAPL piégé est résolue maille par maille, indépendamment de la forme initiale des amas piégés. Cette solution revient à négliger la rupture des interfaces fluides, l'amas initial restant un seul et même objet, quelle que soit sa forme.

modèle de dissolution uniforme : les forces de tensions superficielles sont supposées prépondérantes, la gouttelette conservant sa forme sphérique tout au long de sa dissolution.

Ces deux approches sont détaillées et comparées dans les paragraphes suivants.

4.2.4.1 Modèle de dissolution locale

Une fois le champ de concentration calculé, la masse de NAPL dissoute durant le temps t_{CFL} est déterminée pour chaque maille NAPL (ou contenant une fraction volumique de NAPL) à partir des Eqs. 4.21 – 4.22. Cette quantité dissoute $M_h^{diss}(i,j,k)$ est obtenue directement à partir du calcul des flux diffusifs aux interfaces :

$$M_h^{diss}(i,j,k) = t_{CFL} \cdot \int_{A_{maille}} -c_h \, \mathbf{w}_h \cdot \mathbf{n}_h \, dA \tag{4.28}$$

$$= t_{CFL} \cdot \int_{A_{maille}} D_h \nabla c_h \cdot \mathbf{n}_h \, dA \tag{4.29}$$

où $A_{maille} = A_{fh} \cup A_{bh}$ est la surface d'échange de la maille NAPL (i,j,k) avec les phases environnantes (fluide ou biofilm). La fraction volumique de NAPL dissout correspondante est donnée par

$$\phi_h^{diss}(i,j,k) = \frac{M_h^{diss}}{c_h V_{maille}} \tag{4.30}$$

avec V_{maille} étant le volume de la maille (i,j,k) considérée. On peut ainsi actualiser la fraction volumique de NAPL restante au pas de temps $t + t_{CFL}$ en chacune des mailles,

$$\phi_h^{t+t_{CFL}}(i,j,k) = \phi_h^t(i,j,k) - \phi_h^{diss}(i,j,k) \tag{4.31}$$

Lorsque la fraction volumique de NAPL ϕ_h devient égale à zéro, la maille correspondante est transformée en une maille biofilm si elle a au moins une voisine biofilm ou sinon en maille fluide. Afin d'illustrer l'application de cette méthode, nous avons représenté Fig. 4.6 la dissolution 2D d'une gouttelette d'hydrocarbure piégée entre quatre grains circulaires, en absence de biomasse. Un écoulement latéral est imposé avec une concentration nulle à l'entrée du domaine. On constate une réduction progressive du NAPL qui s'accompagne d'une déformation du contour, initialement circulaire, de la gouttelette. En dépit de l'absence de biofilm, les variations locales de la vitesse d'écoulement sont suffisantes pour générer des gradients de concentration, et par conséquent, une dissolution plus rapide de la phase huile en amont qu'en aval de l'amas piégé. Si cette approche est simple dans sa mise en œuvre (calcul maille par maille, il n'est pas nécessaire de suivre l'évolution de chaque gouttelette indépendamment), elle est aussi légèrement plus coûteuse en temps de calcul.

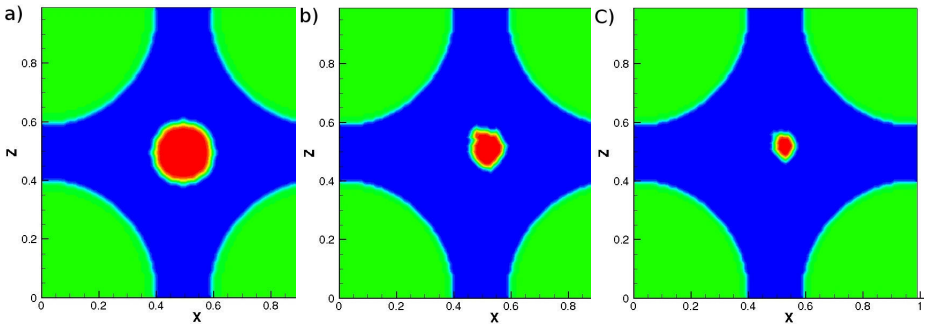

FIGURE 4.7 – *a), b), c) Dissolution d'une gouttelette de NAPL à des instants croissants. Les grains solides sont en vert, le NAPL en rouge et le fluide en bleu (la couleur jaune est un artefact du logiciel de post-traitement lié au lissage des couleurs)*

4.2.4.2 Modèle de dissolution uniforme

La seconde méthode consiste à répartir la dissolution de manière uniforme sur le pourtour de l'interface. De cette manière, la gouttelette conserve une forme sphérique tout au long du processus de dissolution. Comme précédemment, on calcule tout d'abord la masse de NAPL dissoute durant le pas de temps t_{CFL}, M^{diss}_{goutte}, mais cette fois-ci pour chaque gouttelette et non plus par maille :

$$M^{diss}_{goutte} = t_{CFL} \cdot \int_{A_{goutte}} -c_h \, \mathbf{w}_h \cdot \mathbf{n}_h \, dA \tag{4.32}$$

$$= t_{CFL} \cdot \int_{A_{goutte}} D_h \nabla c_h \cdot \mathbf{n}_h \, dA \tag{4.33}$$

Une fois sommé les flux échangés pour chaque maille frontière, nous pouvons déterminer le volume de la gouttelette qui a été dissout durant le pas de temps t_{CFL} ainsi que le volume restant $V^{t+t_{CFL}}_{goutte}$:

$$V^{diss}_{goutte} = \frac{M^{diss}_{goutte}}{c_h} \tag{4.34}$$

$$V^{t+t_{CFL}}_{goutte} = V^{t}_{goutte} - V^{diss}_{goutte} \tag{4.35}$$

avec V^{t}_{goutte} le volume de la gouttelette de NAPL à l'instant t (avant l'étape de dissolution) et V^{diss}_{goutte} le volume dissout durant le pas de temps t_{CFL}. La goutte conservant sa forme initiale (circulaire en 2D ou sphérique en 3D), il suffit alors de réactualiser son rayon $R^{t+t_{CFL}}$ à partir de la relation suivante :

$$R^{t+t_{CFL}}_{2D} = \sqrt{\frac{V^{t+t_{CFL}}_{goutte}}{\pi}} \text{ en } 2D \tag{4.36}$$

$$R^{t+t_{CFL}}_{3D} = (\frac{3}{4\pi} V^{t+t_{CFL}}_{goutte})^{\frac{1}{3}} \text{ en } 3D \tag{4.37}$$

Une fois réduite, la nouvelle gouttelette de rayon $R^{t+t_{CFL}}$ est reprojetée sur le maillage afin de déterminer les mailles NAPL restantes ainsi que les fractions volumiques ϕ_h actualisées pour les mailles traversées par l'interface. Les mailles précédemment NAPL mais qui ne sont plus incluses dans

le disque ou la sphère de rayon $R^{t+t_{CFL}}$ sont alors transformées en maille fluide ou biofilm en fonction des mailles de contact (comme pour le modèle de dissolution locale). Nous avons représenté 4.8 l'évolution d'une gouttelette de NAPL piégée entre quatre grains circulaires. Les conditions initiales et aux limites de la simulation sont les mêmes que précédemment (cf. Fig. 4.6) afin de faciliter la comparaison. La gouttelette se dissout cette fois-ci de manière parfaitement uniforme. Néanmoins, si l'on constate quelques différences sur le pourtour de l'interface de l'amas de NAPL, l'évolution au cours du temps du rayon moyen de la gouttelette reste très similaire pour les deux méthodes. Si cette approche est légèrement plus complexe à mettre en œuvre (nécessité de suivre chaque gouttelette et de réactualiser les mailles traversées par l'interface), elle présente l'avantage de conserver une géométrie des interfaces cohérente avec la géométrie de départ et bien adaptée à de faibles saturations en hydrocarbure. C'est cette approche que nous conserverons par la suite dans notre étude.

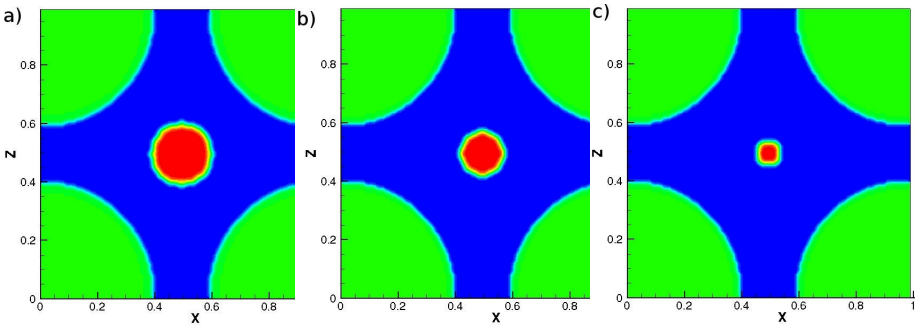

FIGURE 4.8 – *a), b), c) Dissolution d'une gouttelette de NAPL à des instants croissants. Les grains solides sont en vert, le NAPL en rouge et le fluide en bleu (la couleur jaune est un artefact du logiciel de post-traitement lié au lissage des couleurs)*

4.2.5 Cinétique de croissance de la biomasse et effet d'inhibition

Contrairement au Chapitre 3 où nous avions utilisé une cinétique classique de Monod (Eq. 3.12), nous supposerons dans ce chapitre que la concentration en biomasse de la phase biofilm, et donc sa croissance, est régie par un modèle de Haldane (Saravanan et al. 2008). Ce choix est motivé par l'impact de la toxicité du NAPL vis-à-vis de la biomasse. Le modèle de Haldane est largement utilisé en effet dans la littérature pour représenter l'influence d'effet d'inhibition sur la cinétique de croissance d'une culture bactérienne, y compris en présence d'une substrat biodégradable mais toxique pour de fortes concentrations (Kumar et al. 2005). Le terme de réaction dans l'équation 4.10 s'écrit alors sous la forme :

$$R_b = \rho_{bio}\mu \frac{C}{C + K + \frac{C^2}{K_i}} \tag{4.38}$$

et l'équation de croissance est donnée par la relation suivante :

$$\frac{\partial \rho_{bio}}{\partial t} = F_\lambda \rho_{bio}\mu \frac{C}{C + K + \frac{C^2}{K_i}} - k_d \rho_{bio} \tag{4.39}$$

où ρ_{bio} est la concentration en biomasse, μ le taux maximal de réaction, F_λ le coefficient stoechiométrique de la réaction biologique, k_d est le coefficient d'extinction des bactéries, K la constante de demi-saturation et K_i le coefficient d'inhibition. La répartition de la biomasse produite au sein du domaine est régie par le même modèle d'automate cellulaire que précédemment (cf. paragraphe 3.3).

Afin d'illustrer les différences introduites par cette nouvelle cinétique, La figure 4.9 compare l'évolution du taux de réaction R_b prédit par le modèle de Monod et de Haldane en fonction de la concentration en substrat. Nous avons considéré les valeurs suivantes des paramètres cinétiques pour cette comparaison : $\mu = 0.3h^{-1}$, $K = 44.9mg/l$, $K_i = 525mg/l$

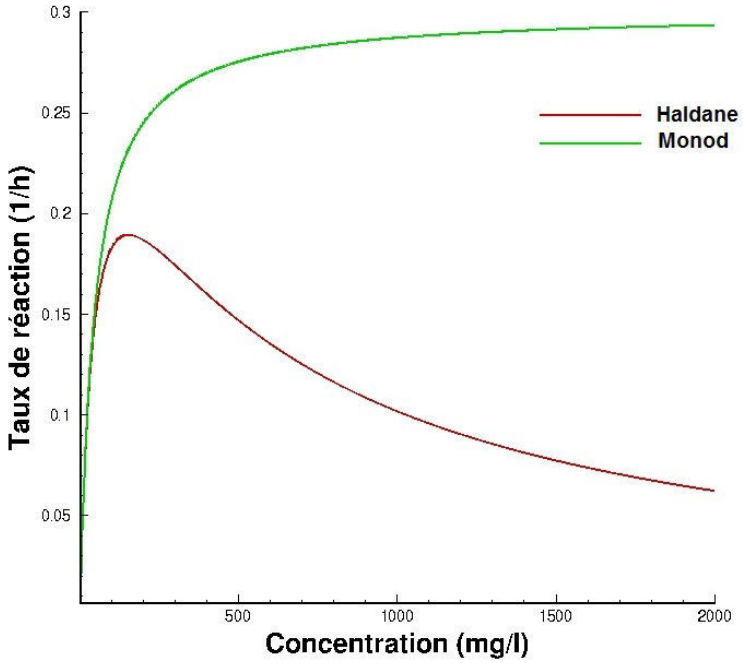

FIGURE 4.9 – *Évolution du taux de réaction en fonction de la concentration en substrat pour le modèle de Monod et de Haldane ($\mu = 0.3h^{-1}$, $K = 44.9mg/l$, $K_i = 525mg/l$)*

4.2.6 Conditions aux limites

Des conditions limites de Dirichlet ou Neumann sont classiquement imposées aux frontières externes du domaine. Sur les parois d'entrée et de sortie, une condition en pression ou vitesse imposée est donnée. À la différence du chapitre précédent, nous maintiendrons pour toutes les simulations une concentration nulle à l'entrée (avec une condition de flux libre en sortie), le seul apport de substrat provenant des amas de NAPL piégés. Sur les limites latérales, des conditions de périodicité, de symétrie ou de parois imperméables peuvent être fixées en fonction du problème traité..

4.2.7 Adimensionnement des équations

Comme pour le Chapitre 3, le système d'équations régissant le comportement de notre système triphasique eau-fluide-biofilm a été adimen-

sionné afin d'exhiber les principaux nombres adimensionnels gouvernant les processus mis en jeu. Les variables adimensionnées utilisées sont rappelées ci-dessous :

$$x' = \frac{x}{l},\ y' = \frac{y}{l},\ z' = \frac{z}{l},\ t' = t\ \frac{D_f}{l^2},\ c_i' = \frac{c_i}{c_h}, \quad (i = f, b) \tag{4.40}$$

$$p' = \frac{p\,l}{\mu_f\,u_{moy}},\ \mathbf{u}' = \frac{\mathbf{u}}{u_{moy}},\ \rho_{bio}' = \frac{\rho_{bio}}{\rho_{biomax}},\ D_b' = \frac{D_b}{D_f}, \tag{4.41}$$

$$K' = \frac{K}{c_h},\ K_i' = \frac{K_i}{c_h},\ \mu' = \mu\frac{l^2}{D_f},\ k_d' = k_d\frac{l^2}{D_f},\ \mathbf{w}_{ij}' = \frac{\mathbf{w}_{ij}\,l}{D_f} \tag{4.42}$$

où ρ_{biomax}, u_{moy} et l représentent respectivement la concentration maximale en biomasse, la vitesse moyenne et une longueur caractéristique du milieu. Les concentrations sont adimensionnées par rapport à la masse volumique du NAPL, c_h.

Nous obtenons ainsi finalement le système d'équations adimensionnées suivant (l'indice d'adimensionnement ′ sur l'opérateur nabla n'a pas été conservé et nous n'avons pas reprécisé non plus les conditions aux limites par souci de lisibilité),

Phase fluide :

$$\nabla p' = \nabla^2 \mathbf{u}', \tag{4.43}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u}' = 0, \tag{4.44}$$

$$\frac{\partial c_f'}{\partial t'} + Pe\,\mathbf{u}' \cdot \nabla c_f' = \nabla \cdot (D_f' \nabla c') \tag{4.45}$$

Phase biofilm :

$$\frac{\partial c_b'}{\partial t'} = \nabla \cdot (D_b' \nabla c_b') - Da\,\rho_{bio}' \frac{c_b'}{\frac{c_b'}{K'} + 1 + \frac{c_b'^2}{K' K_i'}}, \tag{4.46}$$

$$\frac{\partial \rho_{bio}'}{\partial t'} = Da\,G\,\rho_{bio}' \frac{c_b'}{\frac{c_b'}{K'} + 1 + \frac{c_b'^2}{K' K_i'}} - k_d' \rho_{bio}' \tag{4.47}$$

Phase NAPL :

$$\frac{\partial c_h'}{\partial t'} = 0, \tag{4.48}$$

$$\nabla c_f' \cdot \mathbf{n}_{fh} = -\mathbf{w}_{fh}' \cdot \mathbf{n}_{fh},\ \text{sur } A_{fh} \tag{4.49}$$

$$D_b' \nabla c_b' \cdot \mathbf{n}_{bh} = -\mathbf{w}_{bh}' \cdot \mathbf{n}_{bh},\ \text{sur } A_{bh} \tag{4.50}$$

Comme précédemment, ce sont les nombres adimensionnels de Péclet et de Damköhler ainsi que le paramètre de découplage G qui gouvernent les mécanismes mis en jeu à l'échelle du pore. Nous renvoyons le lecteur au Chapitre 2 et 3 pour la définition de ces nombres adimensionnels.

Pour conclure la présentation des modifications apportées au modèle à l'échelle du pore, nous avons représenté l'algorithme générale de ce modèle de dissolution du NAPL sur la Fig. 4.10 :

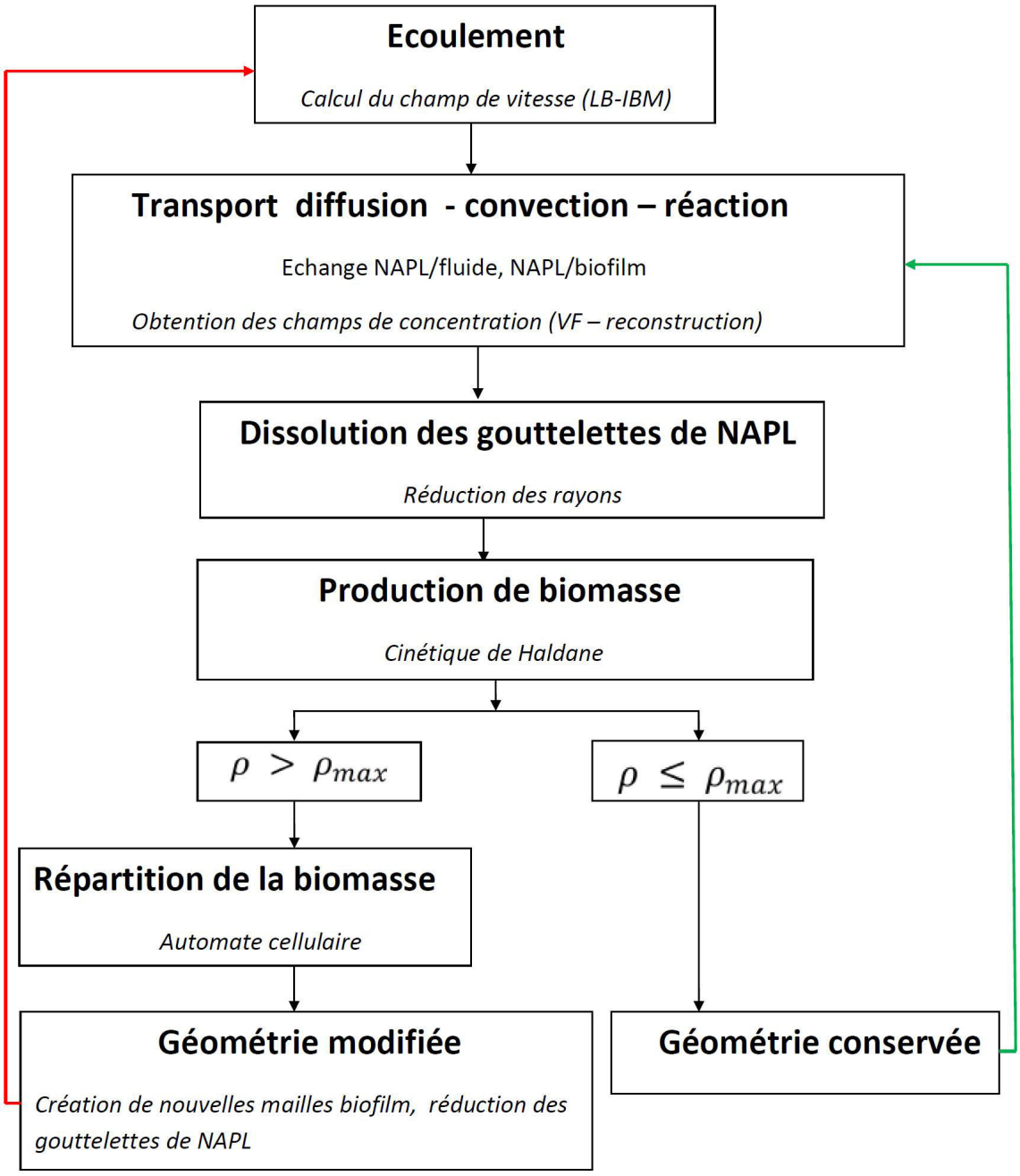

FIGURE 4.10 – *Algorithme du modèle de dissolution et de biodégradation d'une phase hydrocarbure à l'échelle du pore*

4.3 Résultats et discussion

Afin d'illustrer l'applicabilité de ce modèle à des milieux poreux complexes et évolutifs (réduction des gouttelettes de NAPL, croissance du biofilm), ainsi que sa capacité à prédire l'impact des principaux mécanismes biophysico-chimiques sur la dissolution de la phase d'hydrocarbure résiduelle, nous avons testé notre modèle de dissolution sous différentes conditions hydrodynamiques. L'influence des différents paramètres (*Pe*, *Da*, hétérogénéité, ...) a ainsi pu être être testée de manière distincte. Le milieu poreux complexe utilisé par la suite est similaire à celui introduit dans le paragraphe 3.7.1. Un gradient de pression est imposé en entrée du domaine avec des conditions de périodicité sur les parois latérales. Bien que le modèle ait été développé en 3D, nous nous bornerons toutefois dans ce Chapitre à des simulations 2D compte tenu des forts temps de calcul mis en jeu (liés en particulier au passage en transitoire des équations de transport). Afin de limiter la complexité du problème en terme d'analyse des résultats, l'influence des processus d'attachement-détachement bactérien sera négligée dans les cas d'étude discutés ci-dessous.

4.3.1 Dissolution du NAPL en absence de biodégradation

4.3.1.1 Influence de la distribution spatiale du NAPL

Dans cette partie, nous examinons l'influence de la distribution spatiale des amas de NAPL sur la dissolution de la phase huile au sein du milieu poreux. Nous considérons initialement trois gouttelettes identiques de NAPL piégées dans les pores du milieu comme indiqué sur les Figs. 4.11a - 4.11b . Il n'y a pas de population bactérienne pouvant biodégrader ces composés organiques. Les valeurs des données adimensionnées pour cette simulation sont présentées dans le tableau 4.2.

Table 4.2 – *Données numériques de simulation pour la dissolution du NAPL en condition abiotique*

Paramètre	valeur adimensionnée
Longueur du domaine, $l_x^{'}$	1
Largeur du domaine, $l_z^{'}$	1
Nombre de maille selon x, N_x	116
Nombre de maille selon z, N_z	116
Concentration de la phase NAPL pure $c_h^{'}$	1
Coefficient de partage K_{fh}	6×10^{-3}
Coefficient de diffusion dans la phase fluide $D_f^{'}$	1
Coefficient de diffusion dans la phase biofilm $D_b^{'}$	0.25
Position des gouttelettes de NAPL (abscisse, ordonnée, rayon) A, B, C	$A(0.27, 0.17, 0.055)$, $B(0.76, 0.36, 0.055)$, $C(0.38, 0.62, 0.055)$
Nombre de Péclet, (Pe)	6.2

Les figures (4.11b, 4.11d, 4.11f) suggèrent un bon comportement du

modèle d'un point de vue de l'écoulement. Le champ de vitesse semble en accord avec les hypothèses imposées : les vecteurs vitesses contournent en amont les gouttelettes piégés de NAPL qui constituent un obstacle et se resserrent à nouveau en aval. Quant au champ de concentration (Figs. 4.11a, 4.11c, 4.11e), il semble également cohérent avec les processus physiques mis en jeu : (i) le panache d'hydrocarbure issu de la dissolution est bien entrainé par l'écoulement en aval des ganglions de NAPL et suit les chemins préférentiels d'écoulement entre les grains solides et (ii) le panache de NAPL dissous se résorbe au fur et à mesure de l'avancement de la dissolution des gouttelettes. Enfin, les amas de NAPL qui se réduisent progressivement au cours du temps, conserve bien une forme circulaire, conformément à l'approche adoptée pour décrire la dissolution (*modèle de dissolution uniforme*). Autrement dit, les mécanismes à l'origine de la dissolution du NAPL semblent être bien pris en compte par notre modèle et les résultats semblent cohérents avec la physique introduite.

La Figure 4.11g indique une variation pratiquement linéaire du rayon des gouttelettes en fonction du temps ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux obtenus par (Kennedy et Lennox 1997). Ce comportement révèle que la cinétique de dissolution est indépendante de la taille des gouttelettes de NAPL, du moins avec les conditions numériques imposées. La Figure 4.11h qui suggère une évolution en loi puissance du volume de NAPL dissout, confirme ce résultat. Cette décroissance non linéaire est bien évidement liée à la réduction de la surface d'échange entre la goutte de NAPL et le fluide environnant qui conduit à une diminution des flux interfaciaux échangés entre les deux phases. Ce résultat est également en accord avec les observations de (Kennedy et Lennox 1997).

En revanche, si chacun des amas évolue de manière constante au cours du temps, une analyse plus poussée révèle des variations de la vitesse de dissolution entre les gouttelettes. Les Figs. 4.11g-4.11h montrent que la gouttelette *B* se dissout légèrement plus rapidement tandis que la gouttelette A se dissout avant la gouttelette *C*. Cette disparité se justifie par leur distribution spatiale et la mise en place de chemins d'écoulement préférentiel liés à l'hétérogénéité du milieu à petite échelle. En effet, la gouttelette *C* étant piégé dans une zone de faible vitesse, sa dissolution est fortement limitée par le transfert de masse externe ce qui entraine une diminution sensible des flux échangés entre le NAPL et la phase fluide (Figs. 4.11c et 4.11e). À l'inverse, la gouttelette *B* est piégée dans une macroporosité où les vitesses d'écoulement sont plus importantes ce qui entraine une augmentation du gradient de concentration et donc du flux échangé. Ces résultats sont là aussi en accord avec les observations expérimentales de la littérature (Kennedy et Lennox 1997, Imhoff et al. 1994).

4.3.1.2 Influence de la vitesse de l'écoulement

La vitesse d'écoulement joue un rôle non négligeable dans la dissolution des amas résiduels de NAPL comme elle impacte directement les transferts de masse avec le fluide externe. Pour souligner cette dépen-

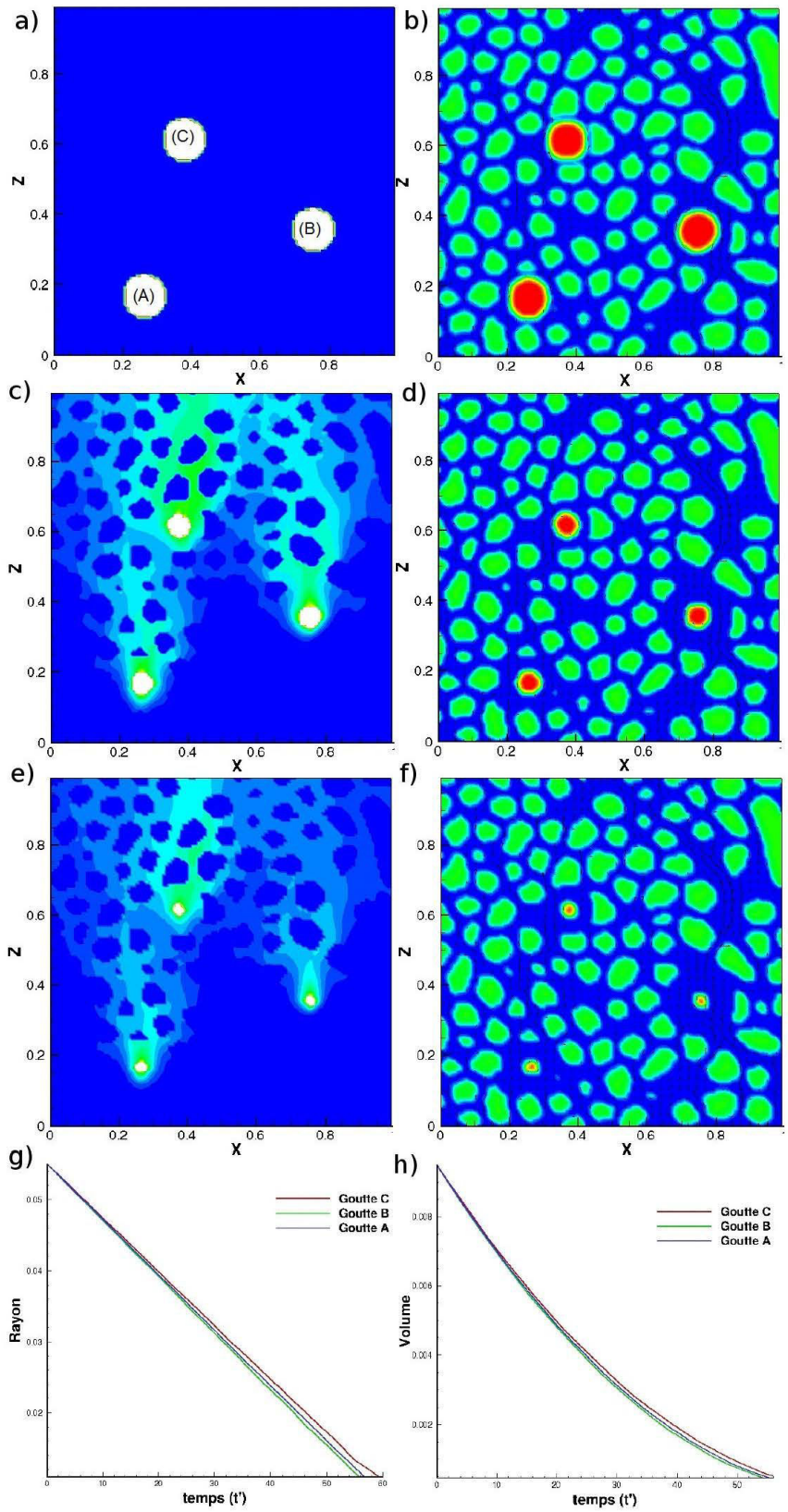

FIGURE 4.11 – *À gauche (a, c, e) : champs de concentration - la concentration varie de 0 en bleu à 6×10^{-3} en rouge, les gouttelettes de NAPL sont en blanc. À droite (b, d, f) : géométrie du milieu poreux et vecteurs du champs de vitesse. Le fluide est en bleu, le solide en vert, le NAPL en rouge et les mailles mixtes NAPL/fluide sont en jaune. a), b) $t' = 0$; c), d) $t' = 30$; e), f) $t' = 50$. g) Variation des rayons des gouttelettes de NAPL au cours du temps, h) Variation du volume des gouttelettes de NAPL au cours du temps. L'écoulement est orienté du bas vers le haut*

dance, nous avons comparé les résultats de notre modèle pour deux débits d'écoulement. Nous conservons ici les mêmes donnés de simulation que dans le paragraphe précédent à l'exception de deux paramètres, à savoir la taille des gouttelettes et le nombre de Péclet. Les rayons des gouttelettes de NAPL valent maintenant : $R_A = 0.05$, $R_B = 0.055$, $R_C = 0.06$. La Figure 4.12 présente la dissolution de ces gouttelettes pour deux valeurs du nombre de Péclet, respectivement $Pe = 6.2$ et $Pe = 125$ et à deux instants différents, $t^{'} = 20$ et $t^{'} = 50$.

L'observation des champs de concentration indique que l'étalement du panache de NAPL est fortement influencé par le nombre de Péclet ($Pe = 6.2$: Figs. 4.12b, 4.12f - $Pe = 125$: Figs. 4.12d, 4.12h). Plus le nombre de Péclet augmente, plus l'extension du panache se réduit. Ce comportement classique se traduit d'un point de vue macroscopique par une augmentation du coefficient de dispersion avec le nombre de Péclet, plus marqué selon la direction de l'écoulement (Powers et al. 1992, Ahmadi et al. 2001). Autrement dit, l'augmentation du nombre de Péclet favorise la présence de forts gradients de concentration autour des gouttelettes de NAPL et donc un accroissement du flux de NAPL dissout. Cette augmentation se traduit bien évidemment par une dissolution plus rapide des zones de saturation résiduelle en NAPL (Figs. 4.12c, 4.12g). Ainsi, pour $t^{'} = 50$, la dissolution des gouttelettes de NAPL est pratiquement totale à $Pe = 125$ (Fig. 4.12g) alors que les trois gouttelettes sont encore visibles pour $Pe = 6.2$ (Fig. 4.12e). Pour de faibles valeurs de Péclet, en effet, les effets diffusifs sont encore fortement prédominants. Les échanges sont limités par le transfert de masse externe et la dissolution des amas piégés est relativement plus lente (Figs. 4.12a et 4.12e) .

L'observation des résultats à l'échelle du milieu poreux confirme cette analyse. La Figure 4.13 présente l'abattement au cours du temps de la fraction volumique totale de NAPL piégé pour les deux vitesses d'écoulement. On observe un accroissement d'environ 25% de la vitesse apparente de dissolution pour $Pe = 125$ par rapport à $Pe = 6.2$. Cet augmentation peut sembler faible compte tenu de l'augmentation de la vitesse par un facteur 20 environ mais elle s'explique par la très faible saturation de NAPL initialement présente dans le milieu. Notons que Ahmadi et al. (2001) obtiennent des résultats comparables en termes d'ordre de grandeur pour les variations du coefficient de transfert de masse à partir de calcul sur des cellules unitaires 3D (augmentation du coefficient d'échange d'un facteur 2 environ pour une variation du nombre de Péclet de 1 à 100 lorsque la saturation en NAPL est inférieure à 5%).

4.3.2 Impact des bactéries sur la dissolution du NAPL

Dans ce paragraphe, le milieu poreux que nous avons défini précédement est inoculé par des bactéries pouvant biodégrader l'hydrocarbure présent. La distribution de la phase huile est similaire à celle du paragraphe 4.3.1.2. Les bactéries, présentes sous forme sessile, occupent initialement 13% du volume poral, réparties aléatoirement sur les surfaces solides. Les données de simulation sont rassemblées dans le Tableau

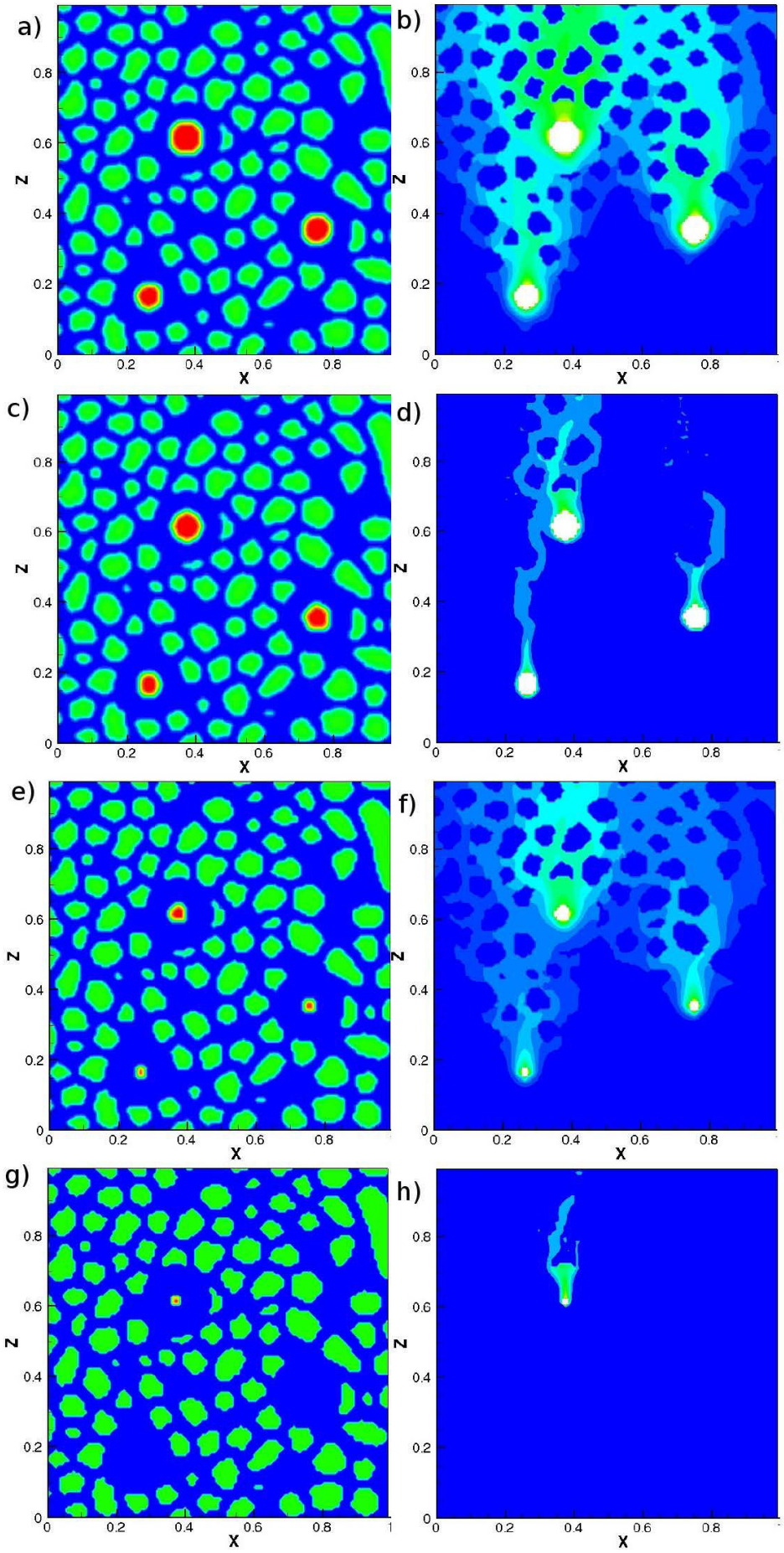

FIGURE 4.12 – *Géométrie (a, c, e, g) du milieu poreux et champ de concentration associé (b, d, f, h) pour deux temps différents et deux valeurs du nombre de Péclet : a), b)* $t' = 20$ *- Pe* $= 6.2$*; c), d)* $t' = 20$ *- Pe* $= 125$*; e), f)* $t' = 50$ *- Pe* $= 6.2$*; g), h)* $t' = 50$ *- Pe* $= 125$*. La concentration varie de* 0 *en bleu à* 6×10^{-3} *en rouge. L'écoulement est orienté du bas vers le haut*

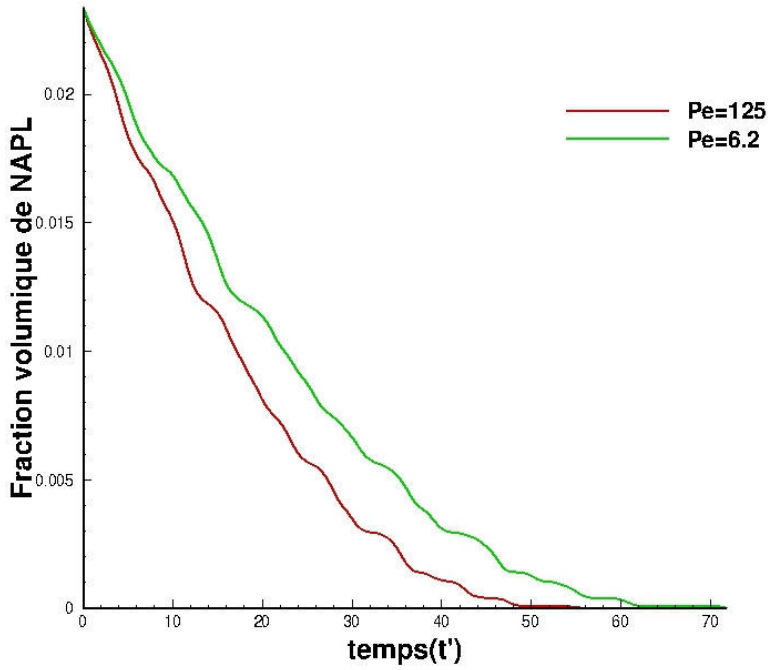

FIGURE 4.13 – *Variation de la fraction volumique de NAPL en fonction du temps pour deux valeurs du nombre de Péclet : $Pe = 125$, $Pe = 6.2$*

4.3. Sauf mention contraire, le coefficient d'extinction adimensionné sera maintenu constant pour le reste du chapitre et égal à $k_d^{'} = 2 \times 10^{-7}$. L'échelle de couleur utilisée pour représenter les différentes mailles est détaillée sur la Fig. 4.14h et sera conservée pour la suite. Précisons ici que nous avons représenté les mailles fluide/biofilm comme des mailles biofilm afin de limiter le nombre de couleurs utilisées et faciliter la lisibilité des figures.

Dans un premier temps, nous avons considéré des valeurs des nombres de Damköhler et de Péclet relativement faibles, i.e., $Da = 2$ et $Pe = 5$. En outre, afin d'étudier l'influence de l'augmentation de la solubilité du polluant dissous au contact des bactéries, nous avons pris un coefficient d'inhibition élevé, i.e., $K_i^{'} = 2 \times 10^{-3}$. Cette forte valeur de K_i revient à éliminer les effets toxiques du NAPL de sorte que les bactéries puissent croître même en présence d'un excès de substrat. Autrement dit, cette hypothèse favorise la croissance bactérienne même au voisinage (voire au contact) de la goutte de NAPL.

L'analyse des Figures 4.14a-4.14d indique que le biofilm (en bleu cyan sur les figures) croît préférentiellement à proximité des gouttelettes de NAPL. À l'inverse, peu de mailles biofilm se développent loin des amas résiduels de NAPL. Au fur et à mesure, le volume de biomasse augmente et le biofilm se rapproche des gouttelettes de NAPL jusqu'à atteindre l'interface. Cette croissance préférentielle traduit bien le développement bactérien là où la concentration en substrat est maximale (les gouttelettes de NAPL constituant la seule source de substrat). Compte tenu, à la fois de la répartition spatiale initiale du NAPL et du biofilm et des écoule-

TABLE 4.3 – *Données numériques de simulation pour la dissolution du NAPL avec biodégradation*

Paramètre	valeur adimensionnée
Longueur du domaine, $l_x^{'}$	1
Largeur du domaine, $l_z^{'}$	1
Nombre de maille selon x, N_x	116
Nombre de maille selon z, N_z	116
Concentration de la phase NAPL pure $c_h^{'}$	1
Coefficient de partage K_{fh}	6×10^{-3}
Coefficient de diffusion dans la phase fluide $D_f^{'}$	1
Coefficient de diffusion dans la phase biofilm $D_b^{'}$	0.25
Position des gouttelettes de NAPL (abscisse, ordonnée, rayon) A, B, C	$A(0.27, 0.17, 0.05)$, $B(0.76, 0.36, 0.055)$, $C(0.38, 0.62, 0.06)$
Nombre de Péclet, (Pe)	5
Nombre de Damköhler, (Da)	2
Constante de demi-saturation, $K^{'}$	10^{-3}
Coefficient d'extinction, $k_d^{'}$	2×10^{-7}
Coefficient d'inhibition, $K_i^{'}$	2×10^{-3}
Coefficient de partage, K_{bh}	6×10^{-2}
Coefficient stœchiométrique, F_λ	0.3

ments préférentiels (mis en évidence dans le paragraphe précédent), la gouttelette C est le premier amas atteint par le développement bactérien, i.e., vers $t^{'} = 22$, tandis que la gouttelette A est la dernière (à $t^{'} = 36$). Une fois le biofilm en contact avec le NAPL, le processus de dissolution s'accélère sous l'effet des biosurfactants qui augmentent la solubilité de l'hydrocarbure. On constate ainsi que la gouttelette C, bien qu'elle soit la plus large ($R_C = 0.06$), est dissoute la première.

Afin de confirmer cette hypothèse, nous avons comparé sur les Figures 4.14e-4.14g l'évolution du rayon des gouttelettes de NAPL avec et sans la présence des bactéries. Nous constatons tout d'abord, qu'avant le contact entre le NAPL et le biofilm, la cinétique de dissolution est légèrement plus rapide en condition abiotique. Ce résultat, a priori surprenant, peut s'expliquer par l'impact de la biomasse sur l'écoulement. En effet, en absence de bactéries et tant que la gouttelette de NAPL n'est pas suffisamment importante pour perturber significativement l'écoulement, la vitesse d'écoulement reste constante et la dissolution dépend uniquement du nombre de Péclet. En revanche, lorsque le biofilm se développe au sein du milieu, il commence à obstruer une partie des pores à proximité des amas de NAPL, modifiant ainsi les chemins d'écoulement préférentiel et diminuant le nombre de Péclet local au voisinage de la gouttelette. Le nombre de Péclet local diminuant, la dissolution se ralentit (voir paragraphe 4.3.1.1). En revanche, lorsque le biofilm a adhéré aux parois de la gouttelette de NAPL, cette tendance est logiquement inversée et la vitesse

de dissolution s'accroît de manière significative. D'une part, le contact avec les bactéries favorise la solubilisation de l'hydrocarbure en raison des surfactants. D'autre part, l'assimilation bactérienne du contaminant organique accentue les gradients de concentration et donc les flux interfaciaux.

Les réactions aux seins des bactéries peuvent impacter sur le taux de dissolution de NAPL via l'augmentation/diminution de la concentration en biomasse qui joue un rôle essentiel dans l'évolution spatio-temporelle de l'espace poral d'un milieu poreux. Connaître les paramètres les plus influents sur l'évolution de ce taux de dissolution constitue une étape importante dans la modélisation de la dissolution de NAPL. Ainsi, dans les paragraphes suivants, notre intérêt s'est porté sur l'influence du nombre de Damkhöler et du coefficient d'inhibition sur le processus de dissolution.

4.3.2.1 Influence du nombre de Damköhler Da

Dans ce paragraphe, nous gardons les mêmes données que celles utilisées précédemment (Tab. 4.3), à l'exception du nombre de Damköler fixé à $Da = 200$. Cette valeur élevée se traduit par une augmentation de la cinétique de réaction et donc de la quantité de NAPL biodégradée par rapport aux résultats obtenus à $Da = 2$. Elle devrait aussi favoriser une production accrue de biomasse au voisinage immédiat des gouttes de NAPL.

Les simulations numériques, illustré sur les Figures 4.15a-4.15d, confirment cette analyse. Elles montrent une croissance plus rapide de la biomasse par rapport au comportement observé à $Da = 2$ sur la Fig. 4.14. En effet, les gouttelettes de NAPL sont en contact avec les filaments bactériens beaucoup plus rapidement, soit à $t^{'} = 8$ pour $Da = 200$ contre $t^{'} = 23$ pour $Da = 2$. De même, à $t^{'} = 35$ (Fig. 4.15d), pratiquement toutes les gouttes sont dissoutes (contre $t^{'} = 46$ pour $Da = 2$). Ce comportement se vérifie sur les Figs. 4.15e - 4.15g où nous avons comparé l'évolution des différentes gouttelettes pour les deux valeurs du nombre de Damköhler. La dissolution est plus rapide lorsque Da augmente, quelle que soit la gouttelette considérée.

Tant que le biofilm n'est pas en contact avec les amas de NAPL, l'augmentation de la vitesse de dissolution avec le nombre de Damköhler est faible. L'écart s'accentue en revanche fortement dès l'adhérence du biofilm aux gouttelettes de NAPL. La biodégradation, qui est conditionnée par la valeur de Da, joue alors un rôle prépondérant dans le processus de dissolution en augmentant le gradient de concentration et par conséquent, les flux de NAPL dissout.

Toutefois, l'influence des hétérogénéités structurales semblent se dissiper avec l'augmentation de Da. En effet, la dissolution de la gouttelette C qui était favorisée par les effets d'écoulement préférentiel à faible Da ou en absence de biomasse (Fig. 4.11) , semble ici subir un certain retard. Comme on peut le voir Fig. 4.15a, en effet, la bio-obstruction des pores

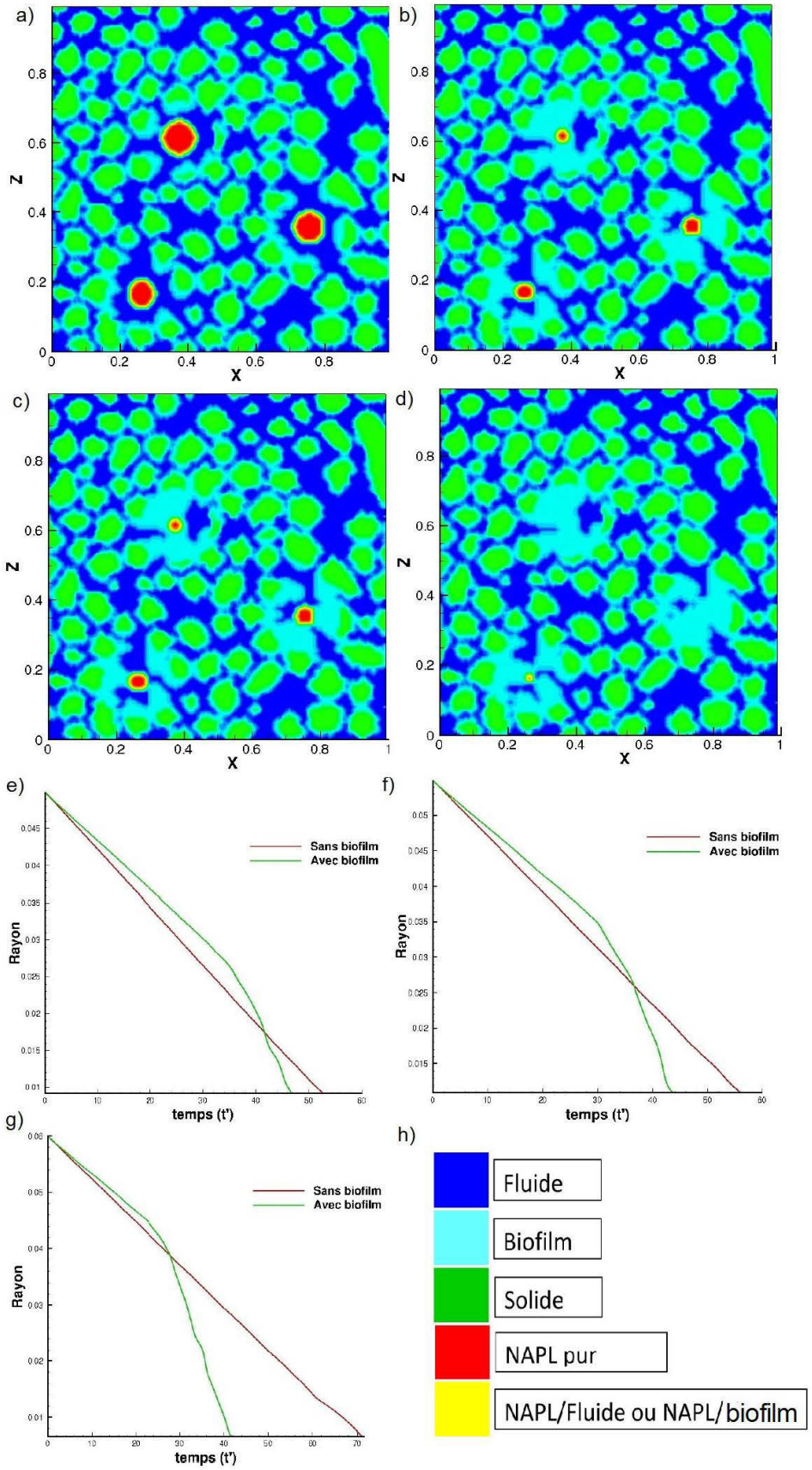

FIGURE 4.14 – *Géometrie du milieu poreux : a) $t' = 23$, b) $t' = 33$, c) $t' = 38$, d) $t' = 46$, e) Variation du rayon de la gouttelette A, f) Variation du rayon de la gouttelette B, g) Variation du rayon de la gouttelette C, h) Échelle de couleurs des types de maille. L'écoulement est orienté du bas vers le haut*

au voisinage de l'amas piégé joue le rôle de barrière à l'écoulement et conduit à réduire la vitesse (et donc le nombre de Péclet local) à proximité de l'interface eau/NAPL. De trop fortes valeurs du nombre de Damköhler pourraient donc avoir un effet paradoxal et ralentir le processus de dissolution au lieu de l'accélérer en bio-obstruant les pores à l'entrée du milieu poreux et limitant ainsi la disponibilité des amas de NAPL piégés.

4.3.3 Influence de la toxicité du NAPL

L'impact de la toxicité du NAPL sur la croissance bactérienne est pris en compte dans notre modèle au travers de l'utilisation de la cinétique de Haldane (équation 4.38). Le taux de réaction n'est plus ainsi contrôlé uniquement par le nombre de Damköhler et la constante de demi-saturation comme c'était le cas pour le modèle de Monod (cf. Chapitre 3) mais également par le coefficient d'inhibition K_i qui joue un rôle essentiel dans la croissance/décroissance bactérienne lorsque le seuil de tolérance à la concentration en substrat est dépassé. Dans cette section, nous conserverons pour les simulations envisagées les mêmes données que celles détaillées dans le Tableau 4.3, à l'exception des valeurs des coefficients d'inhibition K_i et d'extinction k_d.

Nous gardons tout d'abord constante la valeur du coefficient d'extinction, fixée à $k_d^{'} = 10^{-7}$ et étudions l'influence du coefficient d'inhibition. Pour les deux valeurs de K_i testées, resp. $K_i^{'} = 2 \times 10^{-3}$ et $K_i^{'} = 2 \times 10^{-5}$, les résultats des simulations sont présentés sur les Figures 4.16a et 4.16b. L'analyse de ces résultats indique que la croissance bactérienne est fortement influencée par la valeur du coefficient d'inhibition. Plus ce dernier diminue (autrement dit, plus la valeur seuil de concentration au delà de laquelle l'inhibition s'active est faible), plus la croissance bactérienne vers les gouttes de NAPL est ralentie. Ainsi, pour les conditions numériques utilisées, à $K_i^{'} = 2 \times 10^{-3}$, les gouttes de NAPL sont pratiquement recouvertes des bactéries et complètement dissoutes à environ $t^{'} = 17$. En revanche, lorsque $K_i^{'} = 2 \times 10^{-5}$, les bactéries croissent relativement loin des gouttelettes de NAPL et ne réussissent à adhérer à la phase huile qu'après seulement $t^{'} = 30$ (Fig. 4.16b).

Cet effet est d'autant plus marqué quand nous augmentons la valeur du coefficient d'extinction à $k_d^{'} = 2 \times 10^{-4}$. La comparaison effectuée pour le même K_i mais pour deux valeurs différentes de k_d est présentée sur les Figures 4.16b et 4.16c. Pour une forte valeur de k_d, la croissance bactérienne au voisinage du NAPL n'est plus ralentie mais clairement stoppée, le taux de mortalité bactérien devenant supérieur au taux de croissance au delà d'une certaine valeur de concentration d'hydrocarbure dissous. On peut clairement observer cet effet sur la Fig. 4.16d qui indique une diminution de la concentration en biomasse dès que l'on s'éloigne (concentration en substrat dissous trop faible) ou que l'on se rapproche (effet d'inhibition) trop de la source de polluant. Il se crée ainsi une *zone d'exclusion* autour des amas piégés, d'autant plus large que la valeur de K_i est petite et celle de k_d grande.

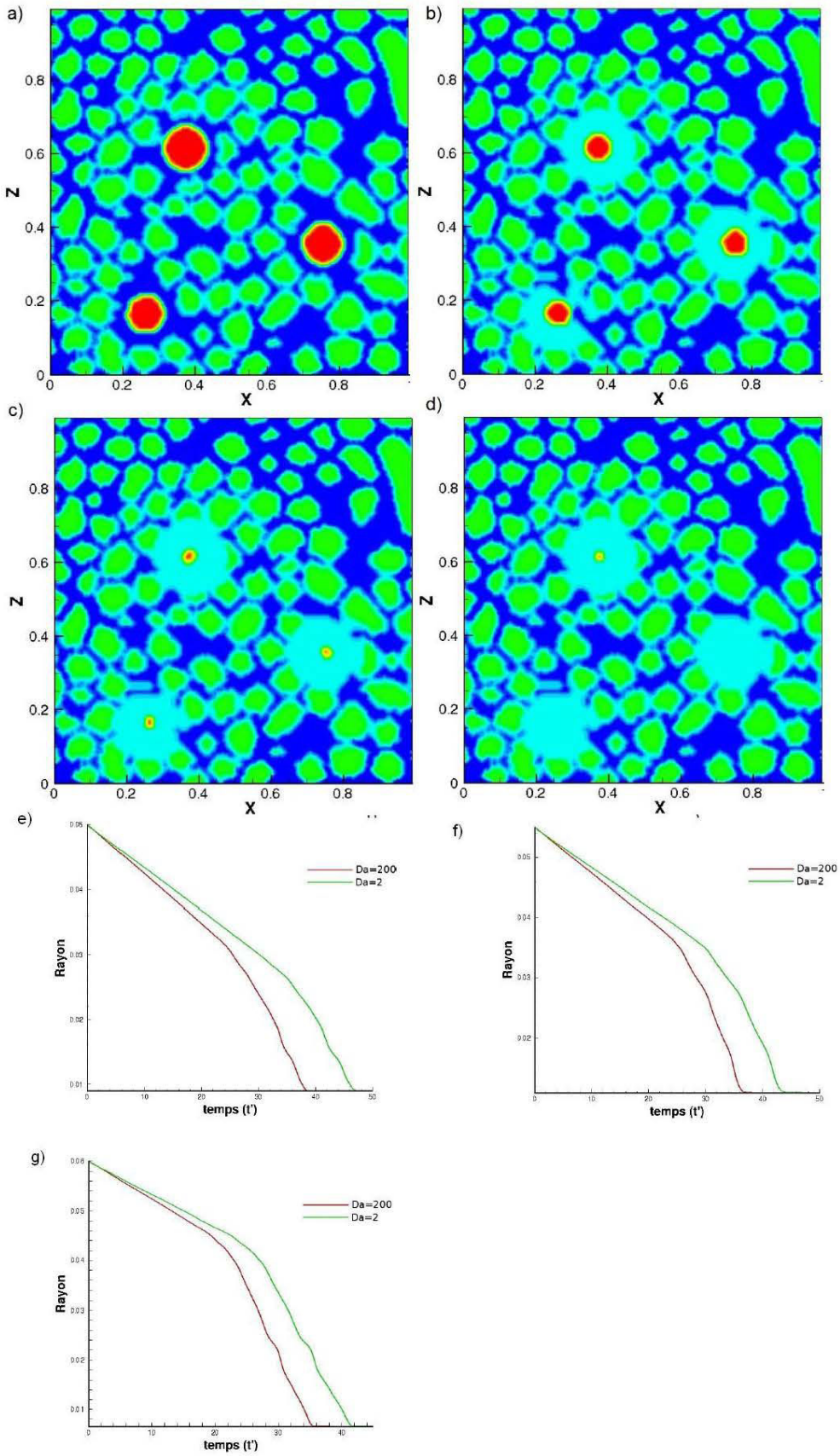

FIGURE 4.15 – *Géométrie du milieu poreux : a)* $t' = 8$, *b)* $t' = 18$, *c)* $t' = 32$, *d)* $t' = 35$, *e) Variation du rayon de la gouttelette A, f) Variation du rayon de la gouttelette B, g) Variation du rayon de la gouttelette C. L'écoulement est orienté du bas vers le haut*

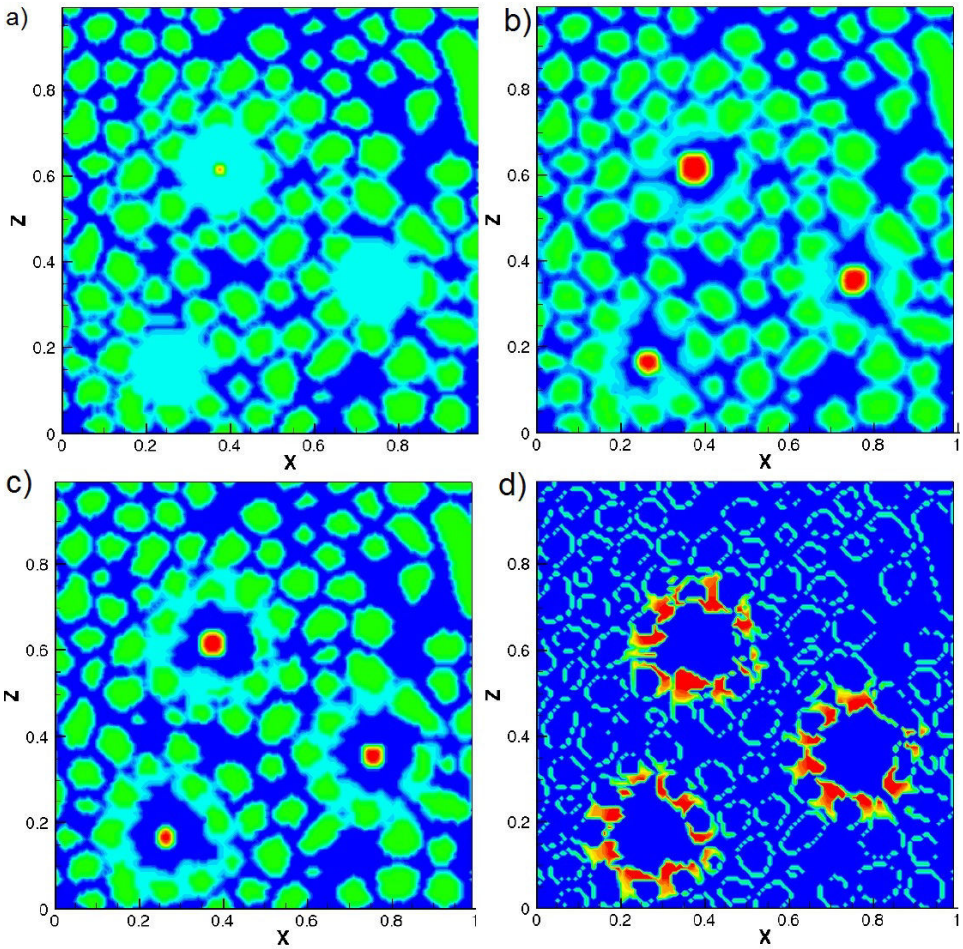

FIGURE 4.16 – *Géométrie du milieu poreux : a)* $t' = 17$, $K_i' = 2 \times 10^{-3}$, $k_d' = 2 \times 10^{-7}$; *b)* $t' = 30$, $K_i' = 2 \times 10^{-5}$, $k_d' = 2 \times 10^{-7}$; *c)* $t' = 40$, $K_i' = 2 \times 10^{-5}$, $k_d' = 2 \times 10^{-4}$; *d) Concentration en biomasse :* $t' = 40$, $K_i' = 2 \times 10^{-5}$, $k_d' = 2 \times 10^{-4}$, *la concentration varie de* 0 *en bleu à* 0.95 *en rouge. L'écoulement est orienté du bas vers le haut*

4.3.4 Vers l'échelle macroscopique : pertinence de l'hypothèse d'équilibre de masse local

Les différents simulations réalisées nous ont permis de mieux comprendre les différents mécanismes en jeu et l'influence de ceux-ci sur le processus d'atténuation naturelle (favorisé ou non par l'activité biologique) d'un hydrocarbure piégé au sein d'un milieu poreux. Un autre intérêt d'utiliser des modèles numériques à l'échelle du pore est de pouvoir valider ou infirmer des hypothèses simplificatrices pertinentes dans le cadre du développement de modèles à l'échelle macroscopique. Une approche classiquement utilisée par exemple dans la modélisation du transport de polluant est l'hypothèse d'équilibre local entre la phase fluide et la phase NAPL (Kaluarachchi et Parker 1990, Ahmadi et al. 2001). Celle-ci revient à considérer que la phase fluide environnant les amas d'hydrocarbure piégés est proche de l'équilibre thermodynamique avec la phase NAPL. En d'autres termes, la concentration d'hydrocarbure dissous est proche de la valeur de solubilité maximale en tout point du domaine. On peut ainsi décrire le transport de soluté dans le système eau/NAPL par une seule concentration régie par une équation de transport unique. Cette hypothèse est cependant loin d'être toujours vérifiée et de nombreux travaux expérimentaux (Miller et al. 1990, Powers et al. 1991) ont mis en évidence des comportements de non-équilibre local pour lesquels le processus de dissolution est nettement plus long.

Dans le cas qui nous occupe, cette hypothèse serait vraisemblablement peu pertinente compte tenu des faibles saturations de NAPL mises en jeu. Les limitations par le transfert de masse ont généralement lieu en effet pour de faibles saturations résiduelles en NAPL (Powers et al. 1991; 1992). En revanche, on peut se poser la question si une hypothèse d'équilibre entre les phases fluide et biofilm ne serait pas judicieuse. Elle permettrait de simplifier le développement du modèle macroscopique en passant d'un sytème triphasique à un problème diphasique NAPL/eau-biofilm. L'hypothèse d'équilibre local entre le biofilm et le fluide ambiant a été validée avec succès sous certaines conditions dans le cas du transport de contaminant dissous (Golfier et al. 2009) et un travail est en cours pour l'appliquer à des systèmes triphasiques (eau/NAPL/biofilm) (Bahar 2015). Les résultats de ces études montrent que de faibles valeurs du nombre de Péclet et de Damköhler sont généralement requises pour limiter l'apparition de forts gradients et pouvoir appliquer cette hypothèse. Toutefois, ces travaux se basent sur une distribution spatiale arbitraire de la biomasse ce qui peut fortement impacter la mise en place des gradients de concentration. Nous allons essayer d'évaluer dans ce dernière paragraphe la pertinence de cette hypothèse au travers de simulations à l'échelle du pore avec notre modèle couplé.

La même géométrie de milieu poreux et la même distribution des gouttelettes de NAPL sont conservées. Les bactéries occupent initialement 10% du volume poral mais celles-ci sont réparties aléatoirement cette fois ci aussi bien sur les interfaces NAPL que sur les interfaces solides. La Figure 4.17a présente la géométrie initiale du milieu inoculée par les

bactéries (la biomasse est représentées ici en blanc afin de faciliter la lisibilité). Pour le reste des simulations, toutefois, nous avons conservé la même échelle de couleur que précédemment. Les données d'entrée des simulations sont indiquées dans le Tableau 4.4. Une faible valeur du coefficient d'inhibition K_i est utilisée pour privilégier la formation de biofilm, y compris au contact des gouttelettes de NAPL. Notons que des faibles valeurs de Pe et Da ont été choisies afin de maintenir de faibles gradients de concentration dans les phases fluide et biofilm et se placer dans des conditions *a priori* favorables à une hypothèse d'équilibre local.

TABLE 4.4 – *Données numériques de simulation*

Paramètre	valeur adimensionnée
Longueur du domaine, $l_x^{'}$	1
Largeur du domaine, $l_z^{'}$	1
Nombre de maille selon x, N_x	116
Nombre de maille selon z, N_z	116
Concentration de la phase NAPL pure $c_h^{'}$	1
Coefficient de partage K_{fh}	6×10^{-5}
Coefficient de diffusion dans la phase fluide $D_f^{'}$	1
Coefficient de diffusion dans la phase biofilm $D_b^{'}$	0.25
Position des gouttelettes de NAPL (abscisse, ordonnée, rayon) A, B, C	$A(0.27, 0.17, 0.05)$, $B(0.76, 0.36, 0.055)$, $C(0.38, 0.62, 0.06)$
Nombre de Péclet, (Pe)	0.1
Nombre de Damköhler, (Da)	0.01
Constante de demi-saturation, $K^{'}$	10^{-5}
Coefficient d'extinction, $k_d^{'}$	2×10^{-7}
Coefficient d'inhibition, $K_i^{'}$	2×10^{-5}
Coefficient de partage, K_{bh}	6×10^{-4}
Coefficient stœchiométrique, F_λ	0.3

Les résultats des simulations, présentées sur les Figs. 4.17b et 4.17c, indiquent un comportement globalement similaire à celui déjà observé. Rapidement, le biofilm se développe préférentiellement au voisinage des amas de NAPL conduisant à la formation d'une *couronne* de biomasse autour des goutelettes de NAPL. À ce stade, le processus de dissolution est fortement accéléré au travers de l'augmentation de la solubilité et de la bio-assimilation de l'hydrocarbure dissous. Afin de déterminer si le comportement observé se rapproche des conditions d'équilibre local, il faut vérifier que les concentrations moyennes dans les phase fluide et biofilm, respectivement C_f^{moy} et C_b^{moy} sont proches de l'équilibre, c'est-à-dire,

$$C_f^{moy} = K_{bf} C_b^{moy} \tag{4.51}$$

Nous avons ainsi calculé le rapport $r_{eq} = C_f^{moy} / K_{bf} C_b^{moy}$ sur le domaine de calcul et déterminé sa variation au cours du temps, comme

illustré Fig. 4.17d. Dès les premiers pas de temps, la concentration de soluté augmentant au sein de la biomasse accrochée aux gouttelettes de NAPL alors que la concentration moyenne dans la phase fluide reste faible, le ratio r_{eq} diminue autour de 0.8. On observe ensuite une décroissance rapide du rapport r_{eq} suivie d'une phase plus lente lorsque la concentration moyenne au sein du biofilm se rapproche de la valeur de solubilité maximale et commence à se stabiliser. Ce résultat traduit un comportement caractéristique de non équilibre local, vraisemblablement lié à la distribution préférentielle du biofilm au sein des pores. Bien que les nombres de Péclet et de Damköhler soient faibles, la distribution extrêmement localisée des amas bactériens est un frein aux échanges avec le fluide en circulation dans les plus gros pores. La conséquence de ce phénomène est une réduction de la surface interfaciale effective d'échange et donc une limitation du transfert de masse. Ces résultats suggèrent une très forte dépendance de l'hypothèse d'équilibre local non seulement aux nombres adimensionnels caractéristiques des processus physiques mais aussi à la topologie du milieu. Un résultat similaire est observé pour les systèmes binaires eau/NAPL lorsque la saturation en polluant n'est pas continue (Yra 2006). Une répartition plus homogène du biofilm liée à une saturation plus importante de la phase huile serait nécessaire pour se rapprocher des conditions d'équilibre local.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons développé et intégré dans notre modèle les mécanismes associés à la dissolution et biodégradation d'une phase NAPL dans un milieu poreux. Une approche de dissolution uniforme, qui nous a paru la plus adaptée aux simulations envisagées, a été adoptée pour décrire l'évolution des amas piégés au cours du temps. Les premières simulations ont porté sur la dissolution du NAPL en condition abiotique et ont permis d'analyser sous différentes hypothèses (taille des amas, nombre de Péclet) l'effet de la distribution spatiale des gouttelettes de NAPL sur la vitesse de dissolution. Les résultats obtenus sont cohérents avec ceux issus de la littérature. Dans un deuxième temps, nous nous sommes intéressés au phénomène de dissolution en présence des bactéries. Différentes conditions ont été considérées (distribution spatiale, cinétique de réaction, toxicité) et leur impact sur le processus de dissolution analysé. Enfin, ce modèle à l'échelle du pore a été utilisé pour évaluer la pertinence d'une hypothèse d'équilibre local entre la phase fluide et biofilm. En dépit du peu de résultats numériques ou expérimentaux disponibles, notre modèle semble être en accord avec la description des phénomènes physiques attendus et étudiés au travers des exemples envisagés.

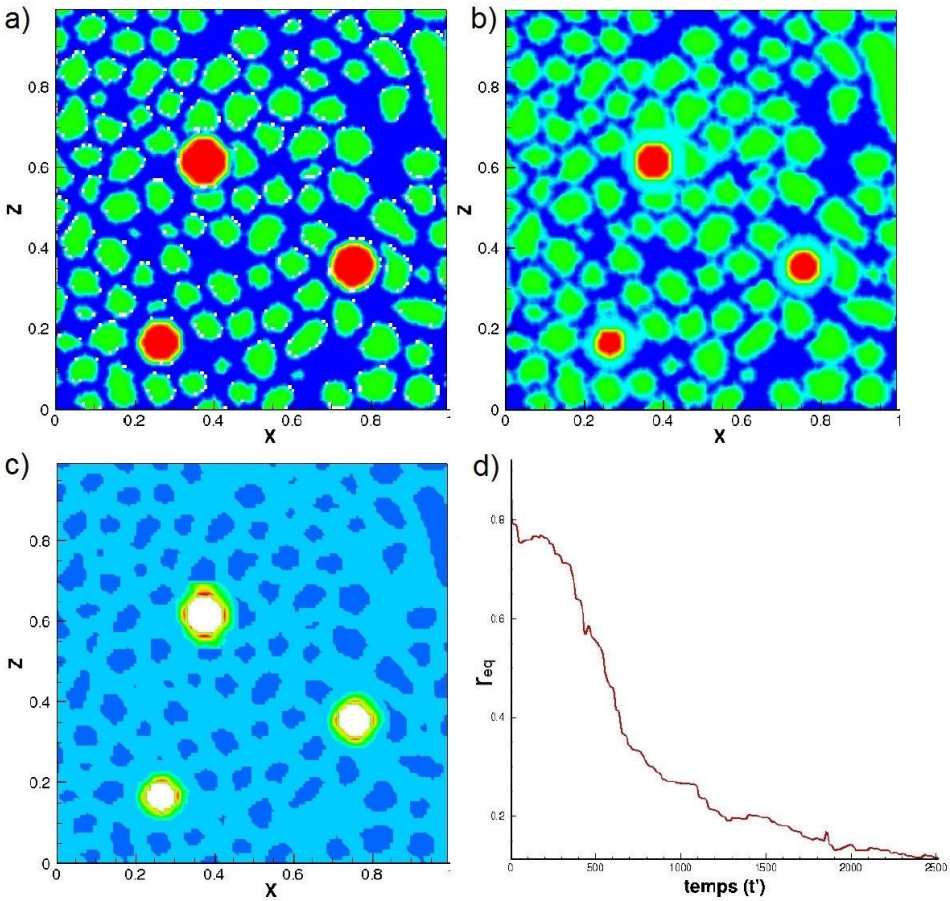

FIGURE 4.17 – *Géométrie du milieu poreux, les bactéries sont en blanc : a)*$t' = 0$ *et b)* $t' = 2250$ *; c) Champ de concentration à* $t' = 2250$ *: la concentration varie de* 0 *en bleu à* 6×10^{-5} *en rouge , d) Évolution temporelle de* r_{eq}*. L'écoulement est orienté du bas vers le haut*

5 Conclusion générale et Perspectives

Sommaire

5.1 Conclusions 133
5.2 Perspectives 134

5.1 Conclusions

Durant cette thèse, nous nous sommes intéressés à la modélisation numérique de la croissance microbienne en milieu poreux, en essayant d'intégrer dans nos modèles les mécanismes les plus importants qui impactent sur cette croissance.

Dans le chapitre 1, nous avons présenté dans un premier temps les processus biologiques intervenant au sein d'un biofilm, notamment la croissance bactérienne et les mécanismes d'attachement et de détachement des bactéries ainsi que les problèmes rencontrés lors de la modélisation de ces processus. Les difficultés liées à la multiplicité des phénomènes et aux échelles très différentes de temps et d'espace mises en jeu ont été soulignées. Dans un second temps nous avons effectué un état de l'art des différents modèles existants pour décrire la croissance bactérienne. Sur la base de cet état de l'art et compte tenu de sa grande souplesse, nous avons choisi une approche de type *automate cellulaire*.

La croissance de la biomasse dépend du transport du substrat qui est déterminé par l'écoulement du fluide. Une meilleure compréhension de la dynamique bactérienne requiert donc un calcul précis des champs de vitesse et de concentration. Dans le chapitre 2, nous avons développé un modèle de lattice Bolzmann (LBM) couplé avec un modèle aux frontières immergées de type "direct forcing" (IB-LBM) pour le calcul de l'écoulement du fluide. L'efficacité de ce modèle a été évaluée en l'appliquant sur un pore 3D de section carrée qui se réduit très lentement avec le temps. Le modèle a été comparé avec des méthodes numériques classiques (LBM Bounce-back, LBM interpolated Bounce-back) et avec la solution analytique de référence. Les résultats montrent une précision significative de la solution obtenue par IB-LBM, même lorsque la réduction de la taille de pore devient critique. L'utilisation du modèle IB-LBM permet de conserver une précision suffisante de la solution pour une description plus grossière du domaine. En termes de temps de calcul, le modèle IB-LBM est plus coûteux que le LBM avec une condition de *bounce-back* interpolée mais ce coût est largement compensé par le gain de précision. L'impact de ce modèle sur le calcul du transport d'un soluté réactif est examiné, en comparant la précision d'une méthode de type Volume Of Fluid (VOF) avec celle d'une approche par reconstruction d'interface. Il a été démontré que l'impact des processus physiques interfaciaux (tels que la cinétique de réaction) est fortement corrélé avec l'efficacité de la méthode immergée utilisée. Dans le chapitre 3, nous avons développé un modèle d'automate cellulaire pour simuler l'évolution spatio-temporelle de la biomasse durant la croissance bactérienne. En utilisant les méthodes aux frontières immergées développées dans le chapitre 2 (IB-LBM, VOF, VF - reconstruction d'interface), nous avons pu pallier le principal défaut rencontré dans ce type d'approche, lié à la taille de la maille élémentaire de l'automate. Le modèle écoulement - transport - croissance a été validé en le confrontant à des benchmarks proposés dans la littérature. Enfin, le modèle a été appliqué à des géométries de milieux poreux 2D et 3D sous différentes conditions hydrodynamiques. Nous avons ainsi pu proposer un premier diagramme

de régime représentant les différents modes de croissance en fonction des nombres de Damköler *Da* et de Péclet *Pe*.

Dans le chapitre 4, nous avons étudié la dissolution du NAPL et son interaction avec le biofilm environnant à l'échelle du pore. En premier lieu, nous avons modélisé l'atténuation naturelle du NAPL en condition abiotique. Nous avons montré l'influence de la distribution spatiale de la phase huile et de la vitese d'écoulement sur les taux de dissolution observés en comparant la réduction au cours du temps des rayons des gouttelettes de NAPL. Les résultats obtenus vont dans le sens des observations expérimentales données dans la littérature. Dans un second temps, nous avons modélisé la dissolution du NAPL en présence de biofilm et l'influence de la production de surfactants. Des simulations ont été effectuées pour différentes conditions afin d'illustrer la capacité du modèle à prédire les phénomènes physiques et biologiques observés. Nous avons aussi considéré l'impact de la toxicité de certains NAPLs sur les populations bactériennes qui le dégradent. Pour un faible coefficient d'inhibition et un fort coefficient d'extinction, on constate la mise en place d'une distance optimale autour des gouttelettes de NAPL à partir de laquelle les bactéries peuvent croître.

5.2 Perspectives

Si les modèles numériques proposés dans cette thèse ont permis d'apporter un éclairage supplémentaire sur les mécanismes régissant le développement bactérien en milieu poreux, nous n'avons malheureusement pas réussi à valider notre modèle par rapport à des données expérimentales. Bien que les progrès dans les méthodes d'imagerie non intrusive permettent actuellement de caractériser la répartition de la biomasse au sein d'un milieu poreux Davit et al. (2011), notre modèle reste trop fortement contraint par le temps de calcul en particulier en $3D$ pour envisager de simuler avec précision ces processus de croissance sur des temps longs. La parallélisation du code sera nécessaire dans le futur pour envisager une application à des conditions expérimentales 3D.

Plusieurs pistes d'amélioration s'offrent à nous pour la suite. Le modèle est tout d'abord limité à un biofilm mono-espèce et considère une seule source de nutriment. L'extension du modèle à plusieurs espèces bactériennes utilisant des accepteurs d'électron différents (bactéries aérobies / anaérobies par exemple) serait intéressante pour étudier les effets de compétition et de stratification des différentes colonies bactériennes au sein du biofilm. D'autre part, la production d'EPS et de cellules bactériennes n'est pas différenciée. Il serait judicieux de pouvoir faire évoluer cette production en fonction des conditions de stress environnemental et de faire évoluer son impact sur les propriétés hydrodynamiques du milieu (résistance à l'arrachement fonction de la quantité d'EPS produite).

Les simulations numériques réalisées à l'échelle du pore pourraient aussi être utilisées pour effectuer une *homogénéisation numérique* et déterminer les propriétés effectives du milieu et leur évolution au cours du temps. Nous pourrions ainsi analyser l'évolution des corrélations

perméabilité-porosité ou du tenseur de dispersion en fonction de la fraction volumique de biomasse produite et des régimes de croissance. Ces résultats viendraient enrichir les modèles macroscopiques actuellement utilisés pour simuler la biodégradation d'un panache de pollution.

Enfin, l'extension du modèle aux conditions multiphasiques nous semble extrêmement prometteur et ouvre la voie à de nombreux développements futurs. Des travaux expérimentaux sont en cours actuellement au laboratoire sur la biodégradation d'une phase NAPL au sein d'un micromodèle (Bahar 2015) qui permettrait de valider les premiers résultats numériques obtenus. La prise en compte de la remobilisation des gouttelettes sous l'effet de la production de biosurfactants et de l'impact de la tension superficielle (en utilisant un modèle LBM multiphasique) représente le prochain défi à relever.

Bibliographie

L. M. Abriola. Modeling multiphase migration of organic chemicals in groundwater systems- a review and assessment. *Environmental Health Perspectives*, 83 :143–148, 1989. (Cité page 96.)

A. Ahmadi, A. Aigueperse, et M. Quintard. Calculation of the effective properties describing active dispersion in porous media : from simple to complex unit cells. *Advances in Water Resources*, 24 :423–438, 2001. (Cité pages 117 et 126.)

D. Al-Bader, M. Kansour, R. Rayan, et S. Radwan. Biofilm comprising phototrophic, diazotrophic, and hydrocarbon-utilizing bacteria : a promising consortium in the bioremediation of aquatic hydrocarbon pollutants. *Environmental Science and Pollution Research*, 20(5) :3252–3262, 2013. (Cité page 13.)

D.G. Allison, D.J. Evans, M.R.W. Brown, et P. Gilbert. Possible involvement of the division cycle in dispersal of *Escherichia coli* from biofilms. *Journal of Bacteriology*, 172 :1667–1669, 1990. (Cité page 10.)

E. Alpkvist et I. Klapper. A multidimensional multispecies continuum model for heterogeneous biofilm development. *Bulletin of Mathematical Biology*, 69(2) :765–789, 2007. (Cité pages 17 et 18.)

E. Alpkvist, C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et A. Heyden. Three-dimensional biofilm model with individual cells and continuum EPS matrix. *Biotechnol Bioeng*, 94 :961– 979, 2006. (Cité page 20.)

R. T. Armstrong et D. Wildenschild. Investigating the pore-scale mechanisms of microbial enhanced oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 94 :155–164, 2012. (Cité pages 95 et 99.)

T.B. Bahar. *Influence d'une phase microbienne sur le comportement d'un polluant en conditions multiphasiques*. Thèse de doctorat, Université de Lorraine, 2015. (Cité pages 126 et 135.)

I.M. Banat, S.R. Makkar, et S.S. Cameotra. Potential commercial application of microbial surfactants. *Applied Microbiology Biotechnology*, 53 : 495–508, 2000. (Cité page 98.)

A. Barak. Control of development of biofilms in industrial process water, Juillet 3 2006. US Patent. (Cité page 12.)

N.B. Basu, A.D. Fure, et J.W. Jawitz. Predicting dense nonaqueous phase liquid dissolution using a simplified source depletion model parameterized with partitioning tracers. *Water Resources Research*, 44 :W07414, 2008. (Cité page 97.)

D.J. Batstone, C. Picioreanu, et M.C.M. van Loosdrecht. Multidimensional modelling to investigate interspecies hydrogen transfer in anaerobic biofilms. *Water Resources*, 40 :3099 – 3108, 2006. (Cité page 20.)

E. Ben-Jacob, O. Schochet, A. Tenenbaum, I. Cohen, A. Czirok, et T. Vicsek. Generic modelling of cooperative growth patterns in bacterial colonies. *Nature*, 368 :46–49, 1994. (Cité page 22.)

M. Böl, R.B. Möhle, M. Haesner, T.R. Neu, H. Horn, et R. Krull. 3D finite element model of biofilm detachment using real biofilm structures from CLSM data. *Biotechnology and Bioengineering*, 103(1) :177–186, 2009. (Cité page 12.)

D.G. Bourne, L. Hoj, N.S. Webster, J. Swan, et M.R. Hall. Biofilm development within a larval rearing tank of the tropical rock lobster, *Panulirus ornatus*. *Aquaculture*, 260(1-4) :27 – 38, 2006. (Cité page 12.)

G. Brackman, U. Hillaert, S. Van Calenbergh, H.J. Nelis, et T. Coenye. Use of quorum sensing inhibitors to interfere with biofilm formation and development in *Burkholderia multivorans* and *Burkholderia cenocepacia*. *Research in Microbiology*, 160(2) :144 – 151, 2009. (Cité page 8.)

S. A. Bradford, T. J. Phelan, et L. M. Abriola. Dissolution of residual tetrachloroethylene in fractional wettability porous media : correlation development and application. *Journal of Contaminant Hydrology*, 45 :35–61, 2000. (Cité page 96.)

M. L. Brusseau, G. Schnaar S. Peng, et M. S. Costanza-Robinson. Relationships among air-water interfacial area, capillary pressure, and water saturation for a sandy porous medium. *Water Resources Research*, 42 : W03501, doi :10.1029/2005WR004058., 2006. (Cité page 97.)

J.D. Bryers. *Biofilm formation and persistence*. In : Bryers, J.D., 2000. (Cité page 10.)

C.R. Bunt, D.S. Jones, et I.G. Tucker. The effects of pH, ionic strength and organic phase on the bacterial adhesion to hydrocarbons (bath) test. *International Journal of Pharmaceutics*, 99(2-3) :93 – 98, 1993. (Cité page 6.)

B. Carpentier et O. Cerf. Biofilms and their consequences, with particular reference to hygiene in the food industry. *Journal of Applied Bacteriology*, 75(6) :499–511, 1993. (Cité page 6.)

H.T. Chang, B.E. Rittmann, D. Amar, R. Heim, O. Ehlinger, et Y. Lesty. Biofilm detachment mechanisms in a liquid-fluidized bed. *Biotechnology and Bioengineering*, 38(5) :499–506, 1991. (Cité page 9.)

W. G. Characklis. Attached microbial growths- II. Frictional resistance due to microbial slimes. *Water Resource*, 7 :1249 – 1258, 1973. (Cité page 3.)

R. Chesnaux. Analytical closed-form solutions for assessing pumping cycles, times, and costs required for NAPL remediation. *Environmental Geology*, 55 :1381–1388, 2008. (Cité page 94.)

R.A.N. Chmielewski et J.F. Frank. Biofilm formation and control in food processing facilities. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*, 2(1) :22–32, 2003. (Cité page 4.)

Y.C. Choi et E. Morgenroth. Monitoring biofilm detachment under dynamic changes in shear stress using laser-based particle size analysis and mass fractionation. *Water Science*, 47 :69–76, 2003. (Cité pages 10 et 11.)

J.A. Christ, C.A. Ramsburg, K.D. Pennell, et L.M. Abriola. Estimating mass discharge from dense nonaqueous phase liquid source zones using upscaled mass transfer coefficients : an evaluation using multiphase numerical simulations. *Water Resources Research*, 42 :W11420., 2006. (Cité page 97.)

M. Chu, P.K. Kitanidis, et P.L. McCarty. Possible factors controlling the effectiveness of bioenhanced dissolution of non-aqueous phase tetrachloroethene. *Advances in Water Ressources*, 27 :601–615, 2004. (Cité pages 95 et 102.)

C.L. Chun, J.J. Lee, et J.W. Park. Solubilization of pah mixtures by three different anionic surfactant. *Environmental Pollution.*, 118 :307–313, 2002. (Cité page 101.)

S.E. Coetser et T.E. Cloete. Biofouling and biocorrosion in industrial water systems. *Critical Reviews in Microbiology*, 31 :213–232, 2005. (Cité page 12.)

N.G. Cogan et J.P. Keener. The role of the biofilm matrix in structural development. *Mathematical Medecine and Biology*, 21 :147–166, 2004. (Cité page 18.)

R.L. Colasanti. Cellular automata models of microbial colonies. *Binary, computing in microbiology*, 4 :191–193, 1992. (Cité page 22.)

J. W. Costerton, G. G. Geesey, et K-J. Cheng. How bacteria stick. *Scientific American*, 238 :86 – 95, 1978. (Cité page 3.)

J.W. Costerton, D.E. Caldwell, D.R. Korber, et H.M. Lappin-Scott. Microbial biofilms. *Annual Review Microbiology*, 49 :711–745, 1994. (Cité page 74.)

J.W. Costerton, R.T. Irvin, et K.J. Cheng. The bacterial glycocalyx in nature and disease. *Annual Review Microbiology*, 35 :299–324, 1981. (Cité page 3.)

M.M. Cowan, T.M. Warren, et M. Fletcher. Mixed species colonization of solid surfaces in laboratory biofilms. *Biofouling*, 3 :23–34, 1991. (Cité page 6.)

K.A. Culligan, D. Wildenschild, B.S.B. Christensen, M.L. Rivers W.G. Gray, et A.F.B. Tompson. Interfacial area measurements for unsaturated flow through a porous medium. *Water Resources Research*, 40 :W12413, doi :10.1029/2004WR003278, 2004. (Cité page 97.)

K.A. Culligan, D. Wildenschild, B.S.B. Christensen, M.L. Rivers W.G. Gray, et A.F.B. Tompson. Pore-scale characteristics of multiphase flow in porous media : A comparison of air-water and oil-water experiments. *Advances in Water Resources.*, 29 :227–238, 2006. (Cité page 97.)

J. Cuny. *Etude du couplage hydrodynamique/croissance des biofilms*. rapport de Master M2 Génie Civil, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2014. (Cité pages 26 et 64.)

D.G. Davies, M.R. Parsek, J.P. Pearson, B.H. Iglewski, J.W. Costerton, et E.P. Greenberg. The involvement of cell-to-cell signals in the development of a bacterial biofilm. *Science*, 280(5361) :295–298, 1998. (Cité page 8.)

Y. Davit, G. Iltis, G. Debenest, S. Veran-Tissoires, D. Wildenschild, M. Gerino, et M. Quintard. Imaging biofilm in porous media using x-ray computed microtomography. *Journal of Microscopy*, 242(1) :15–25, 2011. (Cité page 134.)

D. de Beer, P. Stoodly, F. Roe, et Z. Lewandowski. Effects of biofilms structures on oxygen distribution and mass transport. *Biotechnologie and Bioengineering*, 43 :1131–1138, 1994. (Cité page 76.)

A.W. Decho. Microbial biofilms in intertidal systems : an overview. *Continental Shelf Research*, 20(10 - 11) :1257 – 1273, 2000. (Cité page 4.)

W. Deng, M.B. Cardenas, M.F. Kirk, S.J. Altman, et P.C. Bennett. Effect of permeable biofilm on micro- and macro-scale flow and transport in bioclogged pores. *Environmental Science & Technology*, 47(19) :11092–11098, 2013. (Cité page 4.)

N. Derlon, C Coufort-Saudejaud, I. Queinnec, et E. Paul. Growth limiting conditions and denitrification govern extent and frequency of volume detachment of biofilms. *Chemical Engineering Journal*, 218 :368 – 375, 2013. (Cité pages 11 et 69.)

N. Derlon, A. Masse, R. Escudié, N. Bernet, et E. Paul. Stratification in the cohesion of biofilms grown under various environmental conditions. *Water Research*, 42(8-9) :2102 – 2110, 2008. (Cité page 10.)

J.D. Desai et I.M. Banat. Microbial production of surfactants and their commercial potential. *Microbiology and Molecular Biology Reviews*, 91 :47 – 64, 1997. (Cité page 98.)

L. A. Dillard et M. J. Blunt. Development of a pore network simulation model to study nonaqueous phase liquid dissolution. *Water Resources Research*, 36 :439–454, 2000. (Cité page 96.)

J. Dockery et I. Klapper. Finger formation in biofilm layers. *SIAM Journal on Applied Mathematics*, 62 :853–869, 2001. (Cité pages x, 17, 18 et 25.)

W. D. Donachie et A. C. Robinson. *Cell division : parameter values and the process*. In : Neidhardt, F. C., others. (Eds.), *Escherichia coli* and *Salmonella typhimurium* : Cellular and Molecular Biology., 1996. (Cité page 19.)

R. Duddu, D.L. Chopp, et B. Moran. A two-dimensional continuum model of biofilm growth incorporating fluid flow and shear stress based detachment. *Biotechnology and Bioengineering*, 103(1) :92–104, 2009. (Cité page 12.)

J. P. Eberhard, R.E. Ewing, et A. Cunningham. Coupled cellular models for biofilm growth and hydrodynamic flow in a pipe. *International Journal for Multiscale Computational Engineering*, 3(4) :499–516, 2005. ISSN 1543-1649. (Cité page 22.)

H.J. Eberl, D.F. Parker, et M.C.M. van Loosdrecht. A new deterministic spatio-temporal continuum model for biofilm development. *Journal of Theoretical Medicine*, 3 :161–175, 2001. (Cité pages ix, x, 7, 8, 17, 25, 67 et 74.)

H.J. Eberl, C. Picioreanu, J.J. Heijnen, et M.C.M. van Loosdrecht. A three-dimensional numerical study on the correlation of spatial structure, hydrodynamic conditions, and mass transfer and conversion in biofilms. *Chemical Engineering Science*, 55(24) :6209 – 6222, 2000. (Cité pages ix, 7 et 9.)

A. Ebigbo, F. Golfier, et M. Quintard. A coupled pore-scale model for methanogenic microbial activity in underground hydrogen storage. *Advances in Water Resources*, 61 :74–85, 2013. (Cité pages 15 et 17.)

S. Ebrahimi, C. Picioreanu, J.B. Xavier, R. Kleerebezem, M. Kreutzer, F. Kapteijn, J.A. Moulijn, et M.C.M. van Loosdrecht. Biofilm growth pattern in honeycomb monolith packings : Effect of shear rate and substrate transport limitations. *Catalysis Today*, 105 :448–454, 2005. (Cité pages ix et 5.)

D. Elenter, K. Milferstedt, W. Zhang, M. Hausner, et E. Morgenroth. Influence of detachment on substrate removal and microbial ecology in a heterotrophic/autotrophic biofilm. *Water Resource*, 41 :4657–4671, 2007. (Cité pages 10 et 17.)

C.S. Laspidou et B.E. Rittmann. Modeling the development of biofilm density including active bacteria, inert biomass, and extracellular polymeric substance. *Water Resources,*, 38 :3349–3361, 2004. (Cité page 22.)

P. Fischer. *Modélisation de la biodégradation des NAPLs dans les eaux souterraines*. rapport de Master M2 Génie Civil, Université de Lorraine, 2014. (Cité page 102.)

H. Fujikawa. Diversity of the growth patterns of *Bacillus subtilis* colonies on agar plates. *FEMS Microbiology Ecology*, 13(3) :159–168, 1994. (Cité page 21.)

W.C. Fuqua, S.C. Winans, et E.P. Greenberg. Quorum sensing in bacteria : the LuxR-Luxl family of cell density-responsive transcriptional regulators. *Journal of Bacteriology*, 176 :269–275, 1994. (Cité page 8.)

M. Garcia-Junco, C. Gomez-Lahoz, J.L. Niqui-Arroyo, et J.L. Ortega-Calvo. Biosurfactant- and biodegradation-enhanced partitioning of polycyclic

aromatic hydrocarbons from nonaqueous-phase liquids. *Environmental Science & Technology.*, 37 :2988–2996, 2003. (Cité page 101.)

K. Garny, T.R. Neu, et H. Horn. Sloughing and limited substrate conditions trigger filamentous growth in heterotrophic biofilms - measurements in flowthrough tube reactor. *Chemical Engineering Journal*, 64 : 2723–2732, 2009. (Cité page 11.)

J. T. Geller et J. R. Hunt. Mass transfer from nonaqueous phase organic liquids in water-saturated porous media. *Water Resources Research*, 29 : 833–845., 1993. (Cité page 97.)

F. Golfier, B.D. Wood, L. Orgogozo, M. Quintard, et M.A. Buès. Biofilms in porous media : Development of macroscopic transport equations via volume averaging with closure for local mass equilibrium conditions. *Advances in Water Resources*, 32(3) :463–485, 2009. (Cité pages 15 et 126.)

F. Golfier, C. Zarcone, B. Bazin, R. Lenormand, D. Lasseux, et M. Quintard. On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium. *Journal of Fluid Mechanics*, 457 :213–254, 2002. (Cité pages 84 et 88.)

F.L. Hellweger et V. Bucci. A bunch of tiny individuals-individual-based modeling for microbes. *Ecological Modelling*, 220(1) :8 – 22, 2009. (Cité page 20.)

A.T. Henrici. Studies of freshwater bacteria. A direct microscopic technique. *Journal of Bacteriology*, 25 :277–287, 1933. (Cité page 3.)

S.W. Hermanowicz. A model of two-dimensional biofilm morphology. *Water Science and Technology*, 37 :219–222, 1998. (Cité page 22.)

S.W. Hermanowicz. A simple 2D biofilm model yields a variety of morphological features. *Mathematical Biosciences*, 169 :1–14, 2001. (Cité pages 11 et 22.)

H. Heukelekian et A. Heller. Relation between food concentration and surface for bacterial growth. *Journal of Bacteriology*, 40 :547–558, 1940. (Cité page 3.)

H. Horn et D.C. Hempel. Growth and decay in an auto-/heterotrophic biofilm. *Water Research*, 31(9) :2243 – 2252, 1997. (Cité page 17.)

H. Horn, H. Reiff, et E. Morgenroth. Simulation of growth and detachment in biofilm systems under defined hydrodynamic conditions. *Biotechnology and Bioengineering*, 81(5) :607–617, 2003. (Cité pages 11 et 17.)

G. Hua, Y. Zeng, Z. Zhao, K. Cheng, et G. Chen. Applying a resting operation to alleviate bioclogging in vertical flow constructed wetlands : An experimental lab evaluation. *Journal of Environmental Management*, 136 :47 – 53, 2014. (Cité page 4.)

T. Huang, J. Xu, et D. Cai. Efficiency of active barriers attaching biofilm as sediment capping to eliminate the internal nitrogen in eutrophic lake and canal. *Journal of Environmental Sciences*, 23(5) :738 – 743, 2011. (Cité page 13.)

S.M. Hunt, E.M. Werner, B. Huang, M.A. Hamilton, et P.S. Stewart. Hypothesis for the role of nutrient starvation in biofilm detachment. *Applied and Environmental Microbiology*, 70(12) :7418–7425, 2004. (Cité page 10.)

P. T. Imhoff, P. R. Jaffé., et G. F. Pinder. An experimental study of complete dissolution of a nonaqueous phase liquid in saturated porous media. *Water Resources Research*, 30 :307–320, 1994. (Cité pages 96, 97, 98 et 115.)

V. Janakiraman, D. Englert, A. Jayaraman, et H. Baskaran. Modeling growth and quorum sensing in biofilms grown in microfluidic chambers. *Annals of Biomedical Engineering*, 37 :1206–1216, 2009. (Cité page 8.)

C. Jia, K. Shing, et Y. C. Yortsos. Visualization and simulation of non-aqueous phase liquids solubilization in pore networks. *Journal of Contaminant Hydrology*, 35 :363–387, 1999. (Cité page 96.)

H. C. Jones, I. L. Roth, et W. M. Saunders III. Electron microscopic study of a slime layer. *Journal of Bacteriology*, 99 :316–325, 1969. (Cité page 3.)

J.T.Walker et P.D.Marsh. A review of biofilms and their role in microbial contamination of dental unit water systems. *Intrenational Biodetrioration and Biodegradation*, 54 :87–98, 2004. (Cité page 7.)

M.L. Kalmokoff, J.W. Austin, X.-D. Wan, G. Sanders, S. Banerjee, et J.M. Farber. Adsorption, attachment and biofilm formation among isolates of *Listeria monocytogenes* using model conditions. *Journal of Applied Microbiology*, 91(4) :725–734, 2001. ISSN 1365-2672. (Cité page 3.)

J.J. Kaluarachchi et J.C. Parker. Modeling multi-component organic chemical transport in three-fluid-phase porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, 5 :349–374, 1990. (Cité page 126.)

G.E. Kapellos, T.S. Alexiou, et A.C. Payatakes. Hierarchical simulator of biofilm growth and dynamics in granular porous materials. *Advances in Water Resources*, 30(6-7) :1648 – 1667, 2007. (Cité pages 4, 12 et 16.)

J.B. Kaplan, M.F. Meyenhofer, et D.H. Fine. Biofilm growth and detachment of *Actinobacillus actinomycetemcomitans*. *Journal of Bacteriology*, 185 (4) :1399–1404, 2003. (Cité page 10.)

J.B. Kaplan, C. Ragunath, K. Velliyagounder, D.H. Fine, et N. Ramasubbu. Enzymatic detachment of *Staphylococcus epidermidis* biofilms. *Antimicrob Agents Chemother.*, 48 :2633–2636, 2004. (Cité page 10.)

M. Katsikogianni et Y.F. Missirlis. Concise review of mechanisms of bacterial adhesion to biomaterials and of techniques used in estimating bacteria-materials interactions. *European Cells and Materials*, 8 :37–57, 2004. (Cité page 6.)

C. A. Kennedy et W. C. Lennox. A pore-scale investigation of mass transport from dissolving DNAPL droplets. *Journal of Contaminant Hydrology*, 24 :221–246, 1997. (Cité pages 96 et 115.)

B. Kent et M.G.C Bianchi. Remediation of NAPL-contaminated aquifers : is the cure worth the cost ? *Journal of Environmental Science and Health*, 36 :1559–1569, 2001. (Cité page 94.)

H. Khassehkhan, M.A. Efendiev, et H.J. Eberl. A degenerate diffusion-reaction model of an amensalistic biofilm control system : existence and simulation of solutions. *Discrete and Continuous Dynamical Systems. Ser. B*, 12 :371–388, 2009. (Cité page 22.)

C. Knutson, A. Valocchi, et C. Werth. Comparison of continuum and pore-scale models of nutrient biodegradation under transverse mixing conditions. *Advances in Water Resources*, 30(6-7) :1421–1431, 2007. (Cité page 4.)

C. E. Knutson, C. J. Werth, et A. J. Valocchi. Pore-scale simulation of biomass growth along the transverse mixing zone of a model two-dimensional porous medium. *Water Resources Research*, 41(7) :W07007, 2005. ISSN 1944-7973. (Cité page 23.)

A. Kokkinaki, D.M. O'Carroll, C.J. Werth, et B.E. Sleep. An evaluation of Sherwood-Gilland models for NAPL dissolution and their relationship to soil properties. *Journal of Contaminant Hydrology*, 155 :87–98, 2013. (Cité page 97.)

T. Kone, F. Golfier, L. Orgogozo, C. Oltéan, E. Lefèvre, J.C. Block, et M.A. Buès. Impact of biofilm-induced heterogeneities on solute transport in porous media. *Water Resources Research*, 50 :9103–9119, 2014. (Cité page 5.)

J-U. Kreft, G. Booth, et J.W.T. Wimpenny. BacSim, a simulator for individual-based modelling of bacterial colony growth. *Microbiology*, 144 :3275–3287, 1998. (Cité pages 14 et 19.)

J-U. Kreft, C. Picioreanu, J.W. T. Wimpenny, et M.C.M. van Loosdrecht. Individual-based modelling. *Microbiology*, 147(11) :2897–2912, 2001. (Cité pages 19 et 20.)

J-U. Kreft et J.W.T. Wimpenny. Effect of EPS on biofilm structure and function as revealed by an individual-based model of biofilm growth. *Water Science and Technology*, 43 :135–141, 2001. (Cité page 19.)

J-U. Krefta, C. Picioreanu, J.W.T. Wimpenny, et M.C.M. van Loosdrecht. Individual-based modelling of biofilms. *Microbiology*, 147 :2897–2912, 2001. (Cité pages x, 7 et 25.)

A. Kumar, S. Kumar, et S. Kumar. Biodegradation kinetics of phenol and catechol using *Pseudomonas putida* MTCC 1194. *Biochemical Engineering Journal*, 22 :151–159, 2005. (Cité page 110.)

C.S. Laspidou, A. Kungolos, et P. Samaras. Cellular-automata and individual-based approaches for the modeling of biofilm structures : Pros and cons. *Desalination*, 250(1) :390 – 394, 2010. (Cité pages 20, 22 et 23.)

C.S. Laspidou, A. Liakopoulos, et M.G. Spiliotopoulos. A 2D cellular automaton biofilm detachment algorithm. 7495 :415–424, 2012. (Cité pages 11, 20 et 22.)

C.S. Laspidou, S.A. Rittmann, et B.E. Karaman. Finite element modeling to expand the UMCCA model to describe biofilm mechanical behavior. *Water Science and Technology*, 52 :161–166, 2005. (Cité page 22.)

Y-C. Lee, T-S. Kwon, J-S. Yang, et J-W. Yang. Remediation of groundwater contaminated with DNAPLs by biodegradable oil emulsion. *Journal of Hazardous Materials*, 140 :340–345, 2007. (Cité page 94.)

R. Lenormand et C. Zarcone. Invasion percolation in an etched network - measurement of a fractal dimension. *Physical Review Letters.*, 54(20) : 2226–2229, 1985. (Cité page 88.)

H.M. Lopez, J. Gachelin, C. Douarche, H. Auradou, et E. Clément. Turning bacteria suspensions into a "superfluid". *Physical Review Letters.*, page in press, 2015. (Cité page 6.)

T.F. Mah et G.A. O'Toole. Mechanisms of biofilm resistance to antimicrobial agents. *Trends in Microbiology*, 9 :39–41, 2001. (Cité page 4.)

S. Matsumoto, M. Katoku, G. Saeki, A. Terada, Y. Aoi, et S. Tsuneda. Microbial community structure in autotrophic nitrifying granules characterized by experimental and simulation analyses. *Environ Microbiol*, 12 : 192 – 206, 2010. (Cité page 20.)

S. Matsumoto, A. Terada, Y. Aoi, S. Tsuneda, E. Alpkvist, et C. Picioreanu. Experimental and simulation analysis of community structure of nitrifying bacteria in a membrane-aerated biofilm. *Water Science and Technology*, 55 :283–290, 2007. (Cité page 20.)

R.D. MeeGee, S. Kinoshita, A.G. Fredrickson, et H.M. Tsuchiya. Differentiation and product formation in molds. *Biotechnology Bioengineering*, 12 : 771–801, 1970. (Cité page 59.)

J.W. Mercer et R.M. Cohen. A review of immiscible fluids in the subsurface : Properties, models, characterization and remediation. *Journal of Contaminant Hydrology*, 6 :107–163, 1990. (Cité page 93.)

B. Meyer. Approaches to prevention, removal and killing of biofilms. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 51(4) :249 – 253, 2003. (Cité page 12.)

K. Milferstedt, M.-N. Pons, et E. Morgenroth. Optical method for long-term and large-scale monitoring of spatial biofilm development. *Wiley InterScience*, 94 :773–782, 2006. (Cité page 9.)

C.T. Miller, G. Christakos, P.T. Imhoff, J.F. McBride, J.A. Pedit, et J.A. Trangenstein. Multiphase flow and transport modeling in heterogeneous porous media : challenges and approaches. *Advances in Water Resources*, 21 :77–120, 1998. (Cité page 93.)

C.T. Miller, M. Poirier-McNeill, et A.S. Mayer. Dissolution of trapped nonaqueous phase liquids : Mass transfer characteristics. *Water Resources Research*, 26 :2783–2796, 1990. (Cité pages 96, 98 et 126.)

E. Morgenroth et P.A. Wilderer. Influence of detachment mechanisms on competition in biofilms. *Water Research*, 34(2) :417 – 426, 2000. (Cité pages 10 et 11.)

C. Mougin. Bioremediation and phytoremediation of industrial PAH-polluted soils. *Polycyclic Aromatic Compounds*, 22(5) :1011–1043, 2002. (Cité page 95.)

I.M. Nambi et S.E. Powers. Mass transfer correlations for nonaqueous phase liquid dissolution from regions with high initial saturations. *Water Resources Research*, 39 :1030, doi :10.1029/2001WR000667., 2003. (Cité pages 97 et 98.)

J.C. Nickel, J.W. Costerton, R.J.C. McLean, et M. Olson. Bacterial biofilms : Influence on the pathogenesis, diagnosis and treatment of urinary tract infections. *Journal of Antimicrobial Chemotherapy*, 33(suppl A) : 31–41, 1994. (Cité page 9.)

D.R. Noguera et C. Picioreanu. Results from the multi-species benchmark problem (bm3) using two-dimensional models. *Water Science and Technology*, 49 :169–176, 2004. (Cité page 21.)

D.R. Noguera, G. Pizarfo, D.A. Stahl, et B.E. Rittmann. Simulation of multispecies biofilm development in three dimensions. *Water Science and Technology*, 39(7) :123 – 130, 1999. (Cité pages x, 23 et 24.)

I. Ofek et R.J. Doyle. *Bacterial adhesion to cells and tissues*. Chapman & Hall, 1994. ISBN 9780412030116. (Cité page 4.)

J.C. Parker et E. Park. Modeling field-scale dense non-aqueous phase liquid dissolution kinetics in heterogeneous aquifers. *Water Resources Research*, 40 :W05109, 2004. (Cité page 97.)

M.R. Parsek et E.P. Greenberg. Sociomicrobiology : the connections between quorum sensing and biofilms. *TRENDS in Microbiology*, 13 :27–33, 2005. (Cité page 8.)

E. Paul, J.C. Ochoa, Y. Pechaud, Y. Liu, et A. Liné. Effect of shear stress and growth conditions on detachment and physical properties of biofilms. *Water Research*, 46(17) :5499 – 5508, 2012. (Cité pages 11, 69 et 70.)

J. E. Paulsen, S. Ekrann, et E. Oppen. Visualisation of bacterial degradation and mobilisation of oil in a porous medium. *Environmental Geology*, 38 : 204–208, 1989. (Cité pages xii, 99, 100 et 101.)

C. Picioreanu, Batstone, D.J., et M.C.M. van Loosdrecht. Multidimensional modelling of anaerobic granules. *Water Science and Technology*, 52 :501–507, 2005. (Cité page 20.)

C. Picioreanu, J-U. Kreft, et M.C.M. van Loosdrecht. Particle-based multidimensional multispecies biofilm model. *Applied and Environmental Microbiology*, 70(5) :3024–3040, 2004. (Cité pages x et 25.)

C. Picioreanu et Heijnen J.J. van Loosdrecht, M.C.M. *Modeling and predicting biofilm structure*. D.G. Allison, P. Gilbert, H.M. Lappin-Scott, M. Wilson (Eds.), 2000. (Cité pages 21 et 22.)

C. Picioreanu, M. C. M van Loosdrecht, et J. J. HEIJNEN. Mathematical modelling of biofilm structure with a hybrid differential-discrete cellular automaton approach. *Biotechnology and bioengineering*, 58 :101–102, 1998a. (Cité pages ix, x, 7, 8, 14, 22, 25, 66, 67, 74 et 76.)

C. Picioreanu, M.C. van Loosdrecht, et J.J. Heijnen. Effect of diffusive and convective substrate transport on biofilm structure formation : a two-dimensional modeling study. *Biotechnol Bioeng*, 69 :504–515, 2000a. (Cité pages ix, 16 et 79.)

C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et J.J Heijnen. Mathematical modeling of biofilm structure with a hybrid differential-discrete cellular automaton approach. *Biotechnology and Bioengineering*, 58 :101–106, 1998b. (Cité page 60.)

C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et J.J. Heijnen. A new combined differential-discrete cellular automaton approach for biofilm modeling : application for growth in gel beads. *Biotechnology and Bioengineering*, 57 : 718–731, 1998c. (Cité pages x, 14, 22 et 24.)

C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et J.J. Heijnen. A theoretical study on the effect of surface roughness on mass transport and transformation in biofilms. *Biotechnol Bioeng*, 68 :355–369, 2000b. (Cité pages ix, 7 et 9.)

C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et J.J. Heijnen. Two-dimensional model of biofilm detachment caused by internal stress from liquid flow. *Biotechnol Bioeng*, 72 :205–2018, 2001. (Cité pages 10, 11, 12 et 22.)

Xavier J. Picioreanu, C. et M.C.M van Loosdrecht. Advances in mathematical modeling of biofilm structure. *Biofilms*, 1 :1–13, 2004. (Cité page 20.)

T.R.R. Pintelon, D.A. Graf von der Schulenburg, et M.L. Johns. Towards optimum permeability reduction in porous media using biofilm growth simulations. *Biotechnology and Bioengineering*, 103(4) :767–779, 2009. (Cité page 12.)

T.R.R. Pintelon, C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et M.L. Johns. The effect of biofilm permeability on bio-clogging of porous media. *Biotechnology and Bioengineering*, 109(4) :1031–1042, 2012. (Cité page 4.)

P. Piriou, S. Dukan, Y. Levi, et P.A. Jamge. Prevention of bacterial growth in drinking water distribution systems. *Water Science and Technology*, 35(11-12) :283 – 287, 1997. Health-Related Water Microbiology 1996 Selected Proceedings of the {IAWQ} 8th International Symposium on Health-related Water Microbiology 1996. (Cité page 9.)

G. Pizarro, D. Griffeath, et D.R Noguera. Quantitative cellular automaton model for biofilms. *Journal of Environmental Engineering*, 127 :782–789, 2001. (Cité page 21.)

C. Potera. Forging a link between biofilms and disease. *Science*, 283(5409) : 1837–1839, 1999. (Cité page 3.)

S.E. Powers, L.M. Abriola, J.S. Dunkin, et W.J. Weber. Phenomenological model for transient NAPL-water mass-transfer processes. *Journal of Contaminant Hydrology*, 16 :1–33, 1994a. (Cité page 97.)

S.E. Powers, L.M. Abriola, et W.J. Weber. An experimental investigation of nonaqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems : Steady state mass transfer rates. *Water Resources Research*, 28 :2691–2705, 1992. (Cité pages 96, 117 et 126.)

S.E. Powers, L.M. Abriola, et W.J. Weber. An experimental investigation of nonaqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems : Transient mass transfer rates. *Water Resources Research*, 30 :321–332, 1994b. (Cité pages 96 et 98.)

S.E. Powers, C.O. Loureiro, L.M. Abriola, et W.J. Weber. Theoretical study of the significance of nonequilibrium dissolution of nonaqueous phase liquids in subsurface systems. *Water Resources Research*, 27 :463–477, 1991. (Cité pages 96, 97 et 126.)

B. Prakash, B. M. Veeregowda, et G. Krishnappa. Biofilms : A survival strategy of bacteria. *Journal of Current Research in Science*, 85 :9–10, 2003. (Cité pages 3 et 9.)

Y.Z. Wang R. Chen X. Zhu Y.K. Pu et D.J. Lee Q. Liao, Y.J. Wang. Two-dimension mathematical modeling of photosynthetic bacterial biofilm growth and formation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 37 : 15607–15615, 2012. (Cité page 22.)

S. Ray et C.A. Peters. Changes in microbiological metabolism under chemical stress. *Chemosphere*, 71 :474–483, 2008. (Cité page 101.)

P. Reichert. Aquasim - a tool for simulation and data-analysis of aquatic systems. *Water Science and Technology*, 30 :21–30, 1994. (Cité page 11.)

A. Richards, J.I. Gerhard, et B. Kueper. Hydraulic displacement of dense nonaqueous phase liquids for source zone stabilization. *Ground Water*, 50 :765–774, 2013. (Cité page 97.)

M.L. Rockhold, R.R. Yarwood, M.R. Niemet, P.J. Bottomley, F.J. Brockman, et J.S. Selker. Visualization and modeling of the colonization dynamics of a bioluminescent bacterium in variably saturated, translucent quartz sand. *Advances in Water Resources*, 30(6-7) :1593 – 1607, 2007. (Cité page 4.)

C.J. Rupp, C.A. Fux, et P. Stoodley. Viscoelasticity of *Staphylococcus aureus* biofilms in response to fluid shear allows resistance to detachment and facilitates rolling migration. *Applied and Environmental Microbiology*, 71 (4) :2175–2178, APR 2005. (Cité page 10.)

T. Saba et T. H. Illangasekare. Effect of groundwater flow dimensionality on mass transfer from entrapped nonaqueous phase liquid contaminants. *Water Resources Research*, 36 :971–979., 2000. (Cité pages 97 et 98.)

S. Saenton et T. Illangasekare. Upscaling of mass transfer rate coefficient for the numerical simulation of dense nonaqueous phase liquid dissolution in heterogeneous aquifers. *Water Resources Research*, 43 :W02428, 2007. (Cité page 97.)

P. Saravanan, K. Pakshirajan, et P. Saha. Growth kinetics of an indigenous mixed microbial consortium during phenol degradation in a batch reactor. *Bioresource Technology*, 99 :205–209, 2008. (Cité page 110.)

K. Sauer, A.K. Camper, G.D. Ehrlich, J.W. Costerton, et D.G. Davies. *Pseudomonas aeruginosa* displays multiple phenotypes during development as a biofilm. *Journal of Bacteriology*, 184(4) :1140–1154, 2002. (Cité page 4.)

T.R. Scheuerman, A.K. Camper, et M.A. Hamilton. Effects of substratum topography on bacterial adhesion. *Journal of Colloid and Interface Science*, 208(1) :23–33, 1998. (Cité page 6.)

J. Schindler et T. Rataj. Fractal geometry and growth models of a *Bacillus subtilis* colony. *Binary, computing in microbiology*, 4 :66–72, 1992. (Cité page 21.)

J. Schindler et L. Rovensky. A model of intrinsic growth of a bacillus colony. *Binary, computing in microbiology*, 6 :105–108, 1994. (Cité page 21.)

F. Schwille. *Dense chlorinated solvents in porous and fractured media - model experiments*. Chelsea ; Lewis, 1988. (Cité page 93.)

E. A. Seagren, B. E. Rittman, et A. J. Valocchi. A critical evaluation of the local-equilibrium assumption in modelling NAPL-pool dissolution. *Journal of Contaminant Hydrology*, 39 :109–135, 1999. (Cité page 97.)

Y. Seo, W-H. Lee, G. Sorial, et P.L. Bishop. The application of a mulch biofilm barrier for surfactant enhanced polycyclic aromatic hydrocarbon bioremediation. *Environmental Pollution*, 157(1) :95 – 101, 2009. (Cité page 13.)

R. Singh et M.S. Olson. Kinetics of trichloroethylene and toluene toxicity to *Pseudomonas putida F*1. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 29 : 56–63, 2010. (Cité pages xii et 102.)

R. Singh, D. Paul, et R.J. Jain. Biofilms : implications in bioremediation. *Trends in Microbiology*, 14 :389 – 397, 2006. (Cité page 13.)

C.T. Skowlund. Effect of biofilm growth on steady-state biofilm models. *Botechnology Bioengineering*, 35(5) :502–510, 1990. (Cité page 60.)

A.W. Smith. Biofilms and antibiotic therapy : Is there a role for combating bacterial resistance by the use of novel drug delivery systems ? *Advanced Drug Delivery Reviews*, 57(10) :1539 – 1550, 2005. (Cité page 3.)

P.S. Stewart, G.A. McFeters, et C.T. Huang. *Biofilm formation and persistence*. In : Bryers, J.D., 2000. (Cité page 10.)

P. Stoodley, R. Cargo, C.J. Rupp, S. Wilson, et I. Klapper. Biofilm material properties as related to shear-induced deformation and detachment phenomena. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology*, 29(6) : 361–367, 2002. ISSN 1367-5435. (Cité page 10.)

P. Stoodley, S. Wilson, L. Hall-Stoodley, J.D. Boyle, H.M Lappin-Scott, et J.W. Costerton. Growth and detachment of cell clusters from mature mixed-species biofilms. *Applied and Environmental Microbiology*, 67 :5608–5613, 2001. (Cité page 10.)

R. Sudarsan, K. Milferstedt, E. Morgenroth, et H.J. Eberl. Quantification of detachment forces on rigid biofilm colonies in a roto-torque reactor using computational fluid dynamics tools. *Water Science & Technology*, 52 :149–154, 2005. (Cité page 10.)

L. Talon, D. Bauer, N. Giant, S. Youssef, H. Auradou, et I. Ginzburg. Assessment of the two relaxation time lattice-boltzmann scheme to simulate stokes flow in porous media. *Water Resources Research*, 48 :W04526, 2012. (Cité page 31.)

Y. Tang et A.J. Valocchi. An improved cellular automaton method to model multispecies biofilms. *Water Research*, 47(15) :5729 – 5742, 2013. (Cité pages x, 23 et 24.)

U. Telgmann, H. Horn, et E. Morgenroth. Influence of growth history on sloughing and erosion from biofilms. *Water Research*, 38(17) :3671 – 3684, 2004. (Cité page 10.)

M. Thullner, L. Mauclaire, M.H. Schroth, W. Kinzelbach, et J. Zeyer. Interaction between water flow and spatial distribution of microbial growth in a two-dimensional flow field in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, 58(3-4) :169 – 189, 2002. (Cité page 5.)

L. Tijhuis, M. C. M. van Loosdrecht, et J. J. Heijnen. Dynamics of biofilm detachment in biofilm airlift suspension reactors. *Biotechnology and Bioengineering*, 45(6) :481–487, 1995. ISSN 1097-0290. (Cité page 9.)

M.C.M. van Loosdrecht, J.J. Heijnen, H. Eberl, J-U. Kreft, et C. Picioreanu. Mathematical modelling of biofilm structures. *Antonie van Leeuwenhoek*, 81(1-4) :245–256, 2002. (Cité page 14.)

C.J. Van Oss, M.K. Chaudhury, et R.J. Good. Interfacial Lifshitz-Van der Waals and polar interactions in macroscopic systems. *Chemical Reviews*, 88(6) :927–941, 1988. (Cité page 6.)

L.M. Vega, J. Mathieu, Y. Yang, B.H. Pyle, R.J.C McLean, et P.J.J. Alvarez. Nickel and cadmium ions inhibit quorum sensing and biofilm formation without affecting viability in *Burkholderia multivorans*. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 91(0) :82 – 87, 2014. (Cité page 8.)

D.A.G. von der Schulenburg, T.R.R. Pintelon, C. Picioreanu, M.C.M. van Loosdrecht, et M.L. Johns. Three-dimensional simulations of biofilm growth in porous media. *AIChE Journal*, 55(2) :494–504, 2009. (Cité page 20.)

M. Walter, A. Safari, A. Ivankovic, et E. Casey. Detachment characteristics of a mixed culture biofilm using particle size analysis. *Chemical Engineering Journal*, 228(0) :1140 – 1147, 2013. (Cité page 10.)

Q. Wang et T. Zhang. Review of mathematical models for biofilms. *Solid State Communications*, 150(21 - 22) :1009 – 1022, 2010. (Cité page 17.)

O. Wanner, H.J. Ebert, E. Morgenroth, D. Noguera, C. Picioreanu, B.E. Rittmann, et M.C.M. van Loosdrecht. *Mathematical Modeling of Biofilms*. IWA Scientific and Technical Report No.18., 2006. (Cité pages 21 et 22.)

O. Wanner et W. Gujer. A multispecies biofilm model. *Biotechnology and Bioengineering*, 28(3) :314–328, 1986. (Cité pages 11 et 17.)

S. Whitaker. *The Method of Volume Averaging*. Kluwer Academic Publishers, 1999. (Cité page 15.)

J.W.T. Wimpenny et R. Colasanti. A unifying hypothesis for the structure of microbial biofilms based on cellular automaton models. *FEMS Microbiology Ecology*, 22(1) :1–16, 1997. (Cité page 22.)

J. Wingender, T.R. Neu, et H-C. Flemming. What are bacterial extracellular polymeric substances ? Dans Jost Wingender, ThomasR. Neu, et Hans-Curt Flemming, éditeurs, *Microbial Extracellular Polymeric Substances*, pages 1–19. Springer Berlin Heidelberg, 1999. (Cité page 4.)

B.D. Wood, K. Radakovich, et F. Golfier. Effective reaction at a fluid - solid interface : Application to biotransformation in porous media. *Advances in Water Resources*, 30 :1630–1647, 2007. (Cité pages xi, 79 et 81.)

B.D. Wood et S. Whitaker. Diffusion and reaction in biofilms. *Chemical Engineering Science*, 53(3) :397–425, 1998. (Cité page 59.)

J. Xavier, M.K. de Kreuk, C. Picioreanu, et M.C.M van Loosdrecht. Multiscale individual-based model of microbial and bioconversion dynamics in aerobic granular sludge. *Environmental Science & Technology*, 41 :6410 – 6417, 2007. (Cité page 20.)

J.B. Xavier, C. Picioreanu, S.A. Rani, M.C.M. van Loosdrecht, et P.S Stewart. Biofilm-control strategies based on enzymic disruption of the extracellular polymeric substance matrix - a modelling study. *Microbiology*, 151 : 3817 – 3832, 2005a. (Cité page 20.)

Jde.B. Xavier, C. Picioreanu, et M.C.M. van Loosdrecht. A general description of detachment for multidimensional modelling of biofilms. *Biotechnol Bioeng*, 91 :651–669, 2005b. (Cité pages 10 et 20.)

Y. Xiong et Y. Liu. Biological control of microbial attachment : a promising alternative for mitigating membrane biofouling. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 86(3) :825–837, 2010. (Cité page 12.)

T. Yamamoto et S. Ueda. Numerical simulation of biofilm growth in flow channels using a cellular automaton approach coupled with a macro flow computation. *Biorheology*, 50 :203–216, 2013. (Cité page 20.)

Y. Yang et P.L. McCarty. Biologically enhanced dissolution of tetrachloroethene DNAPL. *Environmental Science & Technologyl.*, 34 :2979–2984, 2000. (Cité page 102.)

A. Yra. *Dispersion active en milieux poreux hétérogènes contaminés par des produits hydrocarbonés*. Thèse de doctorat, Université de Lorraine, 2006. (Cité page 128.)

K. Zhang, M. Ou, W. Wang, et J. Ling. Effects of quorum sensing on cell viability in *Streptococcus mutans* biofilm formation. *Biochemical and Biophysical Research Communications*, 379(4) :933 – 938, 2009. (Cité page 8.)

D. Zhou, L.A. Dillard, et M.J. Blunt. A physically based model of dissolution of nonaqueous phase liquids in the saturated zone. *Transport in Porous Media*, 39 :227–255, 2000. (Cité page 97.)

J. Zhu et J.F. Sykes. The influence of NAPL dissolution characteristics on field-scale contaminant transport in subsurface. *Journal of Contaminant Hydrology*, 41 :133–154, 2000. (Cité page 93.)

Zobell. The effect of solid surfaces upon bacterial activity. *Journal of Bacteriology*, 46 :39–56, 1943. (Cité page 3.)